Étude expérimentale de la formation et l'oxydation des particules de suie dans des chambres de combustion RQL (Rich-burn, Quick-mix, Lean-burn) fonctionnant à haute pression

Aurélien Perrier

▶ **To cite this version:**

Aurélien Perrier. Étude expérimentale de la formation et l'oxydation des particules de suie dans des chambres de combustion RQL (Rich-burn, Quick-mix, Lean-burn) fonctionnant à haute pression. Thermique [physics.class-ph]. Normandie Université, 2022. Français. NNT : 2022NORMIR37 . tel-04077759

HAL Id: tel-04077759
https://theses.hal.science/tel-04077759

Submitted on 21 Apr 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Normandie Université

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité Énergie et Propulsion

Préparée au sein de l'INSA Rouen Normandie

Étude expérimentale de la formation et l'oxydation des particules de suie dans des chambres de combustion RQL (Rich-burn, Quick-mix, Lean-burn) fonctionnant à haute pression

Présentée et soutenue par
Aurélien Perrier

Thèse soutenue publiquement le 15 décembre 2022 devant le jury composé de		
Mme Pascale DESGROUX	Directrice de Recherche au laboratoire PC2A	Rapportrice
M. Klaus Peter GEIGLE	Senior Scientist au laboratoire DLR Stuttgart	Rapporteur
M. Camille STROZZI	Maître de conférences à l'Institut Pprime – ISAE-ENSMA	Examinateur
M. Félix COLLIN-BASTIANI	Docteur-ingénieur Conception Aéro-Combustion chez Safran Aircraft Engines	Examinateur
M. Alain CAYRE	Expert combustion chez Safran Aircraft Engines	Examinateur
M. Gilles CABOT	Professeur à l'Institut Universitaire de Technologie de Rouen - CORIA	Codirecteur de thèse
M. Frédéric GRISCH	Professeur à l'INSA Rouen Normandie - CORIA	Directeur de thèse
M. Jérôme YON	Professeur à l'INSA Rouen Normandie - CORIA	Examinateur

Thèse dirigée par Frédéric GRISCH et Gilles CABOT, laboratoire UMR 6614 CORIA

INSA ROUEN NORMANDIE

591 ED PSIME

CORIA UMR 6614

Résumé

L'augmentation du trafic aérien s'accompagne d'un durcissement des réglementations destiné à réduire les émissions de gaz à effet de serre et de polluants. Les objectifs FlightPath visent une réduction des émissions de CO_2 de 75% et de 90% des oxydes d'azote (NOx) l'horizon 2050. Les règlementations mondiales amènent donc les constructeurs de moteurs d'aéronefs à développer des architectures de chambres de combustion toujours plus innovantes. Parmi les solutions envisagées, la technologie RQL, acronyme anglais de Rich-burn, Quick-mix & Lean-burn, suscite l'intérêt du motoriste français Safran Aircraft Engines (SAE). Cette architecture moteur se démarque par une excellente stabilité de flamme associée à un faible taux de production de NOx. Néanmoins, il a été observé que les taux de production de particules de suie étaient plus élevés dans les chambres de combustion RQL, en comparaison d'autres stratégies de combustion faiblement émettrices de NOx.

L'objectif de la présente thèse consiste en une étude expérimentale des mécanismes de formation des polluants gazeux et particulaires, sur plusieurs systèmes d'injection aéronautiques RQL fournis par SAE. Les essais sont réalisés au sein du laboratoire français CORIA, sur le banc de combustion aéronautique HERON, capable de reproduire les conditions de pression et de température d'une chambre de combustion aéronautique. Le comportement du système d'injection RQL est étudié au moyen de multiples diagnostics laser avancés. Parmi les mesures effectuées, la quantification des émissions de NOx, l'analyse de la structure de flamme et de l'injection de carburant, est réalisée par la technique optique de Fluorescence Induite par Laser Planaire (PLIF). La distribution spatiale de fraction volumique de suie est mesurée par technique d'Incandescence Induite par Laser (LII). En complément de cette technique optique, la distribution en taille des particules de suie est obtenue par prélèvement et analysée au spectromètre de mobilité électrique (SMPS). Le prélèvement des particules est réalisé au moyen d'une sonde spécialement conçue pour ce projet, laquelle est capable d'extraire des gaz de combustion au cœur même de la chambre de combustion.

Outre une meilleure compréhension des mécanismes de formation de suie opérant sur leurs prototypes, la base de données expérimentales obtenue permettra à SAE de développer et valider les modèles de suie qui seront intégrés dans leurs codes de simulation. Dans une plus large mesure, les résultats obtenus permettront d'établir de premières règles de conception des systèmes d'injection RQL qui équiperont les futurs moteurs aéronautiques.

Abstract

The current growth of the global air traffic must comply with new regulations that aims to reduce the emission of the greenhouse gases and pollutants by the aircrafts. The European strategy for aviation, Flightpath 2050, intends achieve a 75% reduction in CO_2 emissions per passenger kilometre and a 90% reduction in NOx emissions. To meet these challenging objectives aircraft engine manufacturers have to develop increasingly complex and innovative combustion chamber architectures. The Rich-burn, Quick-mix, Lean-burn (RQL) technology is one of the most promising solutions that is currently pursued by the French engine manufacturer Safran Aircraft Engines (SAE). This engine architecture stands out due to its excellent flame stability, coupled with the low NOx production levels. However, RQL combustors tend to have higher soot production rates compared to other low-NOx combustion strategies.

The purpose of this work was to investigate formation of gaseous and particulate pollutants generated in an RQL combustion chamber. The RQL injection systems studied in this project were provided by SAE. Experiments were carried out at the French laboratory CORIA, on the aeronautical test rig HERON. This combustion bench is able to reproduce temperature and pressure conditions that occur in aeronautical combustion chambers. The flames generated by the RQL injection systems under study were analysed using multiple advanced laser diagnostic techniques. Planar Laser Induced Fluorescence (PLIF) was used to analyse the flame structure, the fuel injection as well as NOx emissions. The spatial distribution of soot volume fractions was measured by Laser Induced Incandescence (LII). In addition, the size distribution of soot particles was obtained using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS). The soot particles were extracted from the combustion chamber via a sampling probe that was specially designed to fulfil the needs of this project.

The current work will further the understanding of soot formation mechanisms occurring in the SAE RQL prototypes. Moreover, the experimental database obtained will assist SAE in the development and validation of the numerical models of soot formation that will be incorporated into their simulation codes. To a larger extent, these results are essential in the advancement of the design of the RQL injection systems, bringing them closer to the implementation in the SAE engines.

Remerciements

Avant toute chose, j'adresse mes premiers remerciements et à l'Association Nationale Recherche et Technologie (ANRT) et l'industriel Safran Aircraft Engines, pour avoir financé ce projet. Merci à mon équipe d'encadrement : les Professeurs d'Université Frédéric GRISCH et Gilles CABOT ainsi qu'Alain CAYRE, expert chez Safran Aircraft Engines, pour la confiance qu'ils m'ont accordée.

Je remercie Pascale DESGROUX, Directrice de Recherche au laboratoire PC2A, ainsi que Klaus Peter Geigle, Senior Scientist au laboratoire DLR en Allemagne, d'avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse, pour leur retour sur mon travail, et les conseils qu'il m'ont promulgués.

La réussite de ma thèse n'aurait pu être possible sans l'implication de nombreux membres du laboratoire, à commencer par Marcos CACERES, Ingénieur responsable du banc de combustion HERON. Je suis extrêmement reconnaissant pour sa patience. Je tiens également à remercier Andrei-Silviu MILEA pour son assistance, sa fraîcheur, son dynamisme et son engagement. Je lui souhaite bonne réussite pour la fin de sa thèse.

Je souhaite adresser mes remerciements au pôle métrologie du CORIA. Merci à Gilles GODARD pour sa réactivité, son professionnalisme. Je n'oublie évidemment pas ses « sbires » (comme il aime si bien les appeler), et qui m'ont également énormément apporté : Alexis VANDEL, Franck LEFEBVRE, Carole GOBIN et Guillaume LESAGE.

Un grand merci également aux membres de l'atelier du CORIA, Benjamin QUEVREUX, Thierry MULLER, Philippe TOUTAIN, Bruno MILLE, Romain GUILLOT et les frères Romain & Nathan MORIN. Je salue votre professionnalisme, votre sympathie, votre flexibilité et votre réactivité, qui confère au CORIA une plus-value, sans doute jalousée par d'autres laboratoires.

Je remercie les membres et ex-membres de l'équipe suie du CORIA : le Professeur Jérôme YON, Maxime BOUVIER, José MORÁN, Guillaume LEFÈVRE, dont les conseils m'ont été d'une aide précieuse.

Je tiens à remercier également les Professeurs Bruno RENOU et Alexis COPPALLE, qui m'ont offert l'opportunité de décrocher mon stage de fin d'études au CORIA en 2017. Ce stage, m'a permis de découvrir le milieu de la Recherche, et fut un tournant décisif pour mon orientation professionnelle en m'engageant dans ma thèse par la suite.

J'adresse mes pensées les plus chaleureuses aux autres doctorants et ex-doctorants de l'équipe combustion expérimentale (et associés) : Sylvain PETIT, Maxim KUVSHINOV, Émilie YHUEL, Sylvain LEGROS, Antoine BLAISE, Marie-Ève CLAVEL, Clément VICTOR, Clément PATAT, Victor COQUIN, Mostafa ALDANAWI, et Clément BRUNET. Je pense également aux permanents, non mentionnés jusqu'ici, de l'équipe combustion et de l'administration du CORIA : Pradip XAVIER, Benoît BARVIAU, Martine TALBAUT, Florence FRADET et Valérie LEQUESNE, et ceux que j'oublierai de citer. Je terminerai cette liste par Ambre DESSAUX et Alvyna LENFANT, avec lesquelles je me suis lié d'amitié et j'ai vécu des moments riches en émotions.

Mes derniers remerciements seront consacrés à ma famille, sans laquelle je ne serais pas devenu celui que je suis aujourd'hui. Merci à tous pour tout le soutien apporté au cours de ces trois années de thèse.

Table des matières

Résumé **i**

Abstract **ii**

Remerciements **iii**

Liste des figures **xi**

Liste des tableaux **xiii**

1 Introduction **1**
1.1 Les émissions anthropiques, un enjeu du XIXè siècle 1
1.2 Vers une aéronautique plus durable 3
1.3 Objectifs et structure du manuscrit 5
1.4 Références 6

2 Etat de l'art **9**
2.1 Description d'une particule de suie 9
2.1.1 Formation des particules de suie 10
2.1.2 Caractérisation d'un agrégat de suie 13
2.2 Techniques d'analyse de suie : méthodes par prélèvement 14
2.2.1 Problématiques de prélèvement et de transport d'aérosols 14
2.2.2 Spectromètre de Mobilité Électrique (SMPS) 18
2.3 Diagnostics laser avancés dédiés à la métrologie des particules de suie 20
2.3.1 Principes fondamentaux de l'interaction lumière/particule 20
2.3.2 Mesure par extinction 27
2.3.3 Incandescence Induite par Laser (LII) 27
2.3.4 Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière 31
2.4 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Fluorescence Induite par laser Planaire (PLIF) 33
2.4.1 Fondamentaux de spectroscopie 33
2.4.2 Introduction à la Fluorescence Induite par Laser 35
2.4.3 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le radical hydroxyle (OH) . . . 39
2.4.4 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le kérosène et les Hydrocarbures Aromatiques Polycyliques (HAP) 40
2.4.5 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le monoxyde d'azote (NO) . . . 42
2.5 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV) 44
2.6 Références 47

3 Moyen d'essais et dispositifs expérimentaux **53**
3.1 Salle d'essai . . . 53
3.2 Banc de combustion haute pression HERON . . . 54
3.2.1 Alimentation en air et en carburant . . . 55
3.2.2 Description détaillée . . . 55
3.3 Brûleur SIRIUS . . . 57
3.3.1 Alimentation en air et en carburant . . . 58
3.3.2 Description du brûleur . . . 58
3.4 Références . . . 60

4 Adaptation du banc de combustion haute pression HERON **61**
4.1 Module de post-combustion . . . 61
4.2 Sonde de prélèvement de suie . . . 62
4.2.1 État de l'art sur le prélèvement de particules dans les flammes . . . 62
4.2.2 Méthodologie de prélèvement haute pression . . . 63
4.2.3 Design final . . . 64
4.2.4 Qualification du dispositif de prélèvement . . . 65
4.3 Références . . . 66

5 Étude comparative de mesure de taille et de concentration de particules de suie par prélèvement et par diffusion angulaire sur une flamme turbulente à pression atmosphérique **69**
5.1 Mesures de taille de suie par prélèvement et analyse SMPS . . . 70
5.1.1 Brûleur . . . 70
5.1.2 Dispositif expérimental . . . 71
5.1.3 Résultats et discussion . . . 76
5.2 Évaluation de tailles et de concentrations de suie par technique de diffusion angulaire 78
5.2.1 Dispositif expérimental . . . 78
5.2.2 Méthodologie d'évaluation des tailles et concentrations en particules . . . 79
5.2.3 Résultats . . . 81
5.3 Comparaison entre mesures in- et ex-situ . . . 83
5.3.1 Conversion de diamètre de mobilité vers diamètre de giration . . . 83
5.3.2 Traitement statistique . . . 86
5.3.3 Résultats et discussions . . . 87
5.4 Conclusion . . . 90
5.5 Références . . . 90

6 Campagne de mesures couplées de PLIF-OH, PLIF-HAP, LII et PIV basse cadence sur une flamme prémélangée, swirlée et stratifiée à pression variable **93**
6.1 Dispositif expérimental . . . 94
6.1.1 Brûleur . . . 94
6.1.2 Montage optique . . . 94
6.1.3 Lasers et chemins optiques . . . 95
6.2 Résultats et discussions . . . 97
6.2.1 Pression atmosphérique . . . 97
6.2.2 Pression élevée . . . 103
6.2.3 Scénario de formation de particules de suie . . . 111
6.3 Conclusions globales . . . 113
6.4 Références . . . 113

7 Caractérisation de systèmes d'injection aéronautiques de type RQL 115
7.1 Présentation du programme d'essais . . . 116
7.2 Dispositifs expérimentaux . . . 118
7.2.1 Chaînes de prélèvement de gaz et de suie . . . 118
7.2.2 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et PLIF-NO couplées . . . 123
7.2.3 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et LII couplées . . . 126
7.2.4 PIV haute cadence . . . 128
7.3 Correction des signaux de fluorescence . . . 130
7.3.1 Distorsion . . . 131
7.3.2 Signal parasite d'arrière-plan . . . 131
7.3.3 Signaux de PLIF parasites . . . 132
7.3.4 Inhomogénéité de nappe laser . . . 133
7.3.5 Variation d'énergie laser tir à tir . . . 134
7.4 Quantification des signaux de fluorescence et d'incandescence . . . 135
7.4.1 PLIF-NO . . . 135
7.4.2 LII . . . 136
7.5 Résultats globaux . . . 138
7.5.1 Polluants gazeux prélevés en sortie de chambre de combustion . . . 138
7.5.2 Particules de suie prélevées depuis la chambre de combustion . . . 142
7.6 Résultats : point de référence . . . 145
7.6.1 Aérodynamique de flamme . . . 145
7.6.2 Distribution spatiale de kérosène . . . 145
7.6.3 Structure de flamme . . . 146
7.6.4 Distribution spatiale de monoxyde d'azote . . . 148
7.6.5 Distribution spatiale de particules de suie . . . 150
7.7 Résultats : effet du système d'injection . . . 151
7.8 Résultats : effet de la richesse injectée . . . 158
7.9 Comparaison LII/prélèvement . . . 164
7.10 Conclusions globales . . . 165
7.11 Références . . . 166

Conclusions et perspectives 171

Liste des figures

1.1 Schéma d'une chambre de combustion RQL (RR Trent XWB) [23] 4
1.2 Principe de la combustion RQL [18] 5

2.1 Visualisation d'une particule de suie issue d'une combustion diesel/air prise au microscope à transmission électronique 10
2.2 Mécanisme simplifié de formation des suies 10
2.3 Prelevement isocinetique 15
2.4 Schéma de principe d'un DMA 19
2.5 Géométrie du modèle de diffusion d'une particule 23
2.6 Processus thermochimiques affectant la température d'une particule lors d'une mesure de signal LII 29
2.7 Modèle à deux niveaux d'énergie représentant les processus non-radiatifs (flèches droites) et radiatifs (flèches ondulées) 37
2.8 Spectres de fluorescence normalisés du kérosène pour les longueurs d'onde d'excitation 248, 266, 282 et 308 nm 40
2.9 Effet de la température la fluorescence du kérosène 41
2.10 Évolution de la fluorescence du NO en température pour les transitions $Q_1(14.5)$, $Q_1(21.5)$ et $Q_1(29.5)$ 44
2.11 Signaux de fluorescence normalisés du kérosène et du NO, pour une excitation à 225.12 nm 45
2.12 Schéma de principe d'une mesure PIV 46
2.13 Exemple d'évaluation de champ de vitesse par algorithme de cross-corrélation . . . 47

3.1 Agencement du Centre de Combustion Avancée pour l'Aéronautique du Futur . . . 54
3.2 Vue aérienne des infrastructures alimentant le banc de combustion HERON 55
3.3 Banc de combustion HERON 56
3.4 Description du brûleur SIRIUS 59
3.5 Déclinaisons du brûleur SIRIUS 59

4.1 Schéma du dispositif de prélèvement de suie sur le banc de combustion HERON . . 64
4.2 Sonde de prélèvement HERON 65
4.3 Qualification de la sonde de prélèvement HERON 66

5.1 Emission naturelle des points de fonctionnement P1, P2 et P3 71
5.2 Dispositif de prélèvement de suie sur le brûleur SIRIUS 72
5.3 Détermination du débit d'azote avant agrégation des particules 73
5.4 Étalonnage du dispositif de prélèvement sur SIRIUS (1) 76
5.5 Étalonnage du dispositif de prélèvement sur SIRIUS (2) 76
5.6 Distributions spatiales de diamètres moyen géométriques et de concentration en particules mesurées par SMPS 77

5.7 Dispositif expérimental pour la mesure de taille et de concentration de particules de suie par diffusion angulaire . . . 79
5.8 Détermination du diamètre moyen géométrique par méthode numérique . . . 80
5.9 Distributions instantanées de diamètres de giration mesurées par diffusion angulaire sur la flamme P1 . . . 82
5.10 Modèle de préfacteur fractal appliqué à la conversion $D_m \rightarrow D_g$ . . . 84
5.11 Application du modèle de conversion de Yon et al. (2015) sur une distribution SMPS 85
5.12 Comparaisons finales de mesures optiques et par prélèvement sur la flamme P1 . . 88
5.13 Comparaisons finales de mesures optiques et par prélèvement sur la flamme P2 . . 89

6.1 Emission naturelle de la flamme SIRIUS observée à 1, 2, 3 et 4 bar . . . 94
6.2 Dispositif expérimental utilisé pour les mesures couplées de PLIF/PIV/LII sur le brûleur SIRIUS . . . 95
6.3 Distributions spatiales de PLIF-HAP/PLIF-OH/LII et lignes de courant sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique . . . 98
6.4 Exemple de signaux couplés de PLIF-OH/PLIF-HAP obtenus sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique . . . 100
6.5 Exemple de corrélation entre distribution spatiale de suie, taux de d'étirement S_{xy} et vitesse locale à pression atmosphérique . . . 101
6.6 Effet de la pression chambre sur l'aérodynamique de flamme . . . 105
6.7 Effet de la pression sur la production de suie, distributions instantanées . . . 106
6.8 Effet de la pression sur la production de suie, distributions moyennes . . . 107
6.9 Exemple de signaux couplés de PLIF-OH/PLIF-HAP/LII à 4 bar, associés aux lignes de courants obtenues par mesure PIV . . . 108
6.10 Exemple de signaux couplés de PLIF-OH/PLIF-HAP obtenus sur le brûleur SIRIUS à 4 bar . . . 111

7.1 Schéma du montage pour le prélèvement de gaz en sortie chambre et de particules de suie sur HERON . . . 116
7.2 Schéma du montage pour le prélèvement de gaz en sortie chambre et de particules de suie sur HERON . . . 120
7.3 Validation de la procédure de prélèvement à une pression chambre de 4,5 bar . . . 121
7.4 Validation de la procédure de prélèvement à une pression chambre de 6 bar . . . 122
7.5 Schéma du montage pour la mesure couplée de PLIF-OH/PLIF-NO/PLIF-kérosène 123
7.6 Schéma descriptif du laser OH . . . 124
7.7 Schéma descriptif du laser NO . . . 125
7.8 Schéma du montage pour la mesure couplée de PLIF-OH/PLIF-kérosène/LII . . . 127
7.9 Schéma simplifié du dispositif d'ensemencement utilisé sur le banc de combustion HERON . . . 129
7.10 Schéma du montage pour la mesure de PIV haute cadence . . . 130
7.11 Correction des signaux bruts (1/4) : distorsion . . . 131
7.12 Correction des signaux bruts (2/4) : élimination du signal parasite en arrière-plan . 132
7.13 Correction des signaux bruts (3/4) : élimination du signal de fluorescence parasite . 133
7.14 Correction des signaux bruts (4/4) : correction de l'inhomogénéité de la nappe laser 134
7.15 Étalonnage du signal de PLIF-NO . . . 136
7.16 Étalonnage du signal de LII . . . 137
7.17 Emissions de NO en sortie chambre - global . . . 139
7.18 Emissions de CO en sortie chambre - global . . . 139

7.19 Émissions de NO en sortie chambre en fonction de la pression chambre, la température d'injection d'air, la perte de charge à l'injection et la richesse du mélange injecté . . . 140
7.20 Emissions de CO en sortie chambre en fonction de la pression chambre, la température d'injection d'air, la perte de charge à l'injection et la richesse du mélange injecté . . . 141
7.21 Emissions de suie - global S05 . . . 143
7.22 Emissions de suie - global S10 . . . 143
7.23 Emissions de suie - global Dm . . . 144
7.24 Emissions de suie - global Nagg . . . 144
7.25 Résultats : champ aérodynamique . . . 145
7.26 Résultats : kérosène . . . 146
7.27 Résultats : topologie de flamme . . . 147
7.28 Résultats : NO . . . 148
7.29 Résultats : suie . . . 150
7.30 Résultats : Effet du système d'injection (aérodynamique de flamme) . . . 153
7.31 Résultats : Effet du régime du système d'injection (kérosène) . . . 154
7.32 Résultats : Effet du système d'injection (topologie de flamme) . . . 155
7.33 Résultats : Effet du système d'injection (NO) . . . 156
7.34 Résultats : Effet du système d'injection (suie) . . . 157
7.35 Résultats : Effet du régime de fonctionnement (PIV) . . . 159
7.36 Résultats : Effet du régime de fonctionnement (kérosène) . . . 160
7.37 Résultats : Effet du régime de fonctionnement (topologie de flamme) . . . 161
7.38 Résultats : Effet de la richesse (NO) . . . 162
7.39 Résultats : Effet de la richesse (suie) . . . 163
7.40 Résultats : Comparaison f_v obtenue par SMPS et LII . . . 164

Liste des tableaux

2.1 Exemple de techniques destinées à l'analyse de suie 14
2.2 Liste non exhaustive de schémas d'excitation de LIF-NO étudiés dans la littérature 43

3.1 Capacités opératoires du banc de combustion HERON 54

5.1 Campagne SIRIUS atmosphérique - Points de fonctionnements étudiés 70
5.2 Cahier des charges du système de prélèvement 73
5.3 Application du modèle de conversion de Yon et al. (2015) sur une distribution SMPS 85

7.1 Programme des essais réalisés sur les systèmes d'injection RQL 118
7.2 Matrice des points d'opération étudiés 118

Liste des abréviations

APLAREP	Augmentation du PLafond d'Allumage et Réduction des Emissions Particulaires
CORIA	COmplexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie
C-CAAF	Centre de Combustion pour l'Aéronautique du Futur
CPC	Condensation Particle Counter
DMA	Dilution Factor
DMA	Differential Mobility Analyser
FEDER	Fonds Europeen de Développement Régional
FPS	Fine Particle Sampler
GIEC	Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat
HACA	Hydrogen Abstraction & Carbon Addition
HAB	Height Above Burner
HAP	Hydrocarbures Polycycliques Aromatiques
HERON	High prEssuRe facility for aerO-eNgines combustion
ICAO	International Civil Aviation Organisation
IR	Infrarouge
IRZ	Inner Recirculation Zone
LII	Laser Induced Incandescence
lpm	Litres par minute
MET	Microscope Electronique à Transmission
Nd : YAG	Neodymium-doped Yttrium Aluminium Garnet
ONERA	Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales
ORZ	Outer Recirculation Zone
PIV	Particle Image Velocimetry
(P)LIF	(Planar) Laser Induced Incandescence
QuasiModo	Quasi-Continuous Burst-Mode Laser
RDG	théorie de Rayleigh-Debye-Gans
RDG-FA	Rayleigh-Debye-Gans theory for Fractal Aggregates
RQL	Rich-burn, Quick-mix, Lean-burn
SAE	Safran Aircraft Engines
SAF	Sustainable Aviation Fuel
SFR	Swirl Flow Ratio
SIRIUS	SwIrl stRatIfied bUrner for the study of Soot production
SOPRANO	Soot Processes and Radiation in Aeronautical inNovative combustors
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer

SR . . . . . Stratification Ratio
SwB . . . . . Cambridge-Sandia Swirl burner
UV . . . . . Ultraviolet

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1 Les émissions anthropiques, un enjeu du XIXè siècle 1
1.2 Vers une aéronautique plus durable 3
1.3 Objectifs et structure du manuscrit 5
1.4 Références 6

Depuis la Révolution Industrielle, le monde connaît une prospérité économique sans précédent dans l'Histoire, initiée par l'invention de la machine à vapeur par James Watt en 1769. Son principe de fonctionnement est simple : brûler un combustible, pour en extraire l'énergie thermique et la convertir en énergie mécanique. Grâce à ce procédé, l'Homme n'est désormais plus limité par ses propres capacités physiques. Par la suite, l'utilisation de moteurs thermiques s'est rapidement répandue dans de nombreux domaines. En agriculture, le remplacement de la traction animale par les tracteurs dope les rendements agricoles, permettant l'éradication de la famine dans de nombreuses régions du globe, et dans une plus large mesure le décuplement de la population humaine. Ainsi, la population mondiale passe en 1700 de 600 millions d'habitants à 6 milliards en 2000. Dans le domaine des transports, l'utilisation des machines confère à l'Homme le pouvoir de parcourir de grandes distances en un temps réduit. En 1835, la vitesse de 100 km/h est atteinte pour la première fois à bord d'un train reliant Liverpool à Manchester. En 1903, un avion permet aux frères Wright de vaincre la force de gravité et de prendre leur envol. En 1969, la fusée Saturn V permet à Neil Armstrong de poser le pied pour la première fois le pied sur la Lune. La réalisation de ces prouesses techniques n'aurait pu être possible sans l'existence de combustibles à fort pouvoir calorifique. Il s'agit principalement du charbon, du pétrole ou gaz naturel. Ceux-ci sont issus de la décomposition de matière organique, dont le processus de formation a duré plusieurs dizaines de millions d'années. À ce titre, ces carburants sont regroupés sous l'appellation « combustibles fossiles ». Malheureusement, l'utilisation massive de machines thermiques n'est pas sans poser de problèmes. Les combustibles fossiles, présents en quantité limitée sur Terre, sont consommés à trop grande vitesse pour être renouvelés naturellement. À terme, leurs ressources seront totalement épuisées. D'autre part, le rejet de millions de tonnes de gaz brûlés n'est pas sans effet sur le climat.

1.1 Les émissions anthropiques, un enjeu du XIXè siècle

La manifestation la plus visible de cette mutation climatique en cours est l'augmentation de la température moyenne à la surface du globe. Cette augmentation majoritairement causée par la modification de la composition chimique de l'atmosphère, en raison notamment de l'apport de gaz à effet de serre (GES) issu de la combustion des carburants fossiles. Découvert par Joseph Fourier en 1827 [1], le processus de l'effet de serre provient de la structure atomique des GES, qui permet à ces derniers d'absorber le rayonnement infrarouge provenant de la Terre. Les principaux GES émis par les émissions anthropiques sont le dioxyde de carbone CO_2, le méthane CH_4 et le protoxyde d'azote N_2O. Parmi ces différents gaz, le premier contributeur au réchauffement climatique dû aux

activités humaines est le CO_2, principal produit des réactions de combustion d'hydrocarbures. Ainsi, la concentration en CO_2 dans l'atmosphère a bondi de 36% entre 1850 et 2005, passant de 285 ppm à 380 ppm [2]. D'après le Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat (GIEC), le réchauffement dû aux activités humaines s'est établi à 1°C par rapport aux niveaux préindustriels en 2017 [3], et continue de s'accroître. On estime qu'au rythme actuel, l'élévation des températures devrait atteindre 1,5°C aux alentours de 2040. Dans son sixième rapport, le GIEC prévoit [4] que la hausse de 2°C de la température aura des répercussions néfastes pour la biodiversité et *in fine* pour l'Homme, parmi lesquelles :

- Une intensification des sécheresses, conduisant à une plus grande insécurité alimentaire et entraînant des vagues de famines.
- Une hausse du niveau des océans, causée par la fonte des glaciers. La disparition de 5 îles Salomon dans le Pacifique [5] constitue le premier cas avéré de submersion causée par le changement climatique.
- La fonte du pergélisol, conduisant à de fortes libérations de méthane, dont l'impact sur l'effet de serre est 25 fois supérieur à celui du CO_2. Par ailleurs, la fonte du pergélisol présente un risque biologique très élevé. La libération de virus et bactéries, enfouies dans le sol pendant des millénaires, et auxquels l'Homme moderne n'a jamais été exposé, pourrait entrainer de nouvelles pandémies [6].
- Des phénomènes météorologiques extrêmes (canicules, cyclones, inondations, feux de forêt, etc.) plus violents et plus fréquents.
- Les effets conjugués du réchauffement climatique global conduiront à l'apparition de mouvements de population sur la surface du globe, avec un risque de futurs conflits sur fond de changement climatique.

Pour limiter la hausse des températures, plusieurs initiatives ont été mises en œuvre pour tenter de limiter les émissions de GES. L'une des plus connues est le protocole de Kyoto, qui rassemblait à l'époque 184 pays. Celui-ci stipule que les pays signataires les plus industrialisés (au nombre de 36) doivent réduire leurs émissions de six gaz à effet de serre de 5% durant la période 2008-2012 par rapport à 1990. Le protocole de Kyoto est adopté en 1997 et entre en vigueur en 2005. Bien que les 36 pays industrialisés aient diminué leurs émissions de GES, le protocole de Kyoto affiche un bilan en demi-teinte, puisque les émissions globales de GES ont augmenté de 32% entre 1990 et 2010 [7]. En 2015, celui-ci est ensuite complété par l'Accord de Paris sur le Climat, qui ne fait plus de différence entre pays industrialisé et pays en développement. Ratifié par 193 pays, ce traité vise à contenir l'augmentation de la température moyenne mondiale en dessous de 2°C par rapport aux niveaux préindustriels, et si possible 1,5°C. Pour concrétiser cet objectif de température à long terme, les pays signataires s'engagent à atteindre la neutralité carbone d'ici le milieu du siècle.

Le CO_2 ne constitue pas l'unique gaz rejeté par les machines thermiques. Les processus de combustion imparfaits génèrent également des sous-produits appelés polluants. Ces espèces chimiques ont un effet délétère sur l'environnement et la santé humaine. Parmi ces produits, le monoxyde et le dioxyde d'azote, habituellement regroupés sous le terme NOx, font l'objet d'une attention particulière. Les NOx sont connus pour leur rôle de précurseur dans la formation d'ozone troposphérique O_3, un polluant toxique pour l'Homme et un gaz à effet de serre [8]. Au-delà de son effet sur le changement climatique, les émissions de NOx représentent également un enjeu de santé publique. L'exposition aux NOx entraîne l'irritation des yeux et des voies respiratoires. À forte concentration, le dioxyde d'azote NO_2 est même mortel pour l'Homme : son inhalation donne une réaction

instantanée avec l'eau de la muqueuse interne des poumons, conduisant à la production d'acide nitrique [9]. Une étude du journal *Nature* [10] estime que le dépassement des normes automobiles en matière de d'émissions de NOx a provoqué 38 000 morts prématurés en 2015 dans le monde.

Outre les rejets de gaz nocifs pour l'environnement, les processus de combustion libèrent également des microparticules solides aussi appelées particules de suie. Leur taille peut varier de quelques dizaines de nanomètres à quelques micromètres. La suie est considérée comme le deuxième contributeur au changement climatique après le CO_2 [11]. Les particules de suie agissent notamment sur la formation de nuages en jouant le rôle de noyau de condensation nécessaire à la formation de cristaux de glace [12]. Burkhardt et al. [13] estime que 10% de la couverture nuageuse en Europe provient de ce phénomène, et que ce dernier augmenterait le forçage radiatif jusqu'à 0,3 W/m^2. Récemment, une équipe a simulé l'effet des particules de suie sur le climat, dans une atmosphère où la concentration de CO_2 serait doublée par rapport à l'ère préindustrielle [14]. Elle prévoit que la formation de cirrus à très haute altitude, facilitée par les émissions de particules anthropologiques, renforcerait la hausse de la température moyenne du globe de 0,4 à 0,5 K. En plus de leur effet sur le climat, les particules de suie ont également un impact significatif sur la santé humaine. De par leur taille, les particules de suie ont la capacité de pénétrer les voies respiratoires, provoquant une augmentation des risques de maladies cardiovasculaires et de cancers des poumons. Les nanoparticules sont les plus dangereuses, puisqu'elles peuvent même se retrouver dans le sang en ayant franchi les membranes pulmonaires. D'autre part, la suie est composée de molécules d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), connues pour leurs propriétés cancérigènes [15].

1.2 Vers une aéronautique plus durable

En vue de parvenir aux objectifs fixés par l'Accord de Paris sur le Climat, chaque secteur économique doit participer aux efforts de réduction de GES. Le transport est un contributeur majeur d'émissions de gaz à effet de serre. En 2020, la part des transports est évaluée à 16% du total mondial des émissions de CO_2 [16], dont 1,9% provient du secteur aérien. Bien qu'il s'agisse d'une faible proportion, une étude de 2020 [17] estime que seule 1% de la population mondiale est à l'origine de 50% des émissions de CO_2 aéronautiques. À ce titre, le secteur de l'aviation souffre d'une mauvaise image, considérée comme l'archétype de l'industrie polluante. Pour autant, le secteur aéronautique connaît une croissance constante. Malgré la pandémie mondiale de Covid-19 qui a considérablement freiné les échanges internationaux depuis 2020, l'organisme Eurocontrol prévoit un triplement du trafic aérien en Europe d'ici 2050 [18]. Pour faire face aux enjeux climatiques et à l'augmentation du trafic, et sur les conseils du Conseil Consultatif pour la Recherche Aéronautique en Europe (ACARE), la Commission Européenne affiche des objectifs ambitieux de réduction des émissions aéronautiques [19], à travers la mise en place de règlementations de plus en plus strictes. Les objectifs Flightpath visent une réduction des émissions de CO_2 de 75% et de 90% NOx l'horizon 2050.

Pour répondre à ce défi du XXI^{è} siècle, les motoristes aéronautiques doivent développer des architectures moteur toujours plus innovantes, capables de réduire les émissions de polluants et la consommation de carburant. Depuis plusieurs années, de nouvelles architectures de combustion bas-NOx ont été développées par l'industriel Safran Aircraft Engines (SAE), acteur français du secteur. Les niveaux d'émission de NOx dans un turboréacteur sont principalement pilotés par la formation de NO dit "thermique". Le mécanisme de NO thermique résulte de l'oxydation de l'azote de l'air dans les zones de la chambre de combustion où les températures sont les plus élevées. Le maintien de températures modérées au sein de la chambre de combustion est donc l'une des conditions-clés d'une combustion faiblement émettrice de NOx, excluant de fait les mélanges carburant/air stœchiométriques. Basées sur ce principe, diverses stratégies de systèmes d'injection

de carburant ont vu le jour. Une revue des principales technologies de combustion aéronautique est proposée dans [20]. Beaucoup d'entre-elles s'appuient sur le concept de combustion pauvre, où la consommation de carburant est réalisée avec un excès d'air. D'un point de vue environnemental, ces stratégies sont prometteuses : la richesse du mélange injecté confère à la flamme une faible température, réduisant significativement les émissions de NOx, mais aussi d'espèces imbrûlées et de suie. En contrepartie, la combustion pauvre présente une stabilité de flamme moins robuste, avec un risque plus élevé d'extinction à des régimes de fonctionnement partiels, et de génération d'instabilités de combustion dues à des interactions flamme/acoustique [21].

La technologie RQL, de l'anglais *Rich-Burn, Quick-Mix, Lean-Burn*, est une solution qui répond aux problématiques d'extinction de flamme en vol. Il s'agit d'une stratégie de combustion étagée développée dans les années 1980 [22] pour réduire les émissions de NOx sur les systèmes propulsifs aéronautiques. Une chambre de combustion RQL se distingue par la présence de trois étages de combustion (figure 1.1). La combustion est initiée au sein du premier étage de combustion. Le mélange injecté est particulièrement riche. La flamme ainsi produite est très stable et de température modérée. Le taux de production de NOx est quasi inexistant dans cette zone, en raison de l'absence d'excès d'air. Cependant, le manque de dioxygène conduit également à la formation d'espèces imbrûlées (CO, HC..) et de particules de suie. En aval de la zone primaire, une quantité massive d'air est injectée. Cet apport d'air assure la combustion complète du carburant, et permet la transition d'une combustion riche vers une combustion pauvre. L'apport d'air conduit fatalement à l'apparition de zones où la richesse locale est proche de la stœchiométrie, condition favorable à la formation de NO thermique (figure 1.2). C'est pourquoi cet étage est conçu de manière à ce que le mélange de l'air et du carburant s'effectue le plus rapidement possible. En aval de cet étage, les imbrûlés formés dans la zone primaire de réaction sont oxydés. La forte dilution permet également d'homogénéiser le profil de température des gaz en sortie de la chambre de combustion.

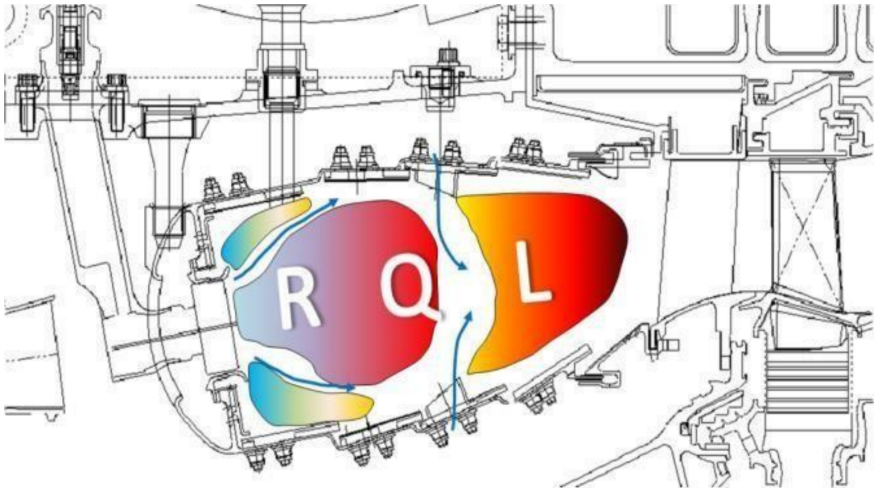

FIGURE 1.1 – Schéma d'une chambre de combustion RQL (RR Trent XWB) [23]

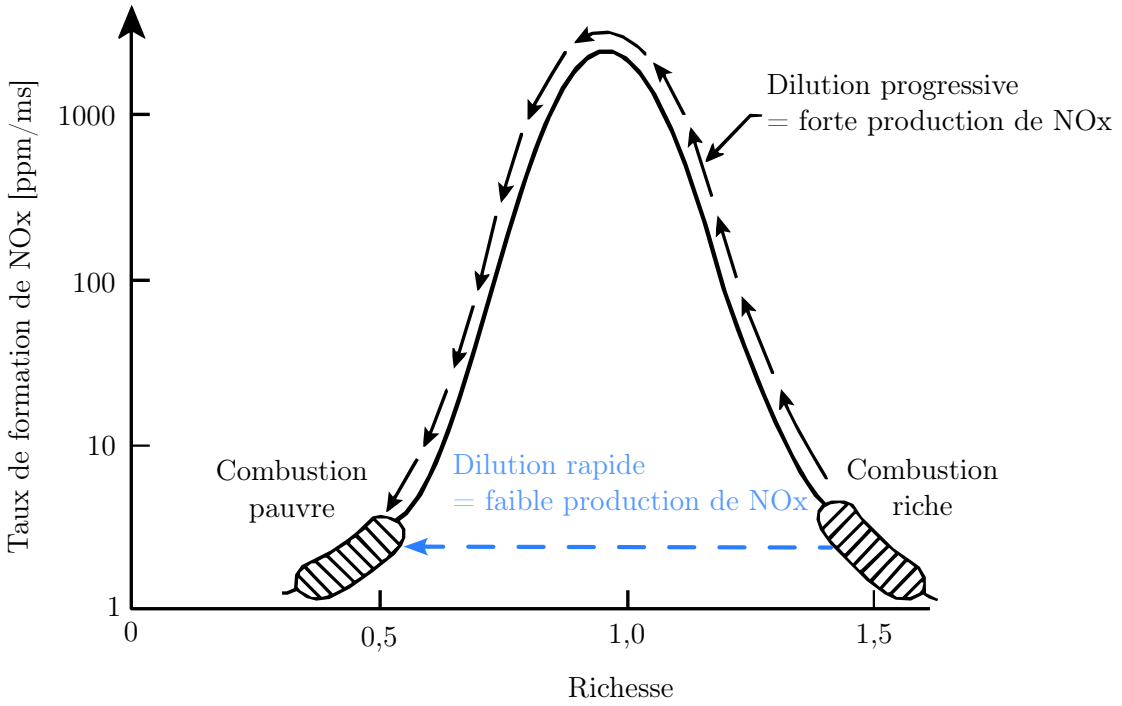

FIGURE 1.2 – Principe de la combustion RQL [18]

Le concept de combustion RQL se démarque par une excellente stabilité de flamme associée à un faible taux de production de NOx, ce qui en fait un candidat sérieux pour de futures applications aéronautiques. Néanmoins, il a été observé que les taux de production de particules de suie étaient plus élevés dans les chambres de combustion RQL, en comparaison avec d'autres stratégies de combustion faiblement émettrices de NOx. Cette technologie étant initialement développée par Pratt & Whitney, puis par Rolls-Royce, le motoriste Safran Aircraft Engines désire à son tour explorer le potentiel de la combustion RQL

1.3 Objectifs et structure du manuscrit

L'objectif de la présente thèse consiste en une étude expérimentale des mécanismes de formation des polluants gazeux et particulaires, sur plusieurs systèmes d'injection aéronautiques RQL fournis par Safran Aircraft Engines. L'étude est réalisée sur l'étage primaire de réaction, zone-clé de la production de suie dans une chambre de combustion RQL. Les essais sont réalisés au sein du laboratoire français CORIA, sur le banc de combustion aéronautique haute-pression HERON, capable de reproduire les conditions de pression et de température d'une chambre de combustion aéronautique. Le comportement du système d'injection RQL est étudié au moyen de multiples diagnostics laser avancés. Parmi les mesures effectuées, la quantification des émissions de NOx, l'analyse de la structure de flamme et de l'injection de carburant, est réalisée par la technique optique de Fluorescence Induite par Laser Planaire (PLIF). La distribution spatiale de fraction volumique de suie est mesurée par la technique d'Incandescence Induite par Laser (LII). En complément de cette technique optique, la distribution en taille des particules de suie est obtenue par prélèvement et analysée au spectromètre de mobilité électrique (SMPS). Le prélèvement des particules est réalisé au moyen d'une sonde spécialement conçue pour ce projet, laquelle est capable d'extraire des gaz de combustion au cœur même de la chambre de combustion.

Cet ouvrage synthétise les travaux réalisés pendant cette thèse. Il s'articule en sept chapitres.

Une présentation bibliographique sur les particules de suie, leur formation et les techniques permettant leur caractérisation est d'abord proposée dans le chapitre 2. Le chapitre 3 décrit les moyens expérimentaux développés et utilisés au cours de la thèse, à savoir le banc de combustion haute-pression HERON et le brûleur SIRIUS. Le banc de combustion HERON, sur lequel les systèmes d'injection RQL seront testés, a fait l'objet d'une modification technologique. Par ailleurs, une sonde de prélèvement a été conçue et fabriquée pour permettre l'analyse de particules de suie directement prélevées dans la chambre. Le développement de ces deux éléments-clés est présenté dans le chapitre 4. La méthodologie de prélèvement de suie est validée dans le chapitre 5, sur une flamme produite par le brûleur SIRIUS, où les résultats obtenus sont comparés avec des mesures de taille par diagnostic lasers effectuées précédemment. À la suite de cette étude, le brûleur SIRIUS a été modifié pour produire des flammes à pression élevée (1-5 bar). Une campagne de mesures avec plusieurs diagnostics optiques couplés est réalisée sur le brûleur SIRIUS. L'intérêt de ce travail présenté dans le chapitre 6 est double : acquérir de l'expérience pour préparer les futurs essais couplés sur le banc de combustion HERON, et mieux comprendre les mécanismes de formation de suie sur une flamme à haute pression swirlée et stratifiée. Enfin, le dernier chapitre est consacré à l'analyse même des émissions de suie au travers de plusieurs systèmes d'injection RQL fournis par l'industriel SAE.

Outre une meilleure compréhension des mécanismes de formation de suie opérant sur leurs prototypes, la base de données expérimentales obtenue permettra à terme à SAE de développer et valider les modèles de suie qui seront intégrés dans leurs codes de simulation. Dans une plus large mesure, les résultats obtenus permettront d'établir de premières règles de conception des systèmes d'injection RQL qui équiperont les futurs moteurs aéronautiques..

1.4 Références

[1] Jean Baptiste Joseph Fourier. « Mémoire sur les températures du globe terrestre et des espaces planétaires ». In : *Oeuvres de Fourier : Publiées par les soins de Gaston Darboux.* Sous la dir. de Jean GastonEditor Darboux. T. 2. Cambridge Library Collection Mathematics. Cambridge University Press, 2013, p. 95-126. doi : 10.1017/CBO9781139568159.005.

[2] Ting Wei, Shili Yang, John C. Moore, Peijun Shi, Xuefeng Cui, Qingyun Duan, Bing Xu, Yongjiu Dai, Wenping Yuan, Xin Wei, Zhipeng Yang, Tijian Wen, Fei Teng, Yun Gao, Jieming Chou, Xiaodong Yan, Zhigang Wei, Yan Guo, Yundi Jiang, Xuejie Gao, Kaicun Wang, Xiaogu Zheng, Fumin Ren, Shihua Lv, Yongqiang Yu, Bin Liu, Yong Luo, Weijing Li, Duoying Ji, Jinming Feng, Qizhong Wu, Huaqiong Cheng, Jiankun He, Congbin Fu, Duzheng Ye, Guanhua Xu et Wenjie Dong. « Developed and developing world responsibilities for historical climate change and CO2 mitigation ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109.32 (juill. 2012), p. 12911-12915. doi : https://doi.org/10.1073/pnas.1203282109.

[3] V. Masson-Delmotte, P. Zhai, H. O. Pörtner, D. Roberts, J. Skea, P.R. Shukla, A. Pirani, W. Moufouma-Okia, C. Péan, R. Pidcock, S. Connors, J. B. R. Matthews, Y. Chen, X. Zhou, M. I. Gomis, E. Lonnoy, T. Maycock, M. Tignor et T. Waterfield. *GIEC, 2018 : Résumé à l'intention des décideurs, réchauffement planétaire de 1,5°C.* Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat, 2019, p. 32. url : https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03336102.

[4] P.A. Arias, N. Bellouin, E. Coppola, R.G. Jones, G. Krinner, J. Marotzke, V. Naik, M.D. Palmer, G.-K. Plattner, J. Rogelj, M. Rojas, J. Sillmann, T. Storelvmo, P.W. Thorne, B. Trewin, K. Achuta Rao, B. Adhikary, R.P. Allan, K. Armour,

G. Bala, R. Barimalala, S. Berger, J.G. Canadell, C. Cassou, A. Cherchi, W. Collins, W.D. Collins, S.L. Connors, S. Corti, F. Cruz, F.J. Dentener, C. Dereczynski, A. Di Luca, A. Diongue Niang, F.J. Doblas-Reyes, A. Dosio, H. Douville, F. Engelbrecht, V. Eyring, E. Fischer, P. Forster, B. Fox-Kemper, J.S. Fuglestvedt, J.C. Fyfe, N.P. Gillett, L. Goldfarb, I. Gorodetskaya, J.M. Gutierrez, R. Hamdi, E. Hawkins, H.T. Hewitt, P. Hope, A.S. Islam, C. Jones, D.S. Kaufman, R.E. Kopp, Y. Kosaka, J. Kossin, S. Krakovska, J.-Y. Lee, J. Li, T. Mauritsen, T.K. Maycock, M. Meinshausen, S.-K. Min, P.M.S. Monteiro, T. Ngo-Duc, F. Otto, I. Pinto, A. Pirani, K. Raghavan, R. Ranasinghe, A.C. Ruane, L. Ruiz, J.-B. Sallée, B.H. Samset, S. Sathyendranath, S.I. Seneviratne, A.A. Sörensson, S. Szopa, I. Takayabu, A.-M. Tréguier, B. van den Hurk, R. Vautard, K. von Schuckmann, S. Zaehle, X. Zhang et K. Zickfeld. « Technical Summary ». In : *Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Sous la dir. de V. Masson-Delmotte, P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu et B. Zhou. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press, 2021, p. 33-144. DOI : 10.1017/9781009157896.002.

[5] Simon Albert, Javier X Leon, Alistair R Grinham, John A Church, Badin R Gibbes et Colin D Woodroffe. « Interactions between sea-level rise and wave exposure on reef island dynamics in the Solomon Islands ». In : *Environmental Research Letters* 11.5 (mai 2016), p. 054011. DOI : 10.1088/1748-9326/11/5/054011. URL : https://dx.doi.org/10.1088/1748-9326/11/5/054011.

[6] Kimberley R. Miner, Juliana D'Andrilli, Rachel Mackelprang, Arwyn Edwards, Michael J. Malaska, Mark P. Waldrop et Charles E. Miller. « Emergent biogeochemical risks from Arctic permafrost degradation ». In : *Nature Climate Change* 11.10 (sept. 2021), p. 809-819. DOI : https://doi.org/10.1038/s41558-021-01162-y.

[7] United Nations Environment Programme (UNEP). *The Emissions Gap Report 2012*. Nairobi, 2012.

[8] Gerhard Lammel et Hartmut Grassl. « Greenhouse effect of NOX ». In : *Environmental Science and Pollution Research* 2.1 (juill. 1995), p. 40-45. DOI : 10.1007/BF02987512.

[9] B Gaston, J M Drazen, J Loscalzo et J S Stamler. « The biology of nitrogen oxides in the airways. » In : *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* 149.2 (fév. 1994), p. 538-551. DOI : 10.1164/ajrccm.149.2.7508323.

[10] Susan C. Anenberg, Joshua Miller, Ray Minjares, Li Du, Daven K. Henze, Forrest Lacey, Christopher S. Malley, Lisa Emberson, Vicente Franco, Zbigniew Klimont et Chris Heyes. « Impacts and mitigation of excess diesel-related NOx emissions in 11 major vehicle markets ». In : *Nature* 545.7655 (mai 2017), p. 467-471. DOI : 10.1038/nature22086.

[11] Jeff Tollefson. « Soot a major contributor to climate change ». In : *Nature* (jan. 2013). DOI : https://doi.org/10.1038/nature.2013.12225.

[12] B. Kärcher, O. Möhler, P. J. DeMott, S. Pechtl et F. Yu. « Insights into the role of soot aerosols in cirrus cloud formation ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 7.16 (août 2007), p. 4203-4227. DOI : 10.5194/acp-7-4203-2007.

[13] Ulrike Burkhardt et Bernd Kärcher. « Global radiative forcing from contrail cirrus ». In : *Nature Climate Change* 1.1 (mars 2011), p. 54-58. DOI : https://doi.org/10.1038/nclimate1068.

[14] Ulrike Lohmann, Franz Friebel, Zamin A. Kanji, Fabian Mahrt, Amewu A. Mensah et David Neubauer. « Future warming exacerbated by aged-soot effect on cloud formation ». In : *Nature Geoscience* 13.10 (sept. 2020), p. 674-680. doi : https://doi.org/10.1038/s41561-020-0631-0.

[15] Hussein I. Abdel-Shafy et Mona S.M. Mansour. « A review on polycyclic aromatic hydrocarbons : Source, environmental impact, effect on human health and remediation ». In : *Egyptian Journal of Petroleum* 25.1 (mars 2016), p. 107-123. doi : https://doi.org/10.1016/j.ejpe.2015.03.011.

[16] Hannah Ritchie, Max Roser et Pablo Rosado. « CO2 and Greenhouse Gas Emissions ». In : *Our World in Data* (2020). https ://ourworldindata.org/co2-and-other-greenhouse-gas-emissions.

[17] Stefan Gössling et Andreas Humpe. « The global scale, distribution and growth of aviation : Implications for climate change ». In : *Global Environmental Change* 65 (nov. 2020), p. 102194. doi : https://doi.org/10.1016/j.gloenvcha.2020.102194.

[18] Arthur H. Lefebvre et Dilip R. Ballal. « Gas Turbine Combustion ». In : (avr. 2010). doi : https://doi.org/10.1201/9781420086058.

[19] Commission européenne, Direction générale de la mobilité et des transports et Direction générale de la recherche et de l'innovation. *Flightpath 2050 : Europe's vision for aviation : maintaining global leadership and serving society's needs*. Publications Office, 2012. doi : doi/10.2777/15458.

[20] Yize Liu, Xiaoxiao Sun, Vishal Sethi, Devaiah Nalianda, Yi-Guang Li et Lu Wang. « Review of modern low emissions combustion technologies for aero gas turbine engines ». In : *Progress in Aerospace Sciences* 94 (oct. 2017), p. 12-45. doi : https://doi.org/10.1016/j.paerosci.2017.08.001.

[21] Michel Cazalens, Sébastien Roux, Claude Sensiau et Thierry Poinsot. « Combustion Instability Problems Analysis for High-Pressure Jet Engine Cores ». In : *Journal of Propulsion and Power* 24.4 (juill. 2008), p. 770-778. doi : https://doi.org/10.2514/1.30938.

[22] S.A. Mosier et R.M. Pierce. « Advanced combustor systems for stationary gas turbine engines, phase I. Review and preliminary evaluation, vol I ». In : *U.S. Environmental Protection Agency* 1 (1980).

[23] Noureddine Guellouh, Zoltán Szamosi et Zoltán Siménfalvi. « Combustors with Low Emission Levels for Aero Gas Turbine Engines ». In : *International Journal of Engineering and Management Sciences* 4.1 (2019), p. 503-514. doi : 10.21791/IJEMS.2019.1.62..

Chapitre 2

Etat de l'art

Sommaire

2.1 Description d'une particule de suie . . . 9
2.1.1 Formation des particules de suie . . . 10
2.1.2 Caractérisation d'un agrégat de suie . . . 13
2.2 Techniques d'analyse de suie : méthodes par prélèvement . . . 14
2.2.1 Problématiques de prélèvement et de transport d'aérosols . . . 14
2.2.2 Spectromètre de Mobilité Électrique (SMPS) . . . 18
2.3 Diagnostics laser avancés dédiés à la métrologie des particules de suie . . . 20
2.3.1 Principes fondamentaux de l'interaction lumière/particule . . . 20
2.3.2 Mesure par extinction . . . 27
2.3.3 Incandescence Induite par Laser (LII) . . . 27
2.3.4 Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière . . . 31
2.4 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Fluorescence Induite par laser Planaire (PLIF) . . . 33
2.4.1 Fondamentaux de spectroscopie . . . 33
2.4.2 Introduction à la Fluorescence Induite par Laser . . . 35
2.4.3 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le radical hydroxyle (OH) . . . 39
2.4.4 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le kérosène et les Hydrocarbures Aromatiques Polycyliques (HAP) . . . 40
2.4.5 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le monoxyde d'azote (NO) . . . 42
2.5 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV) . . . 44
2.6 Références . . . 47

L'étude des mécanismes de formation des particules de suie dans le cadre de cette thèse passe par une revue exhaustive de la littérature scientifique. Ce chapitre regroupe les informations bibliographiques requises à la bonne compréhension du reste du mémoire de thèse. Celui-ci se subdivise en plusieurs sections. Une première partie est consacrée à la formation des particules de suie et à leur caractérisation physique. Un second volet s'intéresse aux techniques de mesure destinées à caractériser la taille et/ou la concentration des particules de suie, qui seront utilisées dans cette thèse. Enfin, dans la dernière section de ce chapitre sont évoqués les diagnostics optiques utilisés pour mesurer la distribution de polluants gazeux (NO), et pour caractériser l'aérodynamique de flamme.

2.1 Description d'une particule de suie

Une particule de suie se définit comme un objet microscopique, de quelques dizaines à centaines de nanomètres de large, et constitué de composés riches en carbone. Elle résulte de processus de

combustion incomplets, pouvant être d'origine naturelle (ex : feux de forêt) ou bien anthropique (ex : moteurs à combustion interne).

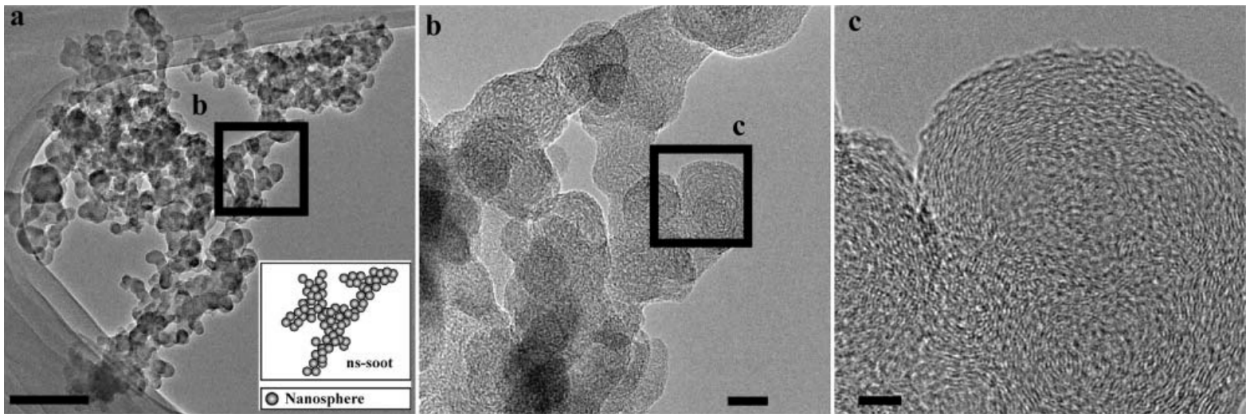

FIGURE 2.1 – Visualisation d'une particule de suie issue d'une combustion diesel/air prise au microscope à transmission électronique [1]

2.1.1 Formation des particules de suie

Le mécanisme de production des suies est un phénomène complexe et mal compris, qui fait l'objet de nombreuses recherches et de débats depuis maintenant plusieurs dizaines d'années. En effet, divers facteurs influencent la production des suies, entre-autres la pression et la température, la composition du carburant ou encore la richesse du mélange air/carburant. Par ailleurs, de nombreuses étapes intermédiaires régissent la formation d'une particule de suie, et l'observation d'une particule de suie ne donne que peu d'informations sur sa genèse et la manière dont la particule a évolué. Enfin, il a été montré que le processus de formation des suies n'était pas unique, celui-ci englobant une multitude de mécanismes élémentaires qui n'ont pas encore été entièrement identifiés. Néanmoins, un processus global de formation [2] des suies présenté ci-dessous est usuellement admis par la communauté scientifique. Celui-ci se subdivise en quatre étapes majoritaires pouvant être consécutives ou simultanées : la nucléation de particules de suies, la coagulation, les réactions de surface (croissance et oxydation) et l'agglomération (voir fig. 2.2).

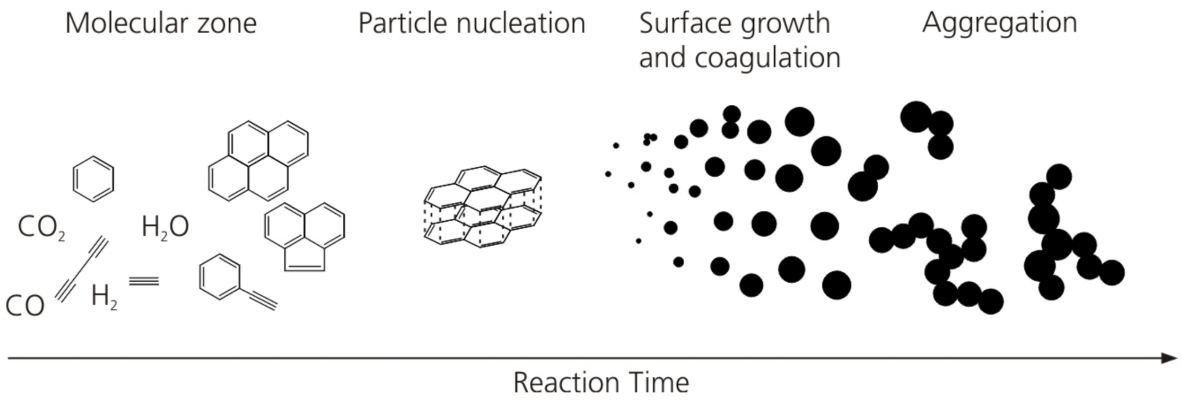

FIGURE 2.2 – Mécanisme simplifié de formation des suies [3]

Dans le cadre d'une combustion incomplète d'un hydrocarbure lourd, l'apport d'oxygène local

n'est parfois pas suffisant pour oxyder complètement le carburant. La pyrolyse des longues chaînes carbonées produit des radicaux ainsi que des chaines carbonées de petite taille. Par cyclisation, ces espèces réagissent entre-elles, créant des noyaux aromatiques unitaires (benzène et radicaux phényle). La structure de ces monoaromatiques unitaires tend naturellement à se lier à des groupes alkyles pour former des structures aromatiques plus larges, appelées Hydrocarbures Polycycliques (HAP). Les HAP font l'objet d'une préoccupation de par leurs propriétés cancérigènes et mutagènes, mais aussi en raison de leur rôle avéré de précurseurs dans la formation des suies. Par coagulation, croissance de surface (adsorption chimique de gaz) et agglomération, les HAP continuent de grossir, tout en passant d'une molécule gazeuse à une particule solide sphérique. Ce processus est appelé nucléation. Ces particules, aussi appelées sphérules ou particules primaires, continuent de grossir par coagulation, croissance de surface, jusqu'à atteindre plusieurs dizaines de nanomètres. Ces particules primaires s'agrègent alors entre-elles, générant des structures en chaine ramifiée (figure 2.1a.).

2.1.1.1 Formation des premiers noyaux aromatiques

L'apparition des premiers cycles aromatiques joue un rôle-clé dans la formation des particules de suie. La plupart des études mettent en évidence leur formation de molécules de benzène par réaction de cyclisation. Parmi les différents mécanismes proposés, Cole et al. [4] suggère en 1984 que la formation des premiers cycles aromatiques est initiée par l'addition d'acétylène C_2H_2 à C_4H_3 et C_4H_5.

$$\begin{aligned} C_4H_5 + C_2H_2 &\rightleftharpoons C_6H_6 + H \\ C_4H_3 + C_2H_2 &\rightleftharpoons C_6H_5 \end{aligned} \tag{2.1}$$

Cette voie réactionnelle est toutefois réfutée par Miller et Melius [5] en 1992, qui estiment que C_4H_3 et C_4H_5 sont trop instables pour être présents en concentration suffisamment importante et ainsi contribuer à la formation des premiers cycles aromatiques. Ces derniers proposent un deuxième mécanisme réactionnel, basé sur la recombinaison de deux radicaux propargyliques C_3H_3.

$$\begin{aligned} C_3H_3 + C_3H_3 &\rightleftharpoons C_6H_5 + H \\ C_3H_3 + C_3H_3 &\rightleftharpoons C_6H_6 \end{aligned} \tag{2.2}$$

Au fil des publications, la voie en (C_3+C_3) a été considérée comme la réaction majoritaire pour former le premier cycle aromatique. Néanmoins, selon la flamme considérée, les contributions relatives des différentes voies réactionnelles peuvent varier. Frenklach [6] observe ainsi que la dominance de (C_3+C_3) n'est plus avérée dans un milieu à pression élevée.

2.1.1.2 Formation des premiers HAP

Plusieurs voies réactionnelles ont été proposées pour décrire le passage des cycles benzéniques vers des aromatiques plus lourds. Le mécanisme le plus communément admis dans la communauté scientifique est le mécanisme HACA, contraction en anglais de *Hydrogen Abstraction & Carbon Addition*. Proposé par Frenklach et Wang [7], le mécanisme HACA consiste en deux réactions chimiques élémentaires :

- Le cycle aromatique d'une molécule A_i est tout d'abord activé par l'abstraction d'un de ses atomes d'hydrogène. La molécule A_i devient alors un radical moléculaire A_{i-} hautement réactif.

$$A_i + H \rightarrow A_{i-} + H_2 \tag{2.3}$$

- Une fois A_{i-} formé, deux réactions chimiques sont possibles. Le processus d'abstraction étant réversible, A_{i-} peut se désactiver simplement en réagissant avec un atome d'hydrogène pour reformer la molécule de départ A_i.

$$A_{i-} + H_2 \rightarrow A_i + H \tag{2.4}$$

  Le radicalaire peut également interagir avec d'une molécule d'acétylène C_2H_2 pour former d'autres produits :

$$A_{i-} + C_2H_2 \rightarrow \text{produits} \tag{2.5}$$

Des travaux on mis en exergue des mécanismes réactionnels supplémentaires responsables de la formation et de la croissance des HAP. Une revue complète des avancées expérimentales et par modélisation sur la formation des HAP est disponible [8].

2.1.1.3 Nucléation

La nucléation est un terme généralement utilisé pour décrire la transition de d'espèces l'état gazeux vers une particule solide dans la phase condensée. Malgré son rôle critique dans la formation des premières particules de suies, la nucléation est l'étape la moins comprise de la formation des particules de suie. Parmi les différents scénarii proposés, Frenklach et Wang [9] suggèrent en 1994 que les HAP croissent, jusqu'à atteindre une taille leur permettant de former un dimère au contact d'un autre HAP, puis un trimère, et ainsi de suite jusqu'à la genèse d'une particule solide. D'Anna [10] propose une autre voie de nucléation, dans laquelle les HAP se combinent pour former des structures tridimensionnelles liées par des chaînes aliphatiques, avec l'inclusion possible d'atomes d'oxygène.

2.1.1.4 Croissance des particules de suie

Une fois les particules fraîchement nucléées, celles-ci continuent de grossir pour former les particules de suie sous leur forme finale par divers processus physico-chimiques :

Réaction de surface Les réactions chimiques se produisant en surface des particules de suie sont principalement responsables de leur masse finale. Ces réactions chimiques mettent en jeu une espèce chimique gazeuse, principalement une molécule de C_2H_2, ou un HAP (stable ou radicalaire), avec un site disponible de la particule.

Coalescence les particules de suie évoluant dans la phase porteuse sont susceptibles d'entrer en collision les unes avec les autres. Cette collision peut aboutir à la « fusion » des particules pour former une nouvelle particule sphérique.

Agglomération En cas de collision entre deux particules, ces dernières peuvent également s'agglomérer pour former des structures non sphériques.

Agrégation De la même manière, des agglomérats de suie, pouvant contenir plusieurs centaines de particules primaires, peuvent se heurter et se fixer, formant des structures tridimensionnelles encore plus complexes appelées agrégats de suie.

2.1.1.5 Oxydation

L'oxydation est un mécanisme chimique de consommation des HAP et des particules de suie, qui vient freiner de fait la croissance de ces espèces. Les principaux acteurs responsables de l'oxydation sont le radical hydroxyle OH et le dioxygène O_2. Concernant les HAP, l'oxydation agit principalement sur la formation des premiers cycles benzéniques. Dans le cas où la croissance des HAP atteint un stade avancé, une production d'hydrogène apparaît par le biais du mécanisme HACA. Ces atomes d'hydrogène vont alors réagir avec le dioxygène O_2 présent dans la flamme. Le milieu devenant pauvre en hydrogène, la formation des premiers HAP par mécanisme HACA se retrouve ainsi stoppée. À l'instar des HAP, les particules de suie peuvent subir des réaction d'oxydation, principalement par le radical OH. Les espèces oxydantes réagissent avec le carbone présent aussi bien en surface qu'à l'intérieur des particules de suie, pour former des oxydes de carbone (CO et CO_2) [11]. Il a toutefois été observé que le dioxygène O_2 pouvait être impliqué dans l'oxydation des particules de suie, notamment dans les flammes pauvres et à température modérée [12, 13]. Dans la gamme de température 600-1100 K, le dioxygène diffuse à l'intérieur des particules et réagit en profondeur [14]. À haute température, ce sont les réactions de surface qui sont les plus prépondérantes. Le taux d'oxydation croît avec la température [15].

2.1.2 Caractérisation d'un agrégat de suie

Comme le montre la figure 2.2, les particules de suie issues d'un processus de combustion présentent généralement une forme aléatoire et trop complexe pour pouvoir être décrite par la géométrie euclidienne classique. Elles se distinguent néanmoins par une structure ramifiée, c'est pourquoi leur morphologie est généralement décrite par l'approche fractale. Introduite par Mandelbrot [16] en 1975, une fractale est un objet mathématique complexe dont la structure est invariante par changement d'échelle. La conséquence de cette invariance d'échelle est que la taille et la masse d'un objet fractal suivent une loi de puissance :

$$N = k_f \left(\frac{2R_g}{d_p} \right)^{D_f} \tag{2.6}$$

N est le nombre de particules primaires d'un agrégat, R_g le rayon de giration, d_p le diamètre moyen d'une particule primaire, k_f la constante fractale de proportionnalité, et D_f la dimension fractale, qui renseigne sur la compacité de l'agrégat dans l'espace. Le rayon de giration se calcule de la manière suivante :

$$R_g = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N} m_i r_i^2}{m_A}} \tag{2.7}$$

m_A la masse totale d'agrégat de suies et m_i est la masse du monomère i, dont le centre est à une distance r_i du centre de masse de l'agrégat.
Les études de toxicité des particules fines sur la santé humaine montrent que la dangerosité des agrégats dépend notamment de leur capacité à pénétrer les tissus pulmonaires. Or, la morphologie fractale des particules de suie pose naturellement la question de la définition de la *taille* d'une particule de suie. Pour pourvoir caractériser au mieux les dimensions des particules de suie à étudier, il est nécessaire d'avoir recours au concept de *diamètre équivalent*. Un diamètre équivalent désigne le diamètre de la sphère qui partage la même propriété physico-chimique que la particule en question. À titre d'exemple, le spectromètre de mobilité électrique, communément appelé SMPS, est un appareil d'analyse des particules de suie permettant d'obtenir la distribution en taille d'un

aérosol (voir section 2.2.2). Le SMPS exploite la notion du *diamètre de mobilité électrique*, défini comme :

$$D_m = n_p e \frac{C_c(D_m)}{3\pi\eta Z_e} \tag{2.8}$$

où Z_e représente la mobilité électrique de la particule, n_p le nombre de charges par particule, e la charge électrique élémentaire, η la viscosité cinématique du fluide porteur. $C_c(D_m)$ se réfère au facteur correctif de Cunningham [17] de la particule :

$$C_c(D_m) = 1 + \frac{2\lambda_m}{D_m}.\left(A_1 + A_2.\exp\left(-\frac{A_3 D_m}{\lambda_m}\right)\right) \tag{2.9}$$

λ_m le libre parcours moyen de la particule. Les coefficients A_1 à A_3 dépendent de la composition et des conditions thermodynamiques du fluide porteur. Selon la morphologie de l'agrégat, la valeur du diamètre de mobilité électrique D_m peut légèrement différer du diamètre de giration $D_g = 2R_g$ (eq. 2.7).

2.2 Techniques d'analyse de suie : méthodes par prélèvement

Il existe aujourd'hui un large éventail de techniques de mesure permettant d'étudier les propriétés des particules de suie. La plupart d'entre-elles requiert le prélèvement et le transport des particules vers l'appareil d'analyse. Ces techniques sont appelées techniques de mesure *par prélèvement* ou encore *ex-situ*. Plus récemment, des diagnostics optiques basés sur la diffusion de la lumière par les agrégats de suie ont été développés. On peut notamment citer la technique LII (*Laser Induced Incandescence*) ou encore la diffusion angulaire. Une liste non exaustive des différentes méthodes et techniques de mesure permettant de détailler les propriétés physiques des suies est présentée dans le tableau 2.1.

TABLE 2.1 – Exemple de techniques destinées à l'analyse de suie

Technique	Type de mesure	Propriété mesurée
CPC	Ex-situ	Nombre
SMPS	Ex-situ	Distribution en tailles
TEM	Ex-situ	Morphologie
Extinction	In-situ	Fraction de volume
LII	In-situ	Fraction de volume
Diffusion angulaire	In-situ	Distribution en tailles

2.2.1 Problématiques de prélèvement et de transport d'aérosols

L'étude des caractéristiques d'un aérosol au travers d'appareils adaptés nécessite généralement une attention portée à son prélèvement et son transport. En effet, divers mécanismes physico-chimiques sont susceptibles d'altérer le prélèvement. En d'autres termes, un prélèvement qui ne tient pas compte de ces phénomènes peut conduire à une modification substantielle de l'aérosol : l'échantillon analysé ne correspond alors plus à celui extrait de la flamme. Pour éviter ce biais de représentativité, il convient donc de tenir compte de tous les phénomènes susceptibles d'altérer le prélèvement. On évalue la qualité d'un prélèvement de particules par son rendement de prélèvement,

défini comme le rapport entre les concentrations en particules aspirées et piégées par le dispositif de prélèvement. Le rendement de prélèvement de la sonde dépend de plusieurs facteurs, notamment les caractéristiques géométriques de la sonde, l'écoulement se propageant à l'intérieur de celle-ci ou encore du milieu à analyser. On distingue deux types de pertes par prélèvement : les pertes à l'entrée de la sonde et les pertes par transport. Pour plus de renseignements, le lecteur pourra se référer au livre de Baron et Kulkarni [18], qui résume toutes les problématiques liées au prélèvement et au transport d'un aérosol.

Pertes à l'entrée

En vue d'assurer un prélèvement le plus représentatif possible, il est nécessaire de s'assurer que les vitesses de l'écoulement dans la sonde et dans le milieu à analyser soient le plus proches possibles. On parle alors d'écoulement isocinétique. Lorsque l'écoulement dans la sonde est supérieur à l'écoulement extérieur, le prélèvement est qualifié de super-isocinétique. Dans le cas contraire, il est appelé sub-isocinétique.

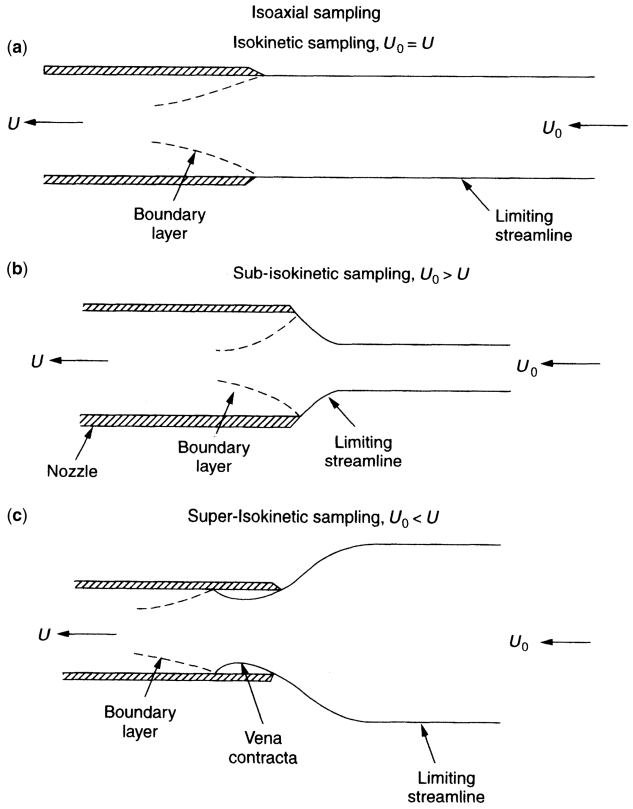

FIGURE 2.3 – Diagramme schématique d'un prélèvement isocinétique (a), super-isocinétique (b) et sub-isocinétique [18]

Le caractère isocinétique d'un prélèvement a une influence directe sur la qualité du prélèvement de l'aérosol. Les plus grosses particules sont celles dont l'inertie est la plus forte. Par conséquent, celles-ci sont moins susceptibles de suivre les lignes de courant si un brusque changement de direction s'opère. Dans le cas d'un prélèvement super-isocinétique, les lignes de courant extérieures à la sonde convergent vers le centre de la sonde de prélèvement. La trajectoire des plus grosses particules restant suffisamment rectiligne, celles-ci ne pénètrent pas à l'intérieur de la sonde et ne sont donc pas analysées. Ainsi, l'aérosol prélevé devient sous-représenté en grosses particules. Le rendement

de prélèvement isoaxial se détermine empiriquement de la manière suivante :

$$\eta_{\text{asp}} = 1 + \left[\frac{U_0}{U} - 1\right]\left[1 - \frac{1}{1 + k \,.\, St}\right] \tag{2.10}$$

avec

$$k = 2 + 0.617\left[\frac{U_0}{U}\right] \tag{2.11}$$

St le nombre de Stockes, défini comme étant le rapport entre le diamètre d d'une particule et son libre parcours moyen λ.

$$St = \frac{d}{2 \,.\, \lambda} \tag{2.12}$$

Cette équation est valide pour $0.18 \leq St \leq 0.17$ et $\dfrac{U_0}{U} \leq 5.6$.

Pertes par transport

Une fois l'aérosol extrait, celui-ci doit être amené vers l'instrument de mesure à utiliser ou éventuellement vers un volume de stockage. Généralement, la ligne de transport consiste en un assemblage d'éléments de tuyauterie tels que des tubes, des coudes ou encore des variations de section. Cette ligne de transport de particules doit être conçue de manière à minimiser les pertes de particules par dépôt. Une bonne manière de réduire ces pertes consiste à minimiser la longueur de la ligne de transport et le temps de résidence des particules au sein de celle-ci, et à limiter au maximum les éléments de tuyauterie. Les sources de pertes sont variées et proviennent en général de la configuration de la ligne de transport.

Pertes par gravitation

Sous l'effet de la pesanteur, les particules ont naturellement tendance à se déposer au fond des tubes lorsque la ligne de transport n'est pas verticale. Les particules les plus lourdes sont naturellement plus impactées par les pertes par gravitation. Le rendement de passage des particules assujetties à la gravitation s'exprime de la manière suivante :

$$\eta_{\text{tube, grav}} = \exp\left[\frac{-4Z cos\theta}{\pi}\right] = \exp\left[-\frac{dLV_{ts} cos\theta}{Q}\right] \tag{2.13}$$

Pertes par diffusion

Les particules les plus fines sont sujettes au mouvement brownien. Elles diffusent naturellement des zones de forte concentration aux zones à faible concentration. Or la concentration dans la zone proche paroi étant quasi nulle, la particule se retrouve naturellement attirée vers la paroi : elle diffuse et impacte la paroi, puis se dépose contre cette dernière. Le rendement de pertes par diffusion est défini comme :

$$\eta_{\text{tube,diff}} = \exp\left[-\xi Sh\right] \tag{2.14}$$

Avec Sh le nombre de Sherwood, et

$$\xi = \frac{\pi DL}{Q} \tag{2.15}$$

Le nombre de Sherwood est un nombre sans dimension utilisé pour caractériser les transferts de masse entre un fluide et une interface. Une formulation du nombre de Sherwood est proposée par Gormley et Kennedy [19] dans le cas d'un écoulement laminaire.

$$Sh = 3.66 + \frac{0.0668\frac{d}{L}ReSc}{1 + 0.04\left[\frac{d}{L}ReSc\right]^{2/3}} \tag{2.16}$$

Pour un écoulement turbulent, Friedlander [20] donne :

$$Sh = 0.0118Re^{7/8}Sc \tag{2.17}$$

Dans ces deux modèles, l'estimation du nombre de Sherwood fait intervenir le nombre de Schmidt. Ce coefficient sans dimension est le rapport de la viscosité cinématique et la diffusivité massique du fluide.

Pertes par changement de direction

Lors d'un brusque changement de direction, les particules les plus lourdes sont susceptibles de dévier de leur ligne de courant en raison de leur inertie. De manière générale, les déviations trop fortes (rayon de courbure inférieur à 4) sont à éviter de sorte qu'un maximum de particules passent à travers un coude. Un modèle de Pui [21] permet d'estimer le dépôt de particule issu d'un écoulement laminaire au passage d'un coude. Ce modèle est basé sur des données expérimentales obtenues sur des coudes de diamètre interne de 4 à 8,5 mm, un nombre de Reynolds de 1000 et des rayons de courbure de 5,6 et 5,7.

$$\eta_{\text{bend,inert, lam}} = \left[1 + \left[\frac{St}{0.171}\right]^{0.452\frac{St}{0.171}+2.242}\right]^{-2\frac{2}{\pi}\phi} \tag{2.18}$$

Pui et al proposent également une expression de $\eta_{\text{bend, inert}}$ dans le cas d'un écoulement turbulent et pour des nombres de Stockes faibles ($< 0,05$).

$$\eta_{\text{bend,inert, turb}} = \exp\left[-2.823St\,\phi\right] \tag{2.19}$$

Pour des nombres de Stockes faibles ($< 0,05$) et un écoulement laminaire, les pertes par impaction sont négligeables.

Pertes par contraction et élargissement

Les variations brusques de section doivent être évitées si possible, car elles sont à l'origine de pertes difficiles à caractériser théoriquement. Il existe néanmoins des modèles existants pour des géométries simples. Chen et Pui [22] ont développé un modèle permettant d'estimer les pertes maximales par dépôt inertiel dans le cas d'une contraction, pour des écoulements laminaires et turbulents

$$\eta_{\text{cont, inert, laminar min}} = 1 - \left[1 - \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2\right]^2 \tag{2.20}$$

$$\eta_{\text{cont, inert, turbulent min}} = \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2 \tag{2.21}$$

d_0 et d_i sont respectivement les diamètres en amont et en aval de la contraction. Un modèle plus récent de Muyshondt [23] a été obtenu suite à des mesures de particules réalisées en amont et en

aval d'une contraction.

$$\eta_{\text{cont, inert}} = 1 - \frac{1}{1 + \left[\frac{St\left(1 - \left(\frac{d_0}{d_i}\right)^2\right)}{3.14 \exp(-0.0185\,\theta_{cont})} \right]^{-1.24}} \tag{2.22}$$

θ_{cont} est le demi-angle de contraction. Cette équation est valide pour $0.001 \leqslant St(1-(d_0/d_i)^2) \leqslant 100$ et $12 \leqslant \theta_{cont} \leqslant 90$.

Les élargissements brusques génèrent des zones de recirculation en aval de l'écoulement. Ces recirculations sont susceptibles d'engendrer des pertes par dépôt. Il n'existe pas de modèle permettant de prédire les pertes provenant d'élargissement de section. Si un élargissement brusque ne peut être évité, il est par conséquent nécessaire d'étalonner la ligne afin de déterminer expérimentalement les pertes imputables à celui-ci.

Pertes par thermophorèse

Un gradient de température au sein d'un fluide amène une particule en suspension à migrer des zones chaudes vers les zones plus froides. Ce phénomène est appelé thermophorèse. Il se produit typiquement lorsque des gaz chauds (ex : issus d'une flamme) sont transportés à travers une ligne à température ambiante. Le rendement de thermophorèse se définit comme :

$$\eta_{tube,th} = \exp\left[-\frac{\pi d L V_{th}}{Q}\right] \tag{2.23}$$

avec V_{th} La vitesse de thermophorèse des particules de diamètre d. Celle-ci résulte de la différence entre la force thermophorétique et la force de traînée de la particule. Talbot [24] propose un modèle permettant d'estimer la vitesse de thermophorèse :

$$V_{th} = \frac{2C_s\nu\left[\frac{k_g}{k_p} + C_t Kn\right] C_c}{(1 + 3C_m Kn)\left[1 + 2\frac{k_g}{k_p} + 2C_t Kn\right]} \frac{\bigtriangledown T}{T} \tag{2.24}$$

où $C_s = 1.13$
$C_t = 2.63$
$C_m = 1.14$
C_c : facteur correctif de Cunningham

Le rendement de thermophorèse est en général difficile à estimer pour plusieurs raisons. La conductivité thermique des particules est souvent méconnue, de même que le gradient thermique, parce que les transferts de chaleur entre les gaz et la ligne amènent le gradient thermique à diminuer. Il est possible de s'affranchir de la thermophorèse en ayant recours à des lignes chauffées ou en refroidissant les gaz par dilution.

2.2.2 Spectromètre de Mobilité Électrique (SMPS)

Le SMPS est un appareil permettant de mesurer la distribution granulométrique d'un aérosol. Il résulte du couplage de deux appareils : un DMA (*Differential Mobility Analyser*) et un CPC (*Condensation Particle Counter*).

L'analyse de la distribution en taille s'opère en trois temps. Tout d'abord, les particules de l'aérosol sont bombardées aux rayons X afin de les charger électriquement. Dans un second temps, les particules chargées sont acheminées entre les deux cylindres concentriques constitutifs du DMA (figure 2.4). Le débit d'aérosol Q_a est « porté » par un débit d'air de balayage Q_s (de l'anglais *sheath flow*) descendant le long de la colonne du DMA. Les particules sont alors soumises à un champ électrique qui les force à migrer vers le cylindre intérieur. La vitesse de migration des particules dépend de la taille de ces dernières et du débit d'air de balayage imposé. Le débit d'air de balayage ainsi que la différence de potentiel appliquée au sein de la colonne sont étalonnés en usine pour correspondre à une classe de taille de suies. Les particules de cette classe de tailles sont extraites de la colonne. Enfin, le comptage des particules appartement à cette classe de taille est réalisé à l'aide d'un CPC. Le principe du CPC consiste à faire croître les particules jusqu'à une taille permettant leur détection par un système optique classique. L'aérosol est amené dans une région sursaturée, généralement en butanol ou en vapeur d'eau. L'exposition des agrégats de suie à ce milieu sursaturé a pour effet de croître ces dernières par condensation, jusqu'à atteindre une taille suffisante (de l'ordre du µm) pour permettre leur comptage optiquement. La mesure est relativement longue puisque l'opération est effectuée pour chaque classe de taille de suies. Suivant l'étendue de classes de taille considérées, un balayage SMPS dure un certain temps, de 30 secondes à plusieurs minutes. De fait, l'analyse de phénomènes instationnaires, telle que l'émission de particules de suie dans une flamme turbulente, est impossible avec un SMPS. En dépit de ses inconvénients, le SMPS reste un appareil de mesure de référence, largement utilisé et reconnu dans le domaine des aérosols.

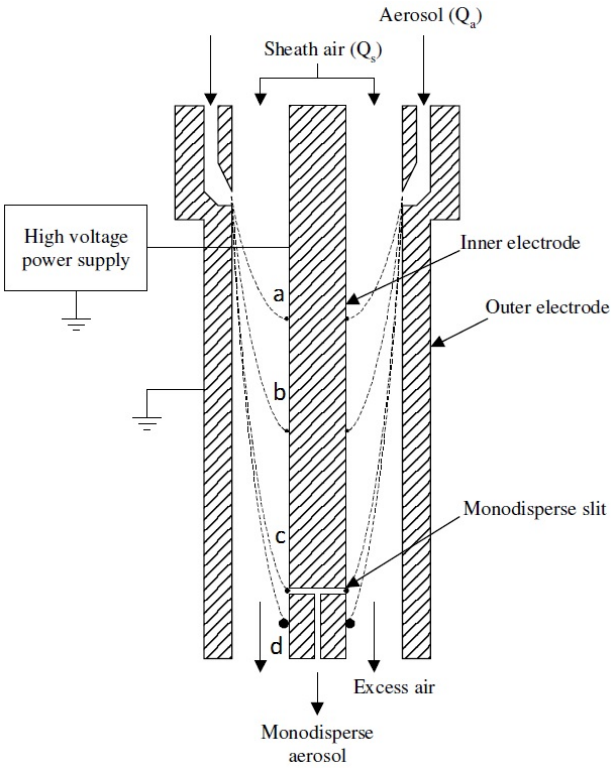

FIGURE 2.4 – Schéma de principe d'un DMA

2.3 Diagnostics laser avancés dédiés à la métrologie des particules de suie

Les techniques d'analyses de suie basées sur le prélèvement de particules présentent plusieurs contraintes. Comme toute technique de mesure intrusive, l'insertion d'une sonde de prélèvement perturbe nécessairement l'écoulement à étudier en aval de celle-ci, et parfois même en amont par effet d'hystérésis. Par ailleurs, le prélèvement des particules de suie est une opération délicate en raison des nombreux processus physico-chimiques intervenant dans la modification de l'aérosol (piégeage des particules le long de la ligne de prélèvement, agrégation, réactions chimiques). Bien que des modèles de rendement de prélèvement aient été proposés dans la littérature, il est en réalité difficile de remonter à la distribution en taille ou à la concentration en particules. Ceux-ci ne concernent que des géométries basiques (tubes droits, coudes, diaphragmes, etc.), et deviennent rapidement inadaptés, dès lors que celles-ci comportent une spécificité. Enfin, les appareils d'analyse tel que le SMPS ne permettent pas d'observer des phénomènes purement instationnaires, tels que des flammes turbulentes. Difficile donc de comprendre les mécanismes de formation de suie sur des combustions aéronautiques. Plus récemment, des techniques de mesure non-intrusives ont vu le jour, et ont connu un véritable succès. Ces diagnostics laser avancés appliqués à la métrologie des particules de suie reposent sur les lois physiques de l'interaction lumière/particule.

2.3.1 Principes fondamentaux de l'interaction lumière/particule

Lorsqu'une particule est exposée à un faisceau lumineux, deux phénomènes physiques opèrent : soit la lumière du faisceau est absorbée, soit elle est diffusée. Les flux absorbé Φ_{abs} et diffusé Φ_{sca} par une particule donnée sont liés à l'éclairement incident par leur sections efficaces :

$$\begin{aligned} C_{abs} &= \frac{\Phi_{abs}}{I} \\ C_{sca} &= \frac{\Phi_{sca}}{I} \end{aligned} \tag{2.25}$$

où I (en W/m^2) représente l'éclairement. La section efficace de diffusion se réfère au flux diffusé par une particule dans toutes les directions :

$$C_{sca} = \int_{\Omega=0}^{4\pi} \frac{dC_{sca}}{d\Omega}(\theta) d\Omega \tag{2.26}$$

où $dC_{sca}/d\Omega$ désigne la section efficace de diffusion angulaire, c'est-à-dire la section efficace par unité d'angle solide $d\Omega$ à un angle de diffusion θ donné.

2.3.1.1 Généralités de la théorie électromagnétique

La propagation de la lumière peut être décrite par l'optique géométrique, qui considère la lumière comme un rayon lumineux, dont la direction de diffusion est régie par les lois de Snell-Descartes, et l'intensité du rayon par les coefficients de Fresnel. En dépit de sa simplicité d'utilisation, l'optique géométrique ne parvient pas à expliquer tous les phénomènes optiques, tels que les interférences, ou encore l'interaction de la lumière avec des objets microscopiques. Ceux-ci peuvent toutefois être décrits via l'optique ondulatoire. Dans cette approche, la lumière est décrite comme une onde électromagnétique, c'est-à-dire de propagation d'un champ électrique $\overrightarrow{E}$ et magnétique $\overrightarrow{H}$. Comme toute onde électromagnétique, les variations et le couplage de ces champs sont régis par les équations de Maxwell :

$$\begin{cases} \overrightarrow{\nabla}.\overrightarrow{D} = & \rho_F \\ \overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{E} = & -\dfrac{\partial \overrightarrow{B}}{\partial t} \\ \overrightarrow{\nabla}.\overrightarrow{B} = & 0 \\ \overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{H} = & \overrightarrow{J_F} + \dfrac{\partial \overrightarrow{B}}{\partial t} \end{cases} \tag{2.27}$$

Ces équations font intervenir un certain nombre de grandeurs électromagnétiques listées ci-dessous :

- ρ_F est la densité volumique de charge électrique présent dans le milieu étudié.
- $\overrightarrow{D}$ est le vecteur déplacement magnétique. Ce dernier est défini comme :

$$\overrightarrow{D} = \epsilon_0 \overrightarrow{E} + \overrightarrow{P} \tag{2.28}$$

  ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide. Cette grandeur donne la réaction qui donne la réaction d'un milieu à un champ électrique. $\overrightarrow{P}$ est le vecteur polarisabilité, et décrit le moment dipolaire électrique moyen par unité de volume d'un milieu.

- $\overrightarrow{B}$ est le vecteur induction magnétique, lié au champ magnétique par la relation suivante :

$$\overrightarrow{H} = \frac{\overrightarrow{B}}{\mu_0} + \overrightarrow{M} \tag{2.29}$$

  μ_0 est la perméabilité électrique du vide. De manière analogue à ϵ_0, μ_0 décrit la réaction d'un milieu exposé à un champ magnétique. $\overrightarrow{M}$ est le vecteur aimantation, qui désigne la densité volumique de moment magnétique. Des relations constitutives simples relient les propriétés électromagnétiques aux propriétés du milieu :

$$\begin{cases} \overrightarrow{J_F} = & \sigma \overrightarrow{E} \\ \overrightarrow{B} = & \mu \overrightarrow{H} \\ \overrightarrow{J_F} = & \epsilon_0 \chi \overrightarrow{E} \end{cases} \tag{2.30}$$

  σ représente la conductivité électrique d'un milieu. χ représente sa susceptibilité électrique, qui caractérise la polarisation d'un milieu exposé à un champ électrique.

Ondes planes harmoniques Les équations de Maxwell peuvent, pour un cas d'étude général, être particulièrement complexes. Pour simplifier les concepts détaillés ci-après, nous considèrerons une onde électromagnétique la plus simple possible, à savoir une onde plane harmonique monochromatique. Celle-ci se caractérise par les propriétés suivantes :

- La propagation du champ électrique et magnétique d'une onde harmonique est décrite par une fonction sinusoïdale de longueur d'onde λ.
- Les vecteurs champ électriques et champs magnétique d'une onde plane sont orthogonaux à la direction de propagation de l'onde.

Les champs électrique et magnétique des ondes planes harmoniques ont une expression du type :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{E}(x,t) = & \quad \overrightarrow{E_0} \exp\left[i(k.x - \omega t)\right] \\ \overrightarrow{H}(x,t) = & \quad \overrightarrow{H_0} \exp\left[i(k.x - \omega t)\right] \end{aligned} \tag{2.31}$$

où $\omega = 2\pi/\lambda$ est la pulsation, et de vecteur d'onde $\vec{k} = \omega/c.\vec{x}$. $\overrightarrow{E_0}$ et $\overrightarrow{H_0}$ sont les amplitudes maximales des champs électromagnétiques.

Vecteur de Poynting Si le matériau dans lequel l'onde se propage est isotropique, le vecteur d'onde $\vec{k}$ indique la direction de propagation du champ électromagnétique $\left\{\overrightarrow{E}, \overrightarrow{H}\right\}$. Dans le cas contraire, la direction de propagation est donnée par le vecteur de Poynting. Il réprésente l'amplitude et la direction du flux d'énergie électromagnétique en tout point et à chaque instant, et est défini comme :

$$\overrightarrow{S}(x,t) = \overrightarrow{E}(x,t) \times \overrightarrow{H}(x,t) \tag{2.32}$$

De par le vecteur de Poynting, il est possible de calculer la puissance surfacique incidente moyennée sur une période temporelle $1/\nu$:

$$\langle I \rangle_{1/\nu} = \frac{kE_0^2}{2\mu\omega} \tag{2.33}$$

2.3.1.2 Diffusion d'une particule quelconque isolée

Les résultats présentés ci-après sont tous issus de l'ouvrage de Bohren et Hufmann [25], qui est considéré comme un ouvrage de référence dans ce domaine. On considère une particule de forme arbitraire exposée à une onde plane harmonique, et située dans un milieu isotrope, non chargé et non magnétique (voir figure 2.5). Le champ électromagnétique s'écrit dans le repère cartésien $(\vec{e_x}, \vec{e_y}, \vec{e_z})$ et se propage suivant l'axe z :

$$\overrightarrow{E_i}(z,t) = \overrightarrow{E_0} \exp\left[i(k.z - \omega t)\right] \tag{2.34}$$

$$\overrightarrow{H_i}(z,t) = -\frac{k}{\mu\omega}\overrightarrow{E_i}(z,t) \tag{2.35}$$

Le repère associé au champ électromagnétique diffusé est défini par le repère orthonormé $(\vec{e_r}, \vec{e_\theta}, \vec{e_\phi})$, où $\vec{e_r}$ représente la direction de propagation de l'onde diffusée. $\vec{e_r}$ et $\vec{e_z}$ définissent un plan appelé plan de diffusion. Les champs électromagnétiques incidents, contenus dans un plan parallèle au plan $(\vec{e_x}, \vec{e_y})$, peuvent donc être décomposés en une composante parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion. L'intensité du champ électrique devient alors :

$$\overrightarrow{E_i}(z,t) = \left(E_{0,\parallel}\overrightarrow{e_{i\parallel}} + E_{0,\perp}\overrightarrow{e_{i\perp}}\right) \exp\left[i(k.z - \omega t)\right] \tag{2.36}$$

On peut montrer que pour le champ lointain, le champ diffusé peut également se décomposer en une composante parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion.

$$\overrightarrow{E_s} = E_\parallel \overrightarrow{e_{s\parallel s}} + E_\perp \overrightarrow{e_{s\perp}} \tag{2.37}$$

Le matériau de la particule étant linéaire, on peut donc écrire la proportionnalité entre le champ diffusé et le champ incident sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} E_{s\parallel} \\ E_{s\perp} \end{pmatrix} = \frac{e^i}{-kir} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{i\parallel} \\ E_{i\perp} \end{pmatrix} \tag{2.38}$$

où les éléments $(S_1, ..., S_4)$ constituent la matrice des amplitudes de diffusion. Le développement analytique de la section efficace de diffusion angulaire donne une expression qui dépend de l'état de polarisation des ondes électromagnétiques incidente et diffusée :

Incidente horizontale, diffusée horizontale

$$\frac{dC_{hh,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_2(\theta)|^2}{k^2} \tag{2.39}$$

Incidente horizontale, diffusée verticale

$$\frac{dC_{hv,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_4(\theta)|^2}{k^2} \tag{2.40}$$

Incidente verticale, diffusée horizontale

$$\frac{dC_{vh,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_3(\theta)|^2}{k^2} \tag{2.41}$$

Incidente verticale, diffusée verticale

$$\frac{dC_{vv,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2}{k^2} \tag{2.42}$$

La valeur des termes de la matrice de diffusion $(S_1, .., S_4)$ dépend de l'angle de diffusion θ, de l'angle azimutal ϕ, et des propriétés de la particule. Les parties réelles et imaginaires de chaque élément de la matrice pour toutes les valeurs de θ et ϕ sont rarement connues.

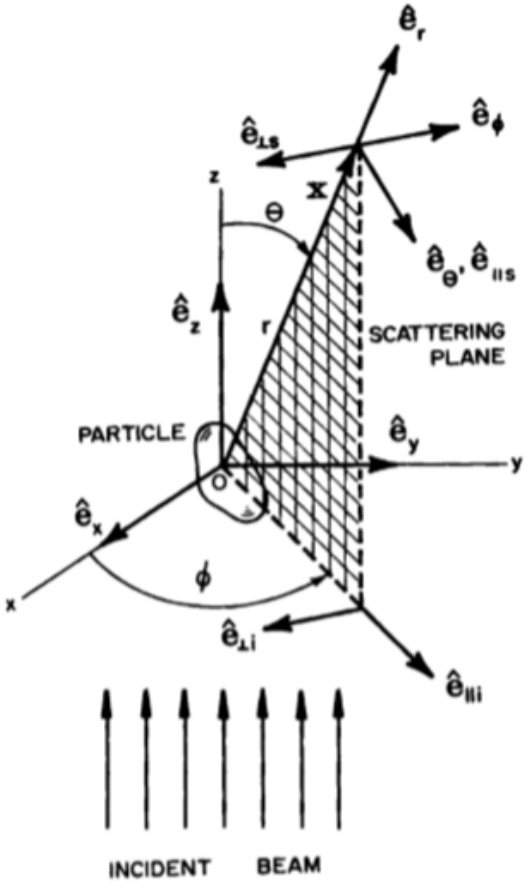

FIGURE 2.5 – Géométrie du modèle de diffusion d'une particule [25]

2.3.1.3 Théorie de Mie

La théorie de Mie, développée par le physicien allemand Gustav Mie au cours de sa thèse, est une solution analytique de la diffusion élastique de la lumière par une sphère de petite taille. On

considère une sphère homogène, isotrope, à matériel local et linéaire, de diamètre d, éclairée par une onde plane harmonique monochromatique de champ électromagnétique $\left\{\overrightarrow{E}, \overrightarrow{H}\right\}$. La sphère est en suspension dans un milieu environnant non absorbant. La méthode consiste à résoudre l'équation d'onde en coordonnées sphériques avec une méthode de séparation des variables. Les champs diffusés par la particule résultent d'une combinaison linéaire d'une somme infinie d'harmoniques sphériques. Le champ électrique diffusé dans le lointain peut s'exprimer sous la forme matricielle. Étant donné que la particule est sphérique, la matrice d'amplitude de diffusion est diagonale, et donc les coefficients S_3 et S_4 sont nuls. Le champ diffusé dans le lointain devient alors :

$$\begin{pmatrix} E_{s\parallel} \\ E_{s\perp} \end{pmatrix} = \frac{e^i}{-kir} \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{i\parallel} \\ E_{i\perp} \end{pmatrix} \tag{2.43}$$

Les coefficients de la matrice de diffusion se déterminent de la manière suivante :

$$\begin{aligned} S_1 = & \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n+1} \left(a_n \pi_n + b_n \tau_n\right) \\ S_2 = & \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n+1} \left(a_n \tau_n + b_n \pi_n\right) \end{aligned} \tag{2.44}$$

a_n et b_n sont appelés coefficient de diffusion externe. Ces coefficients dépendent du contraste d'indice optique m et du paramètre de taille $x = \pi D/\lambda$. Si la perméabilité de la particule et du milieu environnant sont identiques, a_n et b_n ont pour expression :

$$\begin{aligned} a_n = & \frac{m\psi_n(mx)\psi_n'(x) - \psi_n(mx)\psi_n'(mx)}{m\psi_n(mx)\xi_n'(x) - \xi_n(mx)\psi_n'(mx)} \\ b_n = & \frac{\psi_n(mx)\psi_n'(x) - m\psi_n(mx)\psi_n'(mx)}{\psi_n(mx)\xi_n'(x) - m\xi_n(mx)\psi_n'(mx)} \end{aligned} \tag{2.45}$$

ψ_n, ξ_n et leurs dérivées sont des fonctions de Bessel. Il est intéressant de remarquer que lorsque le rapport m tend vers la valeur limite 1 (absence de particule), alors les coefficients de diffusion sont nuls : le champ diffusé disparait. Les coefficients d'amplitudes S_1 et S_2 sont également fonctions de l'angle de diffusion θ au travers des deux fonctions angulaires π_n et τ_n, définies comme :

$$\begin{aligned} \pi_n = & \frac{P_n^1}{\sin\theta} \\ \tau_n = & \frac{dP_n^1}{\sin\theta} \end{aligned} \tag{2.46}$$

où P_n^1 et dP_n^1 sont respectivement un polynôme de Legendre de degré n et sa dérivée. La section efficace de diffusion se détermine de la manière suivante :

$$C_{sca} = \frac{2}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left(|a_n|^2 + |b_n|^2\right) \tag{2.47}$$

Comme le montre l'expression des équations précédentes, le calcul de la diffusion d'une petite particule est une opération complexe, dont la difficulté réside notamment dans le nombre de paramètres à déterminer : à titre d'exemple, la modélisation d'un arc-en-ciel, en calculant l'interaction de la lumière du soleil avec une goutte d'eau de 1 mm en suspension, requiert le calcul d'environ 12 000 termes.

2.3.1.4 Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh est un cas limite de la théorie de Mie, pour laquelle la taille de la particule est négligeable devant la longueur d'onde incidente ($x \ll 1$). Lorsque x et $|m-1|x$ sont très petits devant 1, alors le coefficient de diffusion a_1 vaut :

$$a_1 = -\frac{i2x^3}{3}\frac{m^2-1}{m^2-2} \tag{2.48}$$

les autres coefficients de diffusion a_n (≥ 2) et b_n ($n \geq 1$) sont négligeables devant a_1. Les valeurs des coefficients d'amplitude s'en retrouvent alors grandement simplifiées :

$$S_1 = \frac{3}{2}a_1 \qquad\qquad S_2 = \frac{3}{2}a_1 \cos\theta \tag{2.49}$$

L'expression du champ diffusé devient ainsi :

$$\begin{pmatrix} E_{s\parallel} \\ E_{s\perp} \end{pmatrix} = \frac{e^i}{-kir}\frac{3}{2}a_1 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{i\parallel} \\ E_{i\perp} \end{pmatrix} \tag{2.50}$$

La section efficace d'absorption associée a pour expression :

$$C_{sca} = \frac{2}{k^2}\left(2n+1\right)a_1^2 \tag{2.51}$$

Si la lumière incidente est non polarisée avec une intensité I_0, la puissance diffusée s'exprime comme :

$$I_s = \frac{8\pi^4}{\lambda^4 r^2}\left|\frac{m^2-1}{m^2-2}\right|\left(1+\cos^2\theta\right)I_0 \tag{2.52}$$

Ces équations mettent en lumière les résultats importants de la théorie de Rayleigh :

- L'intensité diffusée est proportionnelle à λ^{-4}, ce qui permet d'expliquer la couleur du ciel : l'air de l'atmosphère terrestre est composé de molécules gazeuses, dont le diamètre est très petit devant les longueurs d'onde du spectre diffusé par le soleil. Par conséquent, l'atmosphère diffuse plus efficacement les petites longueurs d'onde, correspondant aux couleurs bleues du spectre visible de la lumière. A l'inverse les nuages, constitués de gouttelettes d'eau en suspension de diamètre $d > \lambda$, obéissent à la théorie de Mie. L'efficacité de diffusion est donc moins sensible à la longueur d'onde ($I_s \sim \lambda^{-2}$), d'où la couleur blanche caractéristique des nuages.

- L'intensité diffusée est proportionnelle à d^6, ce qui rend l'efficacité de diffusion particulièrement sensible à la taille des particules. À des diamètres plus larges, l'efficacité de diffusion est proportionnelle à d^2, en vertu de la théorie de Mie.

Bien que l'approximation de Rayleigh simplifie considérablement le calcul de l'intensité de diffusion de la lumière par une particule fine, celle-ci n'est pas adaptée à un agrégat de suie, car sa dimension, de plusieurs centaines de nanomètres, est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde des radiations appartenant au spectre visible de la lumière. Toutefois, les particules primaires constituant un agrégat ont un diamètre de l'ordre de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres, et sont suffisamment petites pour satisfaire le critère de taille qu'exige l'approximation de Rayleigh.

2.3.1.5 Théorie de Rayleigh-Debye-Gans

La théorie de Rayleigh-Debye-Gans (RDG) est une extension de la théorie de Rayleigh appliquée à des objets non sphériques, proposée par Peter Debye au début du XXè siècle. Il s'agit d'une extension de l'approximation de Rayleigh pour des particules de forme non sphérique, en considérant celle-ci comme un agrégat d'éléments sphériques obéissant eux-mêmes à l'approximation de Rayleigh. La théorie RDG suppose deux critères de validité :

- Un indice optique proche de 1 $|m-1| << 1$
- Pas de différence de phase au sein de l'agrégat $kD|m-1| << 1$

L'absorption d'une particule sphérique unique suivant l'approximation de Rayleigh est proportionnelle au volume et le signal de diffusion au carré du volume. Pour un agrégat composé de particules élémentaires de diamètres égaux et en contact ponctuel entre-elles, les sections efficaces d'absorption et de diffusion ont donc pour expression :

$$C^a_{abs} = N_p.C^p_{sca} \tag{2.53}$$
$$C^a_{sca} = N_p^2.C^p_{sca} \tag{2.54}$$
$$\left(\frac{dC^a_{sca}}{d\Omega}(\theta)\right)_{vv} = N_p^2.\left(\frac{dC^p_{sca}}{d\Omega}(\theta)\right)_{vv} \tag{2.55}$$

2.3.1.6 Théorie de Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Aggregates (RDG-FA)

La théorie de Rayleigh-Debye-Gans pour les agrégats fractals (RDG-FA) est une adaptation de la théorie de Rayleigh-Debye dédiée notamment aux agrégats de suie. Proposée par Dobbins et Megaridis en 1991 [26], la RDG-FA tient compte de la morphologie fractale des suies pour mieux décrire l'interaction de la lumière avec ces dernières. Tout comme la théorie de Rayleigh-Debye, la théorie RDG-FA postule que chaque sphérule primaire est suffisamment petite devant la longueur d'onde pour que cette dernière diffuse la lumière comme un dipôle électromagnétique (diffusion Rayleigh - RDG). Les ondes électromagnétiques diffusées par chaque sphérule interfèrent, brisant ainsi l'isotropie naturelle de la diffusion RDG. La répartition spatiale des dipôles (représentant la matière) est dictée par la loi fractale (équation 2.6). Des facteurs de forme f et g sont ajoutées aux sections efficaces de la RDG, pour considérer la nature fractale des agrégats et ainsi modéliser leur effet sur la répartition angulaire de l'énergie diffusée :

$$C^a_{abs} = N_p.C^p_{sca} \tag{2.56}$$
$$C^a_{sca} = N_p^2.C^p_{sca}.g(k, D_f) \tag{2.57}$$
$$\left(\frac{dC^a_{sca}}{d\Omega}(\theta)\right)_{vv} = N_p^2.\left(\frac{dC^p_{sca}}{d\Omega}(\theta)\right)_{vv}.f(q^2, R_g^2) \tag{2.58}$$

R_g est le rayon de giration de l'agrégat, et q la norme du vecteur diffusion, définie comme :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda}\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \tag{2.59}$$

Il existe dans la littérature une multitude d'expression de facteurs de forme, à commencer par celle proposée par Dobbins et Megaridis. Celle-ci a la particularité de présenter deux cas limites, qui dépendent de la valeur du produit qR_g. Une population de petites particules analysée aux petits angles de diffusion et avec une grande longueur d'onde $qR_g \to 0$ diffusera exclusivement en régime

dit *de Guinier*. D'un autre côté, la diffusion de grands agrégats, collectée à un grand angle avec une courte longueur d'onde, suit une loi de puissance. Seule cette dernière dépend directement de la dimension fractale de l'agrégat.

$$f = \begin{cases} e^{-\frac{(qR_g)^2}{3}} & \text{si } (qR_g)^2 \leq 3/2D_f \text{ (Régime de Guinier)} \\ \left(\frac{3}{2e}\frac{D_f}{(qR_g)^2}\right)^{D_f/2} & \text{si } (qR_g)^2 \geq 3/2D_f \text{ (Régime de puissance)} \end{cases} \tag{2.60}$$

2.3.2 Mesure par extinction

La technique de mesure par extinction consiste à évaluer l'atténuation d'un faisceau lumineux traversant un milieu chargé en particules. L'extinction se définit comme la somme des énergies diffusée et absorbée par la particule.

$$C_{ext} = C_{abs} + C_{sca} \tag{2.61}$$

Dans le domaine de validité de la RDG-FA, la contribution de la diffusion est souvent considérée comme négligeable. De fait, le problème s'en retrouve grandement simplifié, ce qui revient à dire que la section efficace d'extinction correspond à la section efficace d'absorption. Par ailleurs,

$$K_{ext} = C_{abs}.N_{agg} \tag{2.62}$$

Le coefficient d'extinction K_{ext} peut être simplement déterminé expérimentalement suivant la loi de Beer-Lambert :

$$K_{ext} = -\frac{1}{L}ln(\frac{I}{I_0}) \tag{2.63}$$

où L est la longueur d'interaction du faisceau lumineux avec le milieu étudié, et I_0 et I respectivement les intensités lumineuses du faisceau avant et après passage au travers du milieu.

2.3.3 Incandescence Induite par Laser (LII)

Le diagnostic optique d'incandescence Induite par Laser, communément appelé LII (de l'anglais *Laser Induced Incancescence*) est une méthode in-situ permettant de mesurer la fraction volumique f_v de particules de suie. Le principe de cette technique consiste à exposer les particules à une impulsion laser fortement énergétique. Ces dernières captent le rayonnement électromagnétique, et s'échauffent, jusqu'à plusieurs milliers de degrés Celsius. Elles émettent alors un rayonnement électromagnétique sur une large gamme spectrale, du visible à l'infrarouge : ce phénomène est appelé incandescence. Les particules sont généralement chauffées avec une source laser Nd :YAG à 1064 nm ou à 532 nm. Cette dernière longueur d'onde est cependant évitée pour des applications en combustion. En effet, un rayonnement électromagnétique à 532 nm excite également les HAP, générant alors un signal de fluorescence Induite par Laser (LIF) parasite. L'émission radiative issue des particules incandescentes, appelée par la suite signal LII, est enregistrée avec une caméra pendant un court intervalle de temps, de l'ordre de quelques nanosecondes. De ce signal LII, et par la connaissance des propriétés optiques des suies, peut être obtenue la fraction volumique de suie. L'étude de la décroissance temporelle du signal LII peut également permettre de remonter au diamètre des sphérules primaires des particules.

2.3.3.1 Incandescence et fraction de volume

La luminance L_s d'une population de particules de suie, à une longueur d'onde λ donnée, est liée à sa température T_s et son émissivité ϵ_s.

$$L_s(\lambda, T_s) = \epsilon_s \mathcal{L}(\lambda, T_s) \tag{2.64}$$

$\mathcal{L}$ représente la luminance d'un corps noir, modélisée par la loi de Planck :

$$\mathcal{L}(\lambda, T_s) = \frac{2h\lambda^3}{c^2}.\left(\exp\left(\frac{hc}{KT_s} - 1\right)\right)^{-1} \tag{2.65}$$

En régime de Rayleigh et avec l'hypothèse que l'extinction se réduit au processus d'absorption, l'émissivité des particules de suie peut quant à elle s'exprimer d'après la loi de rayonnement de Kirchhoff comme :

$$\epsilon_s = \alpha_s = \frac{I_{abs}}{I_0} = 1 - \frac{I_{trans}}{I_0} = 1 - \exp(-K_{ext}L) \tag{2.66}$$

α_s représente l'absorptivité des suies. I_0 est l'intensité du laser incident, I_{trans} l'intensité transmise et I_{abs} l'intensité absorbée par les particules de suie. L est la longueur d'interaction avec le milieu de coefficient d'extinction K_{ext}. En régime de Rayleigh (équation 2.62), ce même coefficient d'extinction s'exprime comme :

$$K_{ext} = N_{agg}C^a_{abs} = N_{agg}N_p.\frac{4\pi x_p^3}{k^2}.E(m) \tag{2.67}$$

avec N_{agg} le nombre d'agrégats de suie par unité de volume et C^a_{abs} le coefficient d'absorption d'une particule de suie unique. Cette équation peut se réécrire de la manière suivante :

$$K_{ext} = N_{agg}N_p.\frac{4\pi x_p^3}{k^2}.E(m) \tag{2.68}$$

Sous l'hypothèse d'une faible épaisseur optique $K_{ext}.L << 1$, l'équation 2.66 se simplifie au moyen d'un développement limité au premier ordre, et devient :

$$\epsilon_s = 1 - \exp(-K_{ext}L) \approx K_{ext}L = \frac{6\pi}{\lambda}.f_v.E(m) \tag{2.69}$$

En réinjectant cette expression dans l'équation 2.64, la luminance des agrégats de suie a alors pour formulation :

$$L_s(\lambda, T_s) = \frac{6\pi}{\lambda}.f_v.E(m).\frac{2h\lambda^3}{c^2}.\left(\exp\left(\frac{hc}{KT_s} - 1\right)\right)^{-1} \tag{2.70}$$

2.3.3.2 Evolution temporelle d'un signal LII

Lorsqu'une population de particules de suies est exposée à un rayonnement laser, la température de ces dernières augmente quasi-instantanément. Selon l'énergie laser, le pic de température peut atteindre jusqu'à environ 3500 à 4000°C, température à laquelle les particules de suie commencent à se décomposer pour se transformer en phase vapeur (phénomène de sublimation). Sitôt leur température maximale atteinte, la décroissance thermique est immédiate, et la particule de suie revient à sa température d'équilibre en l'espace de quelques centaines de nanoseconde. Melton [27] est le premier à proposer un modèle décrivant la réponse temporelle en température d'un aérosol suite à l'exposition d'une impulsion laser, en résolvant un bilan d'énergie et de masse tenant compte de ces mécanismes. Par la suite, d'autres modèles de décroissance LII seront proposés, à l'instar de

celui de Liu [28] ou de Michelsen [29]. La variation d'énergie interne d'une particule de suie est liée à sa variation de température, associée à sa masse M et sa capacité massique c_s :

$$\frac{dU}{dt} = \rho_s c_s M \frac{dT_s}{dt} = \rho_s c_s \frac{\pi}{6} D_p^3 \frac{dT_s}{dt} \tag{2.71}$$

où ρ_s est la masse volumique de la particule.

$$\rho c_s \frac{\pi}{6} D_p^3(t) \frac{dT_s}{dt} = \dot{Q}_{abs} + \dot{Q}_{rad} + \dot{Q}_{cond} + \dot{Q}_{sub} + \dot{Q}_{ox} + \dot{Q}_{therm} \tag{2.72}$$

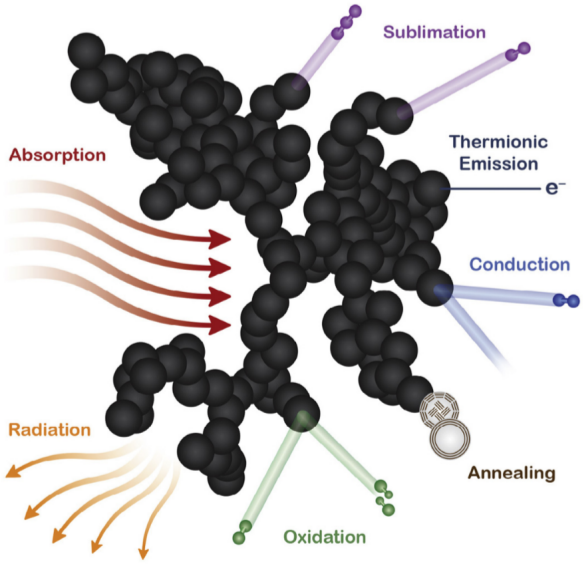

FIGURE 2.6 – Processus thermochimiques affectant la température d'une particule lors d'une mesure de signal LII [29]

En dépit du très grand nombre de processus physico-chimiques intervenant dans le bilan thermodynamique d'une particule de suie, seuls quelques paramètres ont une importance relative. Ainsi, l'oxydation, le recuit et l'émission thermoïonique sont considérés comme des phénomènes secondaires, et de fait négligés dans la plupart des modèles de décroissance de signal LII.

$$\rho c_s \frac{\pi}{6} D_p^3(t) \frac{dT_s}{dt} = \dot{Q}_{rad} + \dot{Q}_{cond} + \dot{Q}_{sub} \tag{2.73}$$

Les pertes radiatives sont généralement modélisés la loi de Planck relative au rayonnement d'un corps noir :

$$\dot{Q}_{rad} = \pi D_p^2 \int_0^{+\infty} \epsilon . \mathcal{L}_s(\lambda, T_s) d\lambda \tag{2.74}$$

Le terme de transfert d'énergie par conduction est lié non seulement aux propriétés de la particule, mais également aux conditions thermodynamiques de son milieu environnant, telles que la pression p_0 et la température T_0.

$$\dot{Q}_{cond} = -\frac{\pi D_p^2 \alpha_T p_0}{RT_0} \sqrt{\frac{RT_0}{2\pi W_0}} \left(c_{p,0} - \frac{R}{2} \right) (T_s - T_0) \tag{2.75}$$

R désigne la constante des gaz parfaits, et W_0 et $c_{p,0}$ respectivement la masse molaire et la capacité thermique massique du milieu environnant. Si l'irradiance laser est telle que la particule atteint sa

température de sublimation (aux alentours de 4000°C), son passage à l'état vapeur induit des pertes thermiques par sublimation $\dot{Q}_{sub}$, modélisées par l'enthalpie de vaporisation du carbone ΔH_v.

$$\dot{Q}_{sub} = -\frac{\Delta H_v}{W_v}\frac{dM}{dt} \tag{2.76}$$

avec W_v la masse molaire de la suie en phase vapeur. Ces pertes thermiques s'accompagnent également d'une diminution de la masse de l'agrégat, qui agit également sur le bilan d'énergie 2.72 :

$$\left(\frac{dM}{dt}\right)_{sub} = -\frac{\pi D_p^2 W_v \alpha_M p_v}{\mathcal{R}T_s}\left(\frac{\mathcal{R}T_s}{2\pi W_v}\right)^K \tag{2.77}$$

où α_M est un coefficient d'accommodation de masse, p_v la pression partielle moyenne de suie en phase vapeur, $\mathcal{R}$ la constante des gaz parfaits et K une constante typiquement égale à 0,5. Comme l'illustrent les équations précédentes, la décroissance du signal LII provient du refroidissement de la particule de suie, après absorption de l'énergie de l'impulsion laser. On observe également que la vitesse de décroissance est notamment liée au diamètre moyen des sphérules primaires D_p constitutifs des particules de suie. Plus ce paramètre est grand, et plus la décroissance en température sera rapide. L'utilisation d'un d'appareil de détection à très haute cadence, tels qu'un photomultiplicateur ou une caméra rapide, peut permettre de capter l'évolution temporelle du signal LII. En ayant recours à un modèle de décroissance de signal LII, il devient dès lors possible de remonter à ce paramètre morphologique des agrégats de suie. Cette technique s'appelle mesure d'Incandescence Induite par Laser Résolue en Temps [30], aussi abrégée TiRe-LII (pour *Time-Resolved Laser Induced Incandescence*).

2.3.3.3 Étalonnage d'un signal LII

La conversion d'un signal LII vers une fraction volumique de suie requiert généralement une étape d'étalonnage. Le signal de LII collecté par l'appareil de collection S_{LII} à une longueur d'onde λ et un instant t donnés est lié à la luminance instantanée d'une population de particules par un facteur d'étalonnage τ.

$$S_{LII}(\lambda, T_s, t) = \tau . L_s(\lambda, T_s, t) \tag{2.78}$$

L'approche la plus classique consiste à étalonner l'appareil de collection utilisé avec une flamme de référence, généralement laminaire, dont la fraction volumique de suie a déjà été mesurée au préalable (par exemple, avec une méthode d'extinction). Cette procédure n'est toutefois pas exempte d'erreurs. Tout d'abord, la température des particules de suie T_s doit être connue (équation 2.70). Or, la montée en température des suies dépend notamment de la densité d'énergie laser à laquelle les particules de suie sont exposées. Dans le cas d'une LII planaire, la nappe laser présente un profil d'intensité Gaussien, c'est-à-dire avec un maximum d'intensité en son centre, et une intensité décroissante en ses extrémités. De la même manière, la nappe laser subit une atténuation de son intensité due à l'absorption de son énergie par les particules le long de son trajet (phénomène de *laser trapping*). En conséquence, la température des suies après absorption sera plus faible aux bords qu'au centre de la nappe laser, ainsi qu'en aval de la traversée de cette dernière. Une manière de contourner ce problème consiste à exposer les particules de suie à des densités d'énergie laser telles que leur température atteint la température de sublimation en tout point de la nappe laser, même en ses bords. Cette solution n'est toutefois pas idéale. En effet, la température de sublimation des particules de suie de la flamme à sonder peut différer de celle de la flamme de référence, conduisant à une variation de luminance mesurée. D'autre part, la différence de composition chimique des agrégats s'exprime également par une variation de leurs propriétés optiques, notamment le coefficient d'absorption $E(m)$ (directement proportionnel à la luminance). D'ailleurs, il a été observé

que ce coefficient d'absorption $E(m)$ diminuait avec la densité d'énergie laser dès lors que le régime de sublimation était atteint [31]. Pour pallier à ce problème, De Luliis [32] propose de collecter le signal LII à deux longueurs d'onde différentes.

2.3.4 Techniques basées sur la diffusion élastique de la lumière

Les techniques de diffusion angulaires sont des méthodes de mesure in-situ destinées à estimer la distribution en taille d'une population de particules de suie. Le principe consiste à exposer l'aérosol avec un faisceau lumineux à longueur d'onde λ donnée. Les particules de suie exposées diffusent alors cette lumière en conservant cette énergie (on parle de diffusion élastique). L'intensité lumineuse est collectée avec une caméra ou un photomultiplicateur et analysée pour y extraire la taille des particules considérées.
Disposant de la section efficace de diffusion angulaire pour des particules de suie, on peut alors déterminer la distribution angulaire et spectrale du flux radiatif diffusé en polarisation verticale/verticale, par une population de particules de concentration N_{agg}, possédant N_p particules primaires par agrégat :

$$I_{vv}(\lambda,\theta) = I_0(\lambda,\theta).V_m.N_{agg}.\left(\frac{dC^a_{sca}}{d\Omega}(\theta)\right)_{vv} \tag{2.79}$$

V_m représente le volume de mesure dans lequel se trouve la population de particules considérées, et I_0 est l'éclairement incident. Sous l'hypothèse que la diffusion des particules de suie suit la théorie RDG-FA, cette expression devient alors :

$$I_{vv}(\lambda,\theta) = I_0(\lambda,\theta).V_m.N_{agg}.N_p^2\frac{x_p^6}{k^2}F(m)f(q,R_g) \tag{2.80}$$

avec x_p est le paramètre de taille. Considérant que les agrégats obéissent à la loi fractale, l'équation 2.80 donne :

$$I_{vv}(\lambda,\theta) = I_0(\lambda,\theta).V_m.N_{agg}.k_f.\left(\frac{D_g}{D_p}\right)^{2D_f}\frac{x_p^6}{k^2}F(m)f(q,R_g) \tag{2.81}$$

Cette expression ne tient pas compte de la polydispersion en taille de particules, qui concerne notamment les populations des particules de suie issues de processus de combustion aéronautique. Celle-ci peut donc être réexprimée en intégrant une fonction densité de probabilité $p(D_g)$:

$$I_{vv}(\lambda,\theta) = I_0(\lambda,\theta).V_m.N_{agg}.k_f.\left(\frac{1}{D_p}\right)^{2D_f}\frac{x_p^6}{k^2}F(m)\int_O^{\int} D_g^{2D_f}.p(D_g).f(q^2,R_g^2)d(D_g) \tag{2.82}$$

Comme le souligne l'équation 2.82, obtenir le diamètre de giration moyen D_g d'une population de particules est une tâche particulièrement ardue, en raison du très grand nombre de paramètres intervenant dans le mécanisme de diffusion élastique de la lumière.
Diverses stratégies de mesures de taille par diffusion angulaire ont été proposées ces dernières années. La première d'entre-elles consiste à simplifier le problème en considérant la population de particules étudiées comme monodisperse en taille, et à collecter l'intensité lumineuse aux petits angles. De cette manière, la diffusion associée obéit au régime de Guinier :

$$\frac{Ivv(q)}{Ivv(0)} = e^{-\frac{q^2.R_g^2}{3}} \tag{2.83}$$

Lorsque $q^2R_g^2 \to 0$, l'expression peut être approchée par un développement limité :

$$\frac{Ivv(q)}{Ivv(0)} = 1 - \frac{q^2.R_g^2}{3} \tag{2.84}$$

L'intensité diffusée à 0° étant inaccessible expérimentalement, cette évolution doit donc être extrapolée avec des mesures réalisées à plusieurs angles. En 2009, Reimann et al. [33] combine la diffusion élastique et LII. En supposant un aérosol monodisperse et à l'aide d'un seul angle de diffusion seulement, Il est alors possible obtenir une distribution spatiale de diamètres de giration.

2.3.4.1 Méthode angulaire

En 1998, De Luliis [32] suggère de mesurer la diffusion élastique de la lumière à deux angles de collection. Le rapport de ces deux signaux, aussi appelé rapport de dissymétrie R_{vv}, permet de s'affranchir de tous les facteurs qui ne dépendent pas de l'angle de collection :

$$\begin{aligned} R_{vv}(\theta,\theta_2) &= \frac{I_{vv}(\theta_1)}{I_{vv}(\theta_2)} \\ R_{vv}(\theta_1,\theta_2) &= \frac{V_m(\theta_1)\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta_1)R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g}{V_m(\theta_2)\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta_1)R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g} \end{aligned} \tag{2.85}$$

Cette équation peut être résolue numériquement en supposant des propriétés inhérentes à l'aérosol étudié (typiquement un modèle de diffusion de type RDG-FA, une distribution en tailles de type log-normale). Cette méthode, a connu un certain succès dans la littérature [34], et a ouvert la voie à des méthodes plus sophistiquées. Par exemple, Caumont-Prim et al. [35] propose une méthode permettant d'estimer in-situ la distribution d'un aérosol polydisperse en ayant recours à 3 angles. Malheureusement cette technique est difficilement applicable sur des flammes confinées en raison du grand nombre d'angles de diffusion utilisés.

2.3.4.2 Méthode spectrale

L'exploitation de la dépendance angulaire de la diffusion est la méthode la plus simple pour déterminer la taille d'une population de particules de suie. Cependant, la présence de plusieurs appareils de collection placés à des angles de diffusion très éloignés rendent la technique inapplicable sur des bancs de combustion haute-pression, qui ne présentent en général que peu d'accès optiques. Pour compenser cette faiblesse, il est également possible de jouer sur le paramètre q en exploitant la variation spectrale de la lumière. À supposer que la collection de la lumière s'effectue au même angle de diffusion θ, le rapport de dissymétrie devient alors :

$$\begin{aligned} R_{vv}(\lambda_1,\lambda_2) &= \frac{I_{vv}(\theta,\lambda_1)}{I_{vv}(\theta,\lambda_2)} \\ R_{vv}(\lambda_1,\lambda_2) &= \frac{F(m(\lambda_1))\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta,\lambda_1)R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g}{F(m(\lambda_2))\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta,\lambda_2)R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g} \end{aligned} \tag{2.86}$$

Cette nouvelle expression de R_{vv} fait apparaître deux nouveaux termes qui n'étaient pas présents dans l'équation 2.85, à savoir les coefficients de diffusion F. Ceux-ci sont fonction de l'indice de réfraction complexe m des particules, dont la valeur dépend elle-même de λ. En dépit de ces contraintes, Bouvier [36] et Zang [37] démontrent la faisabilité de la technique et ouvrent la voie

à de potentielles applications sur des flammes turbulentes. Il n'existe cependant pas, à ce jour, de mesure de distribution spatiale de tailles de particules obtenue avec cette méthode.

2.4 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Fluorescence Induite par laser Planaire (PLIF)

La technique de Fluorescence Induite par Laser, plus communément appelée LIF (de l'anglais *Laser Induced Fluorescence*), est un diagnostic optique puissant permettant de mesurer des grandeurs scalaires locales, à l'instar de la température ou de concentration d'atomes ou de molécules. Cette technique est utilisée depuis plusieurs dizaines d'années afin d'améliorer la compréhension des mécanismes physico-chimiques interagissant dans les écoulements réactifs. À ce jour, de nombreuses espèces chimiques ont été dosées sur une grande variété de flammes. On peut notamment citer des atomes (O, H, N, C), des molécules diatomiques (OH, CO, NO, C_2, NH, CH ...), voire des chaines moléculaires plus complexes telles que des aromatiques et des cétones. La LIF est très régulièrement utilisée en raison de sa grande flexibilité :

- La grande sensibilité de la technique permet de mesurer de très faibles concentrations, de l'ordre du ppm.
- Le phénomène de fluorescence étant extrêmement rapide (de 10^{-9} à 10^{-6} s), la LIF peut être également utilisée pour décrire et caractériser des phénomènes instationnaires.
- Des mesures 2D sont possibles à l'aide d'un montage laser approprié. On parle alors de PLIF (*Planar Laser Induced Fluorescence*). La première application de la PLIF à des écoulements réactifs remonte à 1982.

2.4.1 Fondamentaux de spectroscopie

2.4.1.1 Spectroscopie atomique

Le principe de la spectroscopie repose sur la théorie des quanta, développée par Max Planck, selon laquelle l'énergie interne des atomes présente des états énergétiques discrets. L'état énergétique d'un atome est dit « quantifié », et est dû au mouvement orbital des électrons autour de leur noyau atomique. Les changements de configurations électroniques sont associés à des variations d'énergie de l'atome et donc à des émissions radiatives en vertu de la relation de Planck-Einstein :

$$\Delta E = E_{sup} - E_{inf} = h\nu \tag{2.87}$$

où E_{sup} et E_{inf} correspondent respectivement aux états énergétiques le plus et le moins élevé, et h est la constante de Planck, qui relie la variation d'énergie à ν, la fréquence de l'onde radiative absorbée ou émise. Les électrons d'un atome sont caractérisés par quatre nombres quantiques : n, l, m_l et m_s. n est le premier nombre quantique. Dans le modèle de Bohr de l'atome, il est supposé que les électrons gravitant autour de leur noyau décrivent un nombre discret d'orbites. Ces orbites sont appelées n et prennent pour valeur :

$$n = 1, 2, 3, ... \tag{2.88}$$

Le rayon de ces orbites est proportionnel à n^2. Selon le principe d'incertitude d'Heisenberg, il est impossible de déterminer avec précision deux propriétés physiques d'un électron au même moment (ex : position et énergie cinétique). Dans la théorie moderne des quanta, la trajectoire d'un électron n'est donc pas définie précisément, mais décrite de manière probabiliste. De manière analogue au

modèle de Bohr, l'électron gravite autour du noyau de l'atome, formant un nuage électronique dont le rayon moyen correspond à n^2. Cette région est appelée couche électronique. Le deuxième nombre quantique, $\vec{l}$, est appelé nombre quantique azimutal. Il correspond au moment angulaire de l'électron dans son orbite qui est également quantifié. La valeur de l est un entier compris entre 0 à $n-1$.

$$l = 1, 2, ..., n-1 \tag{2.89}$$

Il définit les sous-couches électroniques d'un atome. Ces premières sous-couches sont habituellement nommées $s(l = 0)$, $p(l = 1)$, $d(l = 2)$ et $f(l = 2)$. Ces sous-couches se subdivisent en orbitales atomiques. Ce sont des zones de forte probabilité de présence d'électrons. Ces orbitales sont généralement représentées en isosurfaces indiquant la région de l'espace où la probabilité de trouver l'électron est supérieure à 95%. Elles sont définies par le nombre quantique magnétique m_l, qui correspond aux valeurs possibles de projection du nombre quantique l. Il s'agit d'un entier vérifiant :

$$m_l = -l, l+1, ..., l \tag{2.90}$$

Ainsi la sous-couche s ne contient qu'une orbitale sphérique. La sous-couche p contient 3 orbitales en forme d'« haltères », appelées communément $p_x(m_l = -1)$, $p_z(m_l = 0)$ et $p_z(m_l = 1)$. Les sous-couches suivantes possèdent davantage d'orbitales atomiques de forme plus exotiques encore. Enfin, un électron se caractérise par son moment angulaire intrinsèque, appelé spin et noté $\vec{s}$. Le spin d'un électron est quantifié, et m_s, la valeur projetée de $\vec{s}$, prend pour valeurs :

$$m_s = \pm\frac{1}{2} \tag{2.91}$$

Les électrons remplissent les orbitales d'un atome de manière bien définie : couche par couche, puis sous-couche par sous-couche. Selon le principe d'exclusion de Pauli, deux électrons d'un même atome ne peuvent avoir le même état quantique (n, l, m_l, m_s). Ce principe induit les conséquences suivantes : une orbitale ne peut contenir au maximum que deux électrons de spin opposé. Par ailleurs, une couche n ne peut accepter qu'au maximum $2n^2$ électrons, tandis qu'une sous-couche l comportera jusqu'à $4l+2$ électrons. A l'instar de l'électron, un atome possède un moment cinétique azimutal $\vec{L}$ et un moment magnétique de spin $\vec{S}$. Pour les différencier des moments individuels des électrons, ceux-ci sont notés en majuscule. Leur valeur est issue de la somme des contributions individuelles de chaque électron contenu dans la couche électronique extérieure. En effet, la résultante des contributions des électrons situés dans les couches remplies est systématiquement nulle. La norme de $\vec{L}$ peut prendre un très grand nombre de valeurs, suivant le nombre d'électrons combinés et les différentes projections m_l qui leur sont associées. De manière analogue à la nomenclature utilisée pour les électrons, les valeurs du moment cinétique azimutal L sont nommées $S(L = 0)$, $P(L = 1)$, $D(L = 2)$, $F(L = 2)$, et ainsi de suite. Tout comme pour $\vec{L}$, le nombre quantique de spin $\vec{S}$ est la combinaison des spins individuels de chaque électron. Suivant l'orientation de spin de chaque électron, un atome de spin $\vec{S}$ présente $2S+1$ états de spin possibles. Cette valeur est appelée multiplicité de spin. L'état de spin a une répercussion sur l'énergie de l'atome en modifiant les répulsions électrostatiques des électrons. La somme des moments quantiques azimutal et de spin de l'atome donne le moment cinétique orbital total de l'atome :

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} \tag{2.92}$$

Ces trois nombres quantiques permettent de décrire l'état d'excitation électronique global d'un atome, sous la forme d'une notation appelée terme spectroscopique :

$$^{2S+1}L_J$$

Les transitions électroniques vers des états électroniques plus ou moins excités s'accompagnent d'une absorption ou d'une émission radiative. Cependant, toutes les transitions électroniques d'un état vers un autre ne sont pas permises. Celles-ci doivent répondre à des règles de sélection généralistes listées ci-dessous :

- $\Delta n =$ toute valeur entière
- $\Delta L = \pm 1$
- $\Delta J = 0, \pm 1$ si $\Delta J \neq 0$; $\Delta J = 0$ si $J = 0$
- $\Delta S = 0$

Ces règles dérivées de la mécanique quantique peuvent dans certains cas être enfreintes, suivant l'atome voire même les états électroniques concernés.

2.4.1.2 Spectroscopie moléculaire

Une molécule étant l'association de plusieurs atomes, il faut également considérer les mouvements de rotation de la molécule autour de son centre de gravité, ainsi que les mouvements de vibration entre les atomes. Le couplage de ces différentes excitations permet une multitude de transitions énergétiques, ce qui complexifie considérablement la structure énergétique d'une molécule. Néanmoins, l'approximation de Born-Oppenheimer suppose que le mouvement des noyaux est lent par rapport au mouvement des électrons. En d'autres termes, les excitations de type électroniques, vibrationnelles et rotationnelles sont indépendantes. Il résulte de cette hypothèse que l'énergie d'une molécule est la somme de ces excitations :

$$E_{tot} = E_{elec} + E_{rot} + E_{vib} \tag{2.93}$$

2.4.2 Introduction à la Fluorescence Induite par Laser

Le principe de la technique repose sur l'interaction lumière/molécule. Elle consiste à collecter les photons émis lors de la désexcitation spontanée des molécules. Comme pour la plupart des diagnostics optiques, la mesure se déroule en deux étapes. Premièrement, les molécules à sonder sont exposées à un rayonnement électromagnétique hautement énergétique. Dans le cas de la PLIF, la source de photons employée est un faisceau laser. Si l'impulsion laser en question possède une énergie correspondant à une fréquence propre d'excitation des molécules sondées, ces dernières absorbent le rayonnement électromagnétique du laser. Les molécules en question passent alors d'un niveau rovibrationnel d'un état électrique fondamental vers un niveau rovibrationnel d'un état électronique excité.

2.4.2.1 Modèle de fluorescence à deux niveaux

Pour introduire le principe de la PLIF, un modèle à deux niveaux est usuellement employé. Celui-ci met en jeu deux niveaux d'énergie de la molécule cible : le premier, d'énergie E_1 et de population N_1 (niveau rovibrationnel de l'état électronique fondamental), et le second, d'énergie E_2 et de population N_2 (niveau rovibrationnel de l'état électronique supérieur). Les processus d'excitation et de désexcitation intervenant dans le modèle à deux niveaux sont illustrés sur la figure 2.7

Absorption stimulée : Le peuplement de l'état excité E_2 est réalisé lors de l'absorption de photons d'énergie $h\nu$ (voir eq. 2.87). Le nombre de molécules excitées suite au passage de l'impulsion laser s'exprime comme $N_1 B_{12}.I_\nu$, avec N_1 le nombre de molécules à l'état fondamental

1, et I_ν l'intensité surfacique de l'onde électromagnétique à la fréquence d'excitation ν. B_{12} est appelé coefficient d'Einstein, et correspond à la proportion de molécules passant de l'état E_1 à l'état E_2.

Les molécules se trouvant dans un état électronique naturellement instable, celles-ci retournent vers leur état électronique de base, par exemple au travers de procédés de relaxation radiatifs tels que l'émission stimulée ou l'émission spontanée, aussi appelée émission de fluorescence. En fonction du milieu étudié et des molécules fluorescentes analysées, d'autres mécanismes de désexcitation non radiatifs peuvent également intervenir et interférer avec la fluorescence avec la molécule sondée, à l'instar de la désexcitation collisionnelle, de la photoionisation ou encore la prédissociation.

Emission stimulée : la première voie de désexcitation est appelée émission stimulée, où la molécule retourne sur son état fondamental en émettant un photon à la même longueur d'onde que celle de l'impulsion laser. $N_2 B_{21}.I_\nu$ représente le nombre de molécules-cibles relaxées, avec B_{21} le coefficient d'Einstein lié à l'émission stimulée.

Emission spontanée ou fluorescence : le second chemin de désexcitation est l'émission de fluorescence, déjà évoquée plus haut. La molécule reste à l'état excité durant un temps caractéristique de quelques dizaines à centaines de nanosecondes, avant de libérer un photon à une fréquence différente de celle de l'impulsion laser. La population de molécules passant de l'état 2 à 1 correspond à $N_2 A_{21}$ éléments, où A_{21} est le coefficient d'Einstein relatif à l'émission spontanée.

Désexcitation collisionnelle : appelée aussi quenching collisionnel, la désexcitation par voie collisionnelle correspond au transfert d'énergie par collision avec les espèces chimiques contenues dans le milieu. La désexcitation collisionnelle est majoritaire par rapport au phénomène de fluorescence, de 2 à 3 ordres de grandeur environ. Son intensité est fonction des conditions thermodynamiques du milieu (température et pression), ainsi que des partenaires de collision. Le taux de désexcitation collisionnelle est décrit par le paramètre Q_{21}

Photoionisation : désigne l'arrachement ou absorption d'un électron de la molécule cible, menant à une modification de la structure chimique de la molécule. On dit que la molécule est ionisée. Les molécules subissant la photoionisation quittent alors l'état électronique excité, conduisant à une diminution du signal de fluorescence. Ce paramètre est fonction de l'énergie de l'impulsion laser.

Prédissociation : décrit le transfert de molécules cibles contenues dans l'état électronique excité vers un état dit dissociatif de même énergie, menant potentiellement à la dissociation de la molécule. L'énergie nécessaire à la rupture des liaisons atomiques étant inférieure à la normale, on parle de prédissociation. Le taux de pertes par prédissociation est décrite par le paramètre P

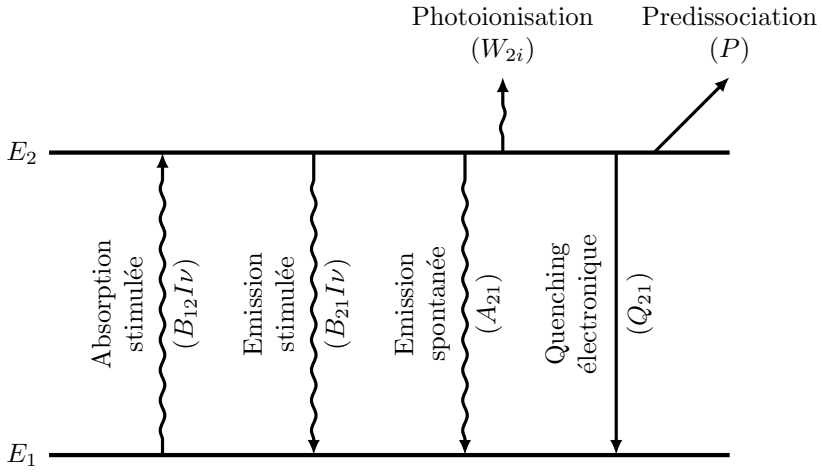

FIGURE 2.7 – Modèle à deux niveaux d'énergie représentant les processus non-radiatifs (flèches droites) et radiatifs (flèches ondulées)

Le modèle à deux niveaux ne décrit pas les transferts d'énergie de manière exhaustive. D'autres processus peuvent également participer au bilan d'énergie entre les deux niveaux. Parmi ces mécanismes en particulier : la photodissociation, générant des molécules cibles supplémentaires suite à des mécanismes réactionnels catalysés par des échanges d'énergie entre l'impulsion laser et certaines molécules du milieu (par exemple $CO_2 + h\nu \rightarrow CO + O$). D'autres processus non-radiatifs sont susceptibles de provoquer des changements de la distribution interne de population contenue dans l'état supérieur. Parmi ces processus, les mécanismes de redistribution intra-bande, qui sont de deux types : les VET (de l'anglais *Vibrational Energy Transfer*) et RET *Rotational Energy Transfer*). Le mécanisme de VET désigne les transferts de population d'un niveau vibrationnel vers un autre, tandis que le mécanisme de RET correspond à la redistribution des molécules entre les niveaux rotationnels contenus dans une même bande vibrationnelle. L'efficacité de ces mécanismes varie suivant les conditions expérimentales. Pour simuler la fluorescence d'une molécule d'intérêt, des modèles allant jusqu'à la prise en compte de 5 niveaux ont été d'abord développés dans le passé pour tenir compte de ces transferts d'énergie [38]. Grâce à l'augmentation des performances des machines de calculs, des modèles à un nombre de niveaux supérieur font l'objet de développement, amenant à une description toujours plus détaillée du comportement spectroscopique d'une molécule cible.

En revenant au modèle à deux niveaux et en utilisant le diagramme de la figure 2.7, il est possible de décrire les cinétiques des populations N_1 et N_2. En supposant une conservation de la population totale dans le système, les équations différentielles associées aux transferts d'énergie des molécules sondées s'expriment comme :

$$\begin{aligned}
(1) \quad \frac{N_1}{dt} &= -N_1(t).B_{12}.I_\nu + N_2(t).(B_{12}.I_\nu + A_{21} + Q_{21}) \\
(2) \quad \frac{N_2}{dt} &= N_1(t).B_{12}.I_\nu - N_2(t).(B_{12}.I_\nu + A_{21} + Q_{21} + W_{2i} + P) \\
(3) \quad N_{tot} &= N_1(t) + N_2(t)
\end{aligned} \tag{2.94}$$

La résolution de ce système d'équations passe par la formulation de différentes hypothèses. La première d'entre-elles est une absence de molécules excitées à l'instant initial. Toute la population de molécules se trouve de fait dans l'état fondamental :

$$\begin{aligned} (1) \quad N_1(t=0) &= N_1^0 \\ (2) \quad N_2(t=0) &= 0 \end{aligned} \tag{2.95}$$

Par ailleurs, en supposant l'absence de photoionisation ($W_{2i} = 0$) et de prédissociation ($P = 0$), l'addition des membres (1) et (2) du système d'équations différentielles 2.94 donne :

$$\frac{N_1}{dt} + \frac{N_2}{dt} = 0 \tag{2.96}$$

En effectuant un changement de variable ($N_1(t) = N_1^0 - N_2(t)$) :

$$\frac{N_2}{dt} = N_1^0.B_{12}.I_\nu - N_2(t)(B_{12}.I_\nu + B_{21}.I_\nu + A_{21} + Q_{21}) \tag{2.97}$$

Par intégration, l'équation 2.97 devient :

$$N_2(t) = N_1^0.B_{12}I_\nu.\tau_p.\left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_p}}\right) \tag{2.98}$$

avec τ_p appelé le temps caractéristique de pompage :

$$\tau_P = \frac{1}{B_{12}I_\nu + B_{21}I_\nu + A_{21} + Q_{21}} \tag{2.99}$$

Lorsque t devient grand, le peuplement de l'état excité E_2 atteint un régime stationnaire. L'équation 2.98 se simplifie et devient :

$$N_2(t \to \infty) = N_2 = N_1^0.B_{12}I_\nu.\frac{1}{B_{12}I_\nu + B_{21}I_\nu + A_{21} + Q_{21}} \tag{2.100}$$

Cette expression peut se reformuler de la manière suivante :

$$N_2 = N_1^0.\frac{B_{12}}{B_{12} + B_{21}}.\frac{1}{1 + \frac{I_\nu^{sat}}{I_\nu}} \tag{2.101}$$

où I_ν^{sat} décrit l'irradiance laser à la saturation, définie comme :

$$I_\nu^{sat} = \frac{A_{21} + Q_{21}}{B_{12} + B_{21}} \tag{2.102}$$

2.4.2.2 Régimes d'excitation

L'équation 2.101 met en exergue deux cas limites dépendant de l'irradiance laser I_ν :

- Pour de faibles irradiances laser, ($I_\nu << I_\nu^{sat}$), le peuplement de l'état électronique excité évolue linéairement avec I_ν, ce régime de fonctionnement est alors qualifié de linéaire.

$$N_2 = N_1^0.B_{12}.I_\nu.\frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} \tag{2.103}$$

  avec $A_{21}/(A_{21} + Q_{21})$ le rendement de fluorescence, aussi appelé facteur de Stern-Vollmer.

- Au-delà d'un certain seuil ($I_\nu >> I_\nu^{sat}$), la population du niveau excité N_2 ne dépend plus de la valeur de l'irradiance laser. On parle alors de régime impulsionnel saturé.

$$N_2 = N_1^0.\frac{B_{12}}{B_{12}+B_{21}} \tag{2.104}$$

Au premier abord, le régime saturé semble plus intéressant que le régime linéaire. D'une part, le peuplement du niveau excité se retrouve maximisé, ce qui permet de récupérer de ce fait un maximum de signal de fluorescence. D'autre part, le peuplement du niveau excité ne dépend plus de l'irradiance laser, ni du quenching. Le signal reçu est donc directement quantitatif. Différents auteurs ont d'ailleurs eu recours à ce régime d'excitation pour des applications LIF [39, 40]. En revanche, le régime d'excitation saturé nécessite une puissance laser particulièrement élevée. De surcroît, il est difficile d'atteindre la saturation sur tout le milieu d'étude, à la fois spatialement (de part de la nature de la distribution d'énergie de l'impulsion laser) et temporellement (la valeur d'irradiance étant plus faible au début et à la fin de l'émission du pulse laser). Dans ces cas de figure, le signal de fluorescence intégré sur toute la durée de l'exposition laser se retrouverait donc « pollué » par des signaux de fluorescence issue de régimes impulsionnels non saturés. Pour toutes ces raisons, le régime d'excitation linéaire est privilégié.
Dans le cas d'une mesure de fluorescence viennent s'ajouter les paramètres intrinsèques à la collection du signal par la caméra d'acquisition : l'angle solide de collection $\Omega/4\pi$ et le volume de mesure V_m. Le signal de fluorescence collecté a donc pour expression :

$$S_{fluo} = \frac{\Omega}{4\pi}.V_m.N_1^0.B_{12}.I_\nu.\frac{A_{21}}{A_{21}+Q_{21}} \tag{2.105}$$

2.4.3 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le radical hydroxyle (OH)

La technique de Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le radical hydroxyle (PLIF-OH) est l'un des diagnostics laser les plus élémentaires de l'étude expérimentale de la combustion. Cette technique est utilisée pour caractériser la structure globale d'une flamme. Le radical OH est une molécule diatomique principalement formée dans la zone de réaction de la flamme. Au sein de la zone de réaction, la production du radical OH augmente considérablement. En d'autres termes, identifier les zones où les signaux de fluorescence présentent le plus fort gradient revient à localiser le front de flamme. Bien que le radical OH soit extrêmement réactif (notamment avec le dioxygène), celui-ci reste néanmoins présent en concentration suffisamment importante dans les gaz brûlés, avec une longue espérance de vie, de l'ordre de 3 ms [41]. Dès lors, l'analyse des signaux de PLIF-OH peut également servir à discriminer les zones de gaz frais des zones de gaz brûlés. Plus globalement, les forts taux de fluorescence du radical OH permettent d'implémenter la technique de PLIF-OH sur une large gamme de flammes et de configurations optiques, tout en conservant des rapports signal à bruit (SNR) satisfaisants et une bonne résolution spatiale.
Dans le cadre de cette thèse, l'environnement à étudier est systématiquement à haute-pression et à haute-température. Or, il est également observé que le rendement de fluorescence diminue avec la pression. Par conséquent, il convient de sélectionner la raie d'absorption du radical OH possédant le meilleur rendement de fluorescence. Une transition souvent sélectionnée dans les applications de combustion est la raie d'absorption $Q_1(5)$, de longueur d'onde d'excitation 282,75 nm dans le vide. Le choix porté sur la raie $Q_1(5)$ s'explique de diverses manières. Les transitions $Q_1(\Delta J = 1)$ de la transition $A^2\Sigma^+(v' = 0) - X^2\Pi(v'' = 1)$ présentent les niveaux d'absorption les plus intenses. De surcroît, l'intensité d'absorption des raies rotationnelles autour de $J' = 5$ sont les moins dépendantes de la température, ce qui permet de supposer que l'intensité de fluorescence du radical OH varie faiblement avec la température dans une large gamme de température (i.e. 1500-1900 K). Enfin, la raie d'absorption $Q_1(5)$ est bien isolée spectralement, garantissant que l'émission de fluorescence

de OH provient d'une seule transition rovibronique. Pour information, les spectres d'absorption et de fluorescence du radical OH pour la transition $Q_1(5)$ ont été calculés par Bresson et al. [42] dans le cadre de sa thèse.

2.4.4 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le kérosène et les Hydrocarbures Aromatiques Polycyliques (HAP)

Tout comme pour la PLIF-OH, la PLIF-kérosène est utilisée pour mesurer la distribution spatiale de kérosène présent dans la chambre de combustion. Il a été montré que la fluorescence du kérosène Jet A1 est majoritairement causée par l'excitation des mono- et diaromatiques le constituant. En effet, le kérosène utilisé pour l'aviation civile, le Jet-A1, contient un taux d'aromatiques de l'ordre de 25%. Les composés aromatiques, notamment les HAP, sont connus pour leur rôle de précurseur dans la formation des particules de suie. Par conséquent, l'application de la PLIF-kérosène revient à identifier les zones de présence des HAP légers ayant des cycles benzéniques faibles (jusqu'à 2) dans la chambre de combustion, et dans une large mesure, à mieux détailler le rôle de ces aromatiques assimilés à des précurseurs de suie sur la formation des particules de suie. Autrement dit, les termes « PLIF-HAP » et « PLIF-kérosène » sont des expressions équivalentes si on souhaite uniquement détecter ce type de HAP. Lors de leurs travaux de recherches, Baranger [43] et Rossow [44] ont largement contribué à l'identification des espèces responsables de la fluorescence du kérosène. Des modèles de fluorescence ont ainsi pu être réalisés, lesquels dépendent notamment de la longueur d'onde d'excitation du kérosène, mais aussi de la pression et de la température du milieu.

2.4.4.1 Effet de la longueur d'onde d'excitation

Le domaine spectral de fluorescence du kérosène est globalement compris entre 250 et 420 nm pour une excitation du kérosène située dans l'UV. Une étude de l'effet de la longueur d'onde d'excitation a été réalisée par Baranger. La figure 2.8 présente les spectres de fluorescence obtenus pour quatre longueurs d'onde d'excitation, à savoir 248, 266, 282 et 308 nm.

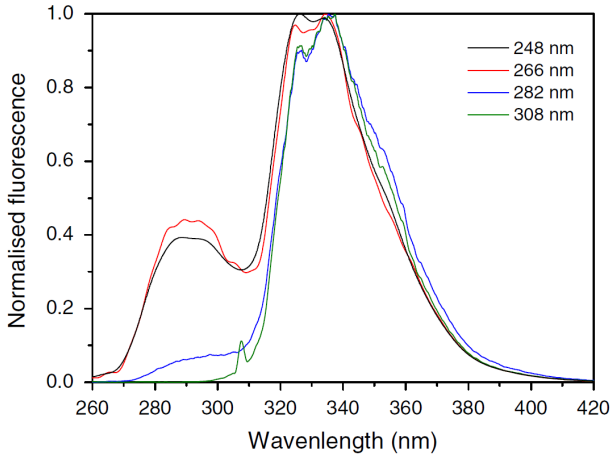

FIGURE 2.8 – Spectres de fluorescence normalisés du kérosène pour les longueurs d'onde d'excitation 248, 266, 282 et 308 nm [43]

Les quatre spectres de fluorescence présentent un continuum quasi-identique sur une gamme de longueurs d'onde située entre 310 et 420 nm. La fluorescence est principalement causée par les composés diaromatiques du kérosène (majoritairement les naphtalènes). On observe également une seconde bande d'émission de fluorescence entre 270 et 310 nm, uniquement visible pour les longueurs

d'onde d'excitation 248 et 266 nm. L'émission de fluorescence issue de cette bande spectrale provient principalement de ses composés monoaromatiques. Au moyen d'un filtrage optique adapté, il est alors possible d'identifier spécifiquement la fluorescence des composés mono- et diaromatiques. Par cette approche, Malbois [45] a pu entreprendre des mesures de PLIF-kérosène et obtenir les distributions spatiales des composés mono- et diaromatiques, offrant des informations plus précises quant au processus de recomposition/décomposition du kérosène dans la chambre de combustion.

2.4.4.2 Effet de la température et de la pression

L'effet de la température sur la fluorescence du kérosène a été étudié par Rossow [44] dans le cadre de sa thèse. Celui-ci évalue les spectres de fluorescence du kérosène obtenus à partir d'un jet à température variable (de 450 à 900 K) à pression atmosphérique, avec une longueur d'onde d'excitation de 266 nm (figure 2.9.

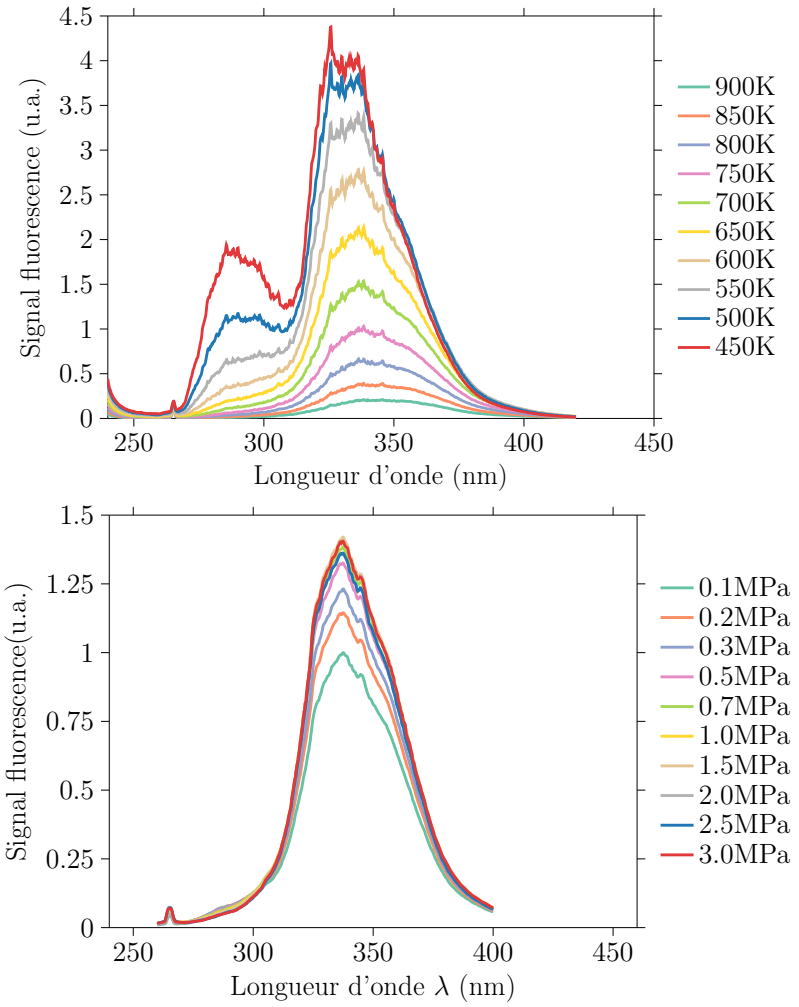

FIGURE 2.9 – Effet de la température (haut) et de la pression (bas) sur la fluorescence du kérosène, pour une longueur d'onde d'excitation de 266 nm [44]

Il observe que la température n'a aucune influence sur la section efficace d'absorption du kérosène. En revanche, l'intensité du signal de fluorescence émis par le kérosène décroît avec la température. De plus, le spectre de fluorescence change de morphologie au fur et à mesure que la température du kérosène augmente. En effet, la bande d'émission caractéristique des monoaromatiques décroît plus

rapidement que la bande des diaromatiques avec la température, et disparaît à partir de 600 K. Par ailleurs, Rossow a également étudié l'influence de la pression sur la fluorescence du kérosène, et quantifie la décroissance des signaux avec l'augmentation de la pression).

2.4.5 Fluorescence Induite par Laser Planaire sur le monoxyde d'azote (NO)

L'oxyde d'azote représente l'un des principaux polluants générés par les processus de combustion aéronautique. C'est pourquoi sa détection et sa quantification a fait l'objet d'un certain nombre d'articles depuis le début des années 80. La molécule de NO peut également être utilisée comme traceur pour réaliser des mesures de température [46]. Le tableau 2.2 présente une partie des transitions électroniques étudiées dans la littérature. Beaucoup de ces études exploitent la transition électronique entre l'état $X^2\Pi$ et l'état $A^2\Sigma$, à une longueur d'onde d'excitation d'environ 226 nm. La fluorescence de la molécule de NO est collectée entre 230 et 300 nm. Le choix de la stratégie excitation/détection est avant tout motivé par la maximisation du signal de fluorescence de la molécule de NO tout en minimisant les interférences potentielles.

2.4.5.1 Atténuation de la nappe laser par les molécules de CO_2 et H_2O

L'atténuation des signaux de fluorescence et du laser est présente dans la plupart des dispositifs de combustion haute pression, et constitue une limitation importante de la PLIF-NO dans ces milieux. Il est reporté qu'à température élevée, les produits majoritaires de combustion CO_2 et H_2O présentent un comportement d'absorption large bande avec des sections efficaces d'absorption augmentant avec la température et diminuant avec la longueur d'onde. Ainsi, pour une flamme propane/air à haute pression (1-18 bar), les impulsions laser émises à 193 nm, 225 nm et 247 nm peuvent être atténuées de 95%, 25% ou 5% respectivement [62, 63]. La densité élevée de CO_2 dans les flammes à pression élevée donnent lieu à une forte atténuation de la nappe laser et des signaux de fluorescence du NO.

2.4.5.2 Dépendance en température

La température modifie la distribution de population des niveaux rovibrationnels, ce qui a pour effet d'agir sur le signal de fluorescence. Ce phénomène est mis en exergue sur les courbes de la figure ci-dessous, qui décrivent l'évolution du signal de fluorescence du NO en fonction de la température, et ce pour les transitions d'absorption $Q_1(14.5)$, $Q_1(21.5)$ et $Q_1(29.5)$. La température d'une flamme est particulièrement élevée, de l'ordre de 2000 K. On observe ainsi que les signaux de fluorescence issue des transitions $Q_1(14.5)$ et $Q_1(21.5)$ ont une forte dépendance en température, qui se manifeste par une décroissance de signal quasi-linéaire avec cette dernière. Par conséquent l'évaluation de la concentration NO nécessite une connaissance fine de la température locale. *A contrario*, la faible variation du niveau de fluorescence de NO pour la transition $Q_1(29.5)$ entre 1500 et 2500 K montre que celle-ci ne dépend pas de la température. Cette invariance en température simplifie la mesure de la fraction moléculaire du polluant NO, puisque celle-ci peut être réalisée sans correction des effets de température, tout en conservant une faible incertitude de mesure. À ce titre, la transition $Q_1(29.5)$ représente une bonne candidate pour réaliser le dosage du polluant NO en flamme. C'est d'ailleurs cette transition qu'a sélectionné Salaün et al. [64] pour mesurer la fraction molaire de NO sur une flamme kérosène-air à haute pression.

TABLE 2.2 – Liste non exhaustive de schémas d'excitation de LIF-NO étudiés dans la littérature [47]

Système électronique	Transition	Longueur d'onde d'excitation [nm]	Références
D - X (0,1)	$R_1(26), Q_1(32), P_1(39)$	193,38	[48]
$A^2\Sigma^+$ - $X^2\Pi^{1/2}$ (0,0)	$R_1 + Q_{21}(26.5), Q_2 + R_{12}(34.5), P_1(40.5)$	224,815	[49]
	$R_1 + Q_{21}(20), R_1 + Q_{21}(21.5)$	225,250	[49, 50]
	$Q_2(26.5)$	225,579	[49, 51, 52, 53, 54, 55]
	$Q_1(22)$	225,632	[46]
	$Q_1 + P_{21}(15), R_2(16)$	225,994	[56]
	$Q_1 + P_{21}(14), Q_2 + R_2(21), P_1(23.5), Q_1 + P21(14.5), Q_2 + R_{12}(20.5)$	226,034	[49, 51, 55, 56, 57, 58, 59]
	$R_1 + Q_{21}(7), P_2 + Q_1(28)$	226,057	[56]
	$Q_1 + P_{21}(13), R_2(15)$	226,069	[56]
	$Q_1 + P_{21}(12), Q_2 + R_{12}(20)$	226,103	[56]
	$P_2 + Q_{12}(1.5 - 4.5)$	226,872	[49]
$A^2\Sigma^+$ - $X^2\Pi^{1/2}$ (0,1)	$R_1 + Q_{21}(16.5), P - 2 + Q_{12}(32.5), P21(22.5), O_{12}(40.5)$	235,554	[60]
	$P_1(25.5), R_1 + Q_{12}(11.5), Q_1 + P_{21}(17.5)$	235,872	[60]
	$R_1 + Q_21(2.5), Q_1 + P_21(8.5), Q_2 + R_{12}(17.5)$	236,220	[60, 61]
$A^2\Sigma^+$ - $X^2\Pi^{1/2}$ (0,2)	$O_{12}(9), O_{12}(10)$	247,942	[50]

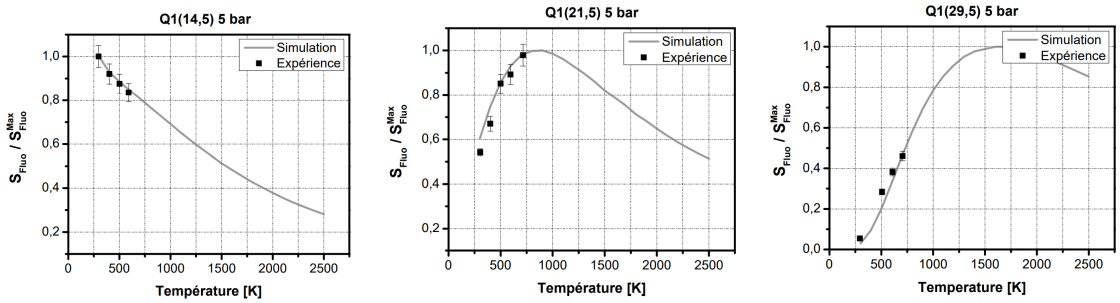

FIGURE 2.10 – Évolution de la fluorescence du NO en température pour les transitions $Q_1(14.5)$, $Q_1(21.5)$ et $Q_1(29.5)$ à une pression de 5 bar [65]

2.4.5.3 Interférences avec le dioxygène O_2

La fluorescence de la molécule de NO est susceptible d'être accompagnée de fluorescence parasite émanant d'autres espèces chimiques présents dans une flamme. Parmi ces espèces, la présence de dioxygène O_2 peut venir perturber la quantification du signal de fluorescence de NO en concentration. En effet, les bandes électroniques $B^3\Sigma - X^3\Sigma^+$ de Schumann-Runge de O_2 peuvent venir se chevaucher avec les bandes gamma de NO $A^2\Sigma^+$ - X^2, et ce sur un large domaine spectral [66]. Pour l'étude de flammes riches, l'impact de cette fluorescence parasite de O_2 reste toutefois négligeable en raison de la très faible teneur en O_2 présent de telles flammes.

2.4.5.4 Interférences avec le kérosène

Dans les bancs de combustion expérimentale destinés à l'étude de flammes aéronautiques, le kérosène injecté sous forme liquide est ensuite atomisé en fines gouttes et progressivement évaporé (partiellement ou complètement) dans la chambre de combustion. Or, la présence de kérosène dans la chambre de combustion peut perturber la quantification du monoxyde d'azote à plusieurs titres. Dans le cas d'une excitation du NO à 225,12 nm par la raie d'excitation $Q_1(29.5)$, la fluorescence du NO sur les bandes (0,0) jusqu'à (0,6) est comprise sur une gamme de longueurs d'onde comprises entre 225 et 300 nm. Cependant, la longueur d'onde d'excitation de la raie $Q_1(29.5)$ à 225,12 nm excite également les espèces aromatiques naturellement présentes dans le kérosène, dont la fluorescence se situe sur un large domaine spectral démarrant à partir 260 nm. Il y a donc chevauchement des signaux de fluorescence de NO et du kérosène (figure 2.11). De surcroît, la section efficace d'absorption du kérosène est particulièrement élevée à 225,12 nm, ce qui de fait amplifie la contribution de cette fluorescence parasite. D'autre part, en cas de fortes concentrations locales de kérosène (typiquement, en sortie d'injecteur), l'intensité de la nappe laser le long de la chambre sera considérablement atténuée, notamment si le kérosène est présent sous forme liquide. Là encore, le dosage du NO en flamme est tout simplement impossible en aval de la traversée de la nappe laser, si celle-ci a préalablement été absorbée par du kérosène.

2.5 Diagnostic laser avancé pour l'étude de flammes aéronautiques : Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV)

La Vélocimétrie par Imagerie de Particules, abrégée PIV (de l'anglais «*Particle Image Velocimetry*»), est une technique laser avancée permettant d'obtenir des champs bidimensionnels et instantanés de vitesse à deux ou trois composantes. Le principe de la technique PIV est représenté sur la figure 2.12 ci-dessous. L'écoulement à étudier est préalablement ensemencé de particules solides ou liquides faisant office de traceur. L'idée fondamentale consiste à considérer que la vitesse du fluide

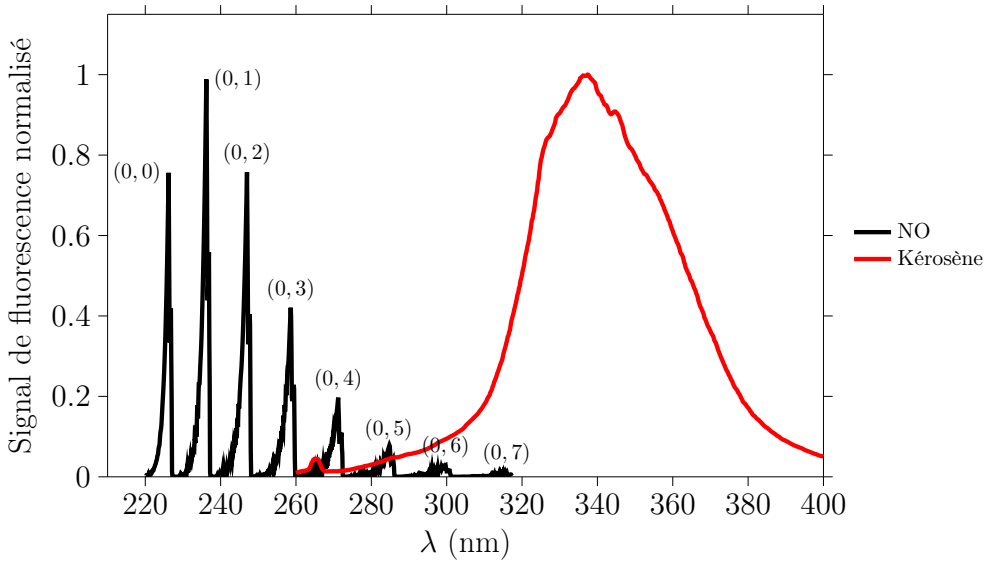

FIGURE 2.11 – Signaux de fluorescence normalisés du kérosène et du monoxyde d'azote, pour une excitation à 225,12 nm [67]

à analyser correspond à la vitesse de particules dispersées dans l'écoulement porteur. Une portion de ces particules est ensuite illuminée par une nappe laser. En vertu de la diffusion élastique de la lumière, les particules contenues dans le volume de la nappe laser renvoient la lumière du laser dans toutes les directions, révélant leur position. L'enregistrement du champ de particules illuminées est réalisé à l'aide d'une caméra. Pour construire un champ de vitesses, deux impulsions laser, écartées d'une durée fixée Δt et connue, sont émises. Une ou plusieurs caméras synchronisées avec le laser enregistrent les champs de particules au moment de ces excitations. L'analyse du déplacement de ces mêmes particules permet alors de remonter au champ de vitesse.

Evaluation du champ de vitesses

A son apparition au début des années 80, l'acquisition des images de PIV s'effectue sur un film photographique en illuminant l'écoulement à étudier à l'aide d'un laser (typiquement un laser à rubis). L'ajout d'une lentille convergente dont la distance focale est située dans le plan de la caméra fait apparaître des franges d'Young sur le film photographique. Celles-ci sont orthogonales à la direction du déplacement des particules, et leur interfrange est représentatif de la valeur de ce déplacement.

Avec l'arrivée sur le marché de sources lumineuses plus intenses et des caméras numériques, des algorithmes de traitement automatisés sont proposés et rencontrent un vif succès. Les images enregistrées sont traitées numériquement pour déterminer le déplacement des particules entre les deux pulsations laser. Les paires d'images obtenues sont découpées en zones appelées « fenêtres d'interrogation ». Le déplacement au sein de chaque fenêtre d'interrogation est déterminé au moyen de méthodes statistiques (corrélation croisée ou *cross-correlation* en anglais). Cette opération est réalisée pour chaque fenêtre d'interrogation. À partir de l'intervalle de temps pris entre les deux clichés, il devient dès lors possible de construire un champ 2D de vecteurs vitesse à deux composantes. La taille des fenêtres d'interrogation définit la résolution spatiale du champ de vitesses.

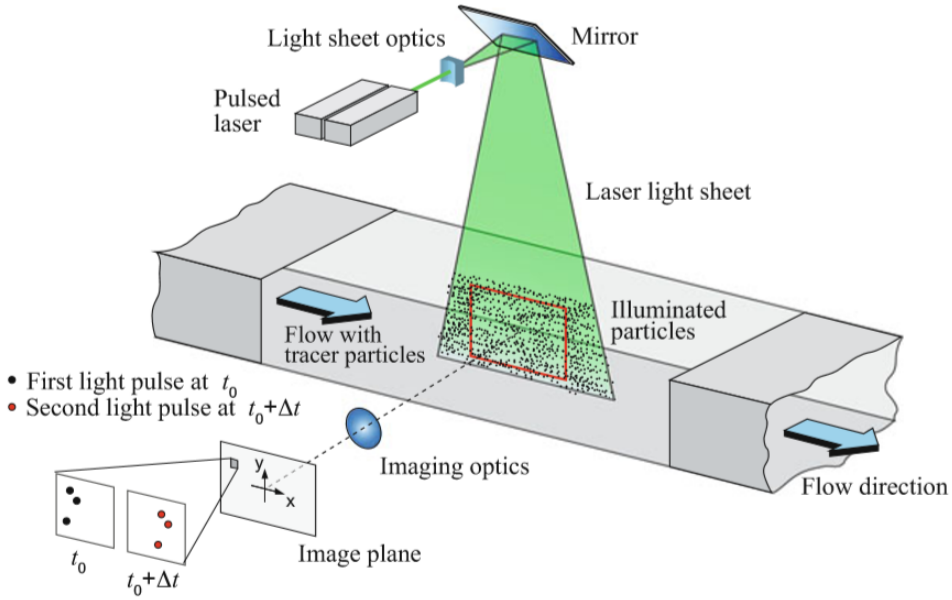

FIGURE 2.12 – Schéma de principe d'une mesure PIV [68]

Traceurs et ensemencement

La qualité d'une mesure PIV repose principalement sur l'ensemencement des particules et le choix du traceur utilisé, qui doit répondre à un certain nombre de propriétés physiques :

Taille des densité des particules Afin de décrire au mieux les fluctuations de l'écoulement porteur, l'inertie des particules doit être la plus faible possible. Autrement dit, la densité des particules doit être la plus proche possible de l'écoulement porteur, qui aurait pour effet de voir ces particules « couler », ou au contraire s'élever, à la manière d'une bulle d'air dans l'eau. De plus, leur diamètre doit être le plus petit possible pour limiter au maximum les forces de traînée.

Grande section efficace de diffusion En vertu de la théorie de Mie, les particules ensemencées doivent être suffisamment grandes pour être capable de diffuser suffisamment de lumière suite à leur excitation par l'impulsion laser.

Faible dispersion en tailles Ce critère de qualité est une conséquence des deux propriétés physiques mentionnées ci-dessus. L'ensemencement est un processus imparfait qui génère des particules de taille polydispersée. Bien que le diamètre moyen des particules puisse être satisfaisant, il est nécessaire d'éviter la présence de grosses particules au sein de l'écoulement. En effet, les capteurs CCD des caméras sont beaucoup plus sensibles aux grosses particules, qui diffusent bien plus de lumière. Cependant, ce sont également celles-ci qui sont le moins aptes à suivre les fluctuations de l'écoulement, et induisent de ce fait un biais de mesure conséquent.

Haute stabilité physico-chimique Pour l'étude de gaz, les traceurs liquides tels que l'huile végétale sont généralement préférés à leurs équivalents solides, notamment pour des raisons de nocivité. Cependant, leur stabilité n'est pas toujours assurée, notamment pour des écoulements réactifs et/ou à haute température au sein desquels les gouttes de liquides sont susceptibles de s'évaporer ou réagir avec le milieu. Les variations de pression modifient également la tension de surface des gouttes, entrainant alors des changements de distribution de tailles. Les applications dans ces types d'environnement imposent l'utilisation de particules

solides réfractaires, généralement des oxydes métalliques, en particulier l'oxyde de zirconium (ZrO_2). Celui-ci présente en effet l'avantage d'avoir un point de fusion particulièrement élevé (2700 K), bien que les particules de (ZrO_2) restent relativement lourdes. Les traceurs solides sont ensemencés au moyen de générateurs à cyclone ou à lit fluidisé.

De surcroît, la densité de l'ensemencement doit être équilibrée et homogène spatialement. Une concentration minimale de particules est indispensable pour obtenir des images de diffusion par les particules ensemencées exploitables par les algorithmes de corrélation croisée. Néanmoins, un excès de particules risque également limiter le bon fonctionnement des algorithmes par une « pollution » des fenêtres d'interrogation. Par expérience, on considère que la densité de particules est satisfaisante si la fenêtre d'interrogation contient environ 6 particules.

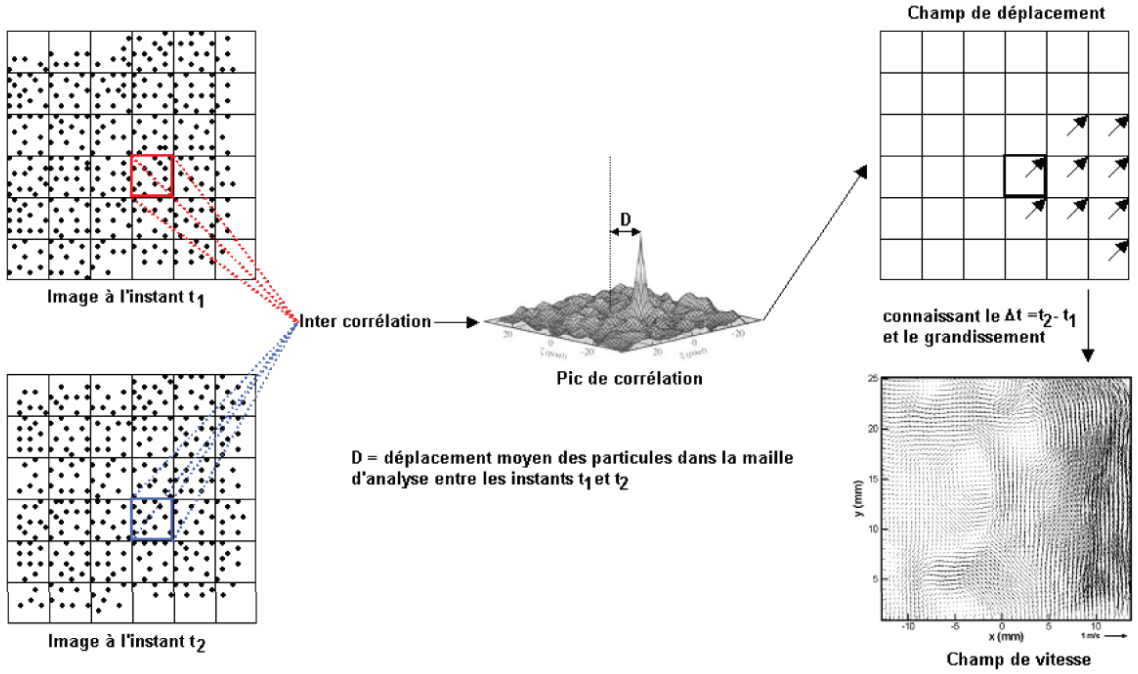

FIGURE 2.13 – Exemple d'évaluation de champ de vitesse par algorithme de corrélation croisée

2.6 Références

[1] P. R. BUSECK, K. ADACHI, A. GELENCSÉR, É. TOMPA et M. PÓSFAI. « Are black carbon and soot the same ? » In : (sept. 2012). DOI : 10.5194/acpd-12-24821-2012.

[2] Hope A. MICHELSEN, Meredith B. COLKET, Per-Erik BENGTSSON, Andrea D'ANNA, Pascale DESGROUX, Brian S. HAYNES, J. Houston MILLER, Graham J. NATHAN, Heinz PITSCH et Hai WANG. « A Review of Terminology Used to Describe Soot Formation and Evolution under Combustion and Pyrolytic Conditions ». In : *ACS Nano* 14.10 (sept. 2020), p. 12470-12490. DOI : https://doi.org/10.1021/acsnano.0c06226.

[3] Jonathan JOHNSSON. « Laser-Induced Incandescence for Soot Diagnostics : Theoretical Investigation and Experimental Development ». English. Thèse de doct. Combustion Physics, 2012. ISBN : 978-91-7473-397-6.

[4] J.A. Cole, J.D. Bittner, J.P. Longwell et J.B. Howard. « Formation mechanisms of aromatic compounds in aliphatic flames ». In : *Combustion and Flame* 56.1 (avr. 1984), p. 51-70. doi : https://doi.org/10.1016/0010-2180(84)90005-1.

[5] James A. Miller et Carl F. Melius. « Kinetic and thermodynamic issues in the formation of aromatic compounds in flames of aliphatic fuels ». In : *Combustion and Flame* 91.1 (oct. 1992), p. 21-39. doi : http://dx.doi.org/10.1016/0010-2180(92)90124-8.

[6] Michael Frenklach. « Reaction mechanism of soot formation in flames ». In : *Physical Chemistry Chemical Physics* 4.11 (fév. 2002), p. 2028-2037. doi : https://doi.org/10.1039/B110045A.

[7] Michael Frenklach, David W. Clary, William C. Gardiner et Stephen E. Stein. « Detailed kinetic modeling of soot formation in shock-tube pyrolysis of acetylene ». In : *Symposium (International) on Combustion* 20.1 (jan. 1985), p. 887-901. doi : https://doi.org/10.1016/S0082-0784(85)80578-6.

[8] Charles S. McEnally, Lisa D. Pfefferle, Burak Atakan et Katharina Kohse-Höinghaus. « Studies of aromatic hydrocarbon formation mechanisms in flames : Progress towards closing the fuel gap ». In : *Progress in Energy and Combustion Science* 32.3 (jan. 2006), p. 247-294. doi : https://doi.org/10.1016/J.PECS.2005.11.003.

[9] Michael Frenklach et Hai Wang. « Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation ». In : (1994), p. 165-192. doi : 10.1007/978-3-642-85167-4_10.

[10] Henning Bockhorn, Andrea D'Anna et Adel F. Sarofim. *Combustion generated fine carbonaceous particles*. Anglais. Sous la dir. d'Hai Wang. Universitätsverlag Karlsruhe, 2009. 720 p. isbn : 978-3-86644-441-6. doi : 10.5445/KSP/1000013744.

[11] P. Roth, O. Brandt et S. Von Gersum. « High temperature oxidation of suspended soot particles verified by CO and CO2 measurements ». In : *Symposium (International) on Combustion* 23.1 (jan. 1991), p. 1485-1491. doi : https://doi.org/10.1016/S0082-0784%2806%2980417-0.

[12] K. G. Neoh, J. B. Howard et A. F. Sarofim. « Soot Oxidation in Flames ». In : (1981), p. 261-282. doi : https://doi.org/10.1007/978-1-4757-6137-5_9.

[13] Haiqing Guo, Paul M. Anderson et Peter B. Sunderland. « Optimized rate expressions for soot oxidation by OH and O2 ». In : *Fuel* 172 (mai 2016), p. 248-252. doi : https://doi.org/10.1016/J.FUEL.2016.01.030.

[14] Robert H. Hurt, Adel F. Sarofim et John P. Longwell. « Gasification-induced densification of carbons : From soot to form coke ». In : *Combustion and Flame* 95.4 (déc. 1993), p. 430-432. doi : https://doi.org/10.1016/0010-2180(93)90009-R.

[15] Brian Stanmore, Jean-François Brilhac, Patrick Gilot et P. Gilot. « The Ignition and Combustion of Cerium Doped Diesel Soot ». In : (mars 1999). doi : https://doi.org/10.4271/1999-01-0115.

[16] Benoit B. Mandelbrot. *The Fractal Geometry of Nature*. Updated ed. San Francisco : W.H.Freeman & Co Ltd, 18 nov. 1982. 460 p. isbn : 978-0-7167-1186-5.

[17] Cunningham. « On the velocity of steady fall of spherical particles through fluid medium ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 83.563 (mars 1910), p. 357-365. doi : https://doi.org/10.1098%2Frspa.1910.0024.

[18] Paul A. Baron et Pramod Kulkarni. *Aerosol measurement : principles, techniques, and applications*. Sous la dir. de Klaus Willeke. 3rd ed. Hoboken, N.J : Wiley, 2011. 883 p. isbn : 978-0-470-38741-2.

[19] P. G. Gormley et M. Kennedy. « Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube ». In : (1949).

[20] S. K. Friedlander et William H. Marlow. « Smoke, Dust and Haze : Fundamentals of Aerosol Behavior ». In : *Physics Today* 30.9 (sept. 1977), p. 58-59. doi : https://doi.org/10.1063/1.3037714.

[21] David Y. H. Pui, Francisco Romay-Novas et Benjamin Y. H. Liu. « Experimental Study of Particle Deposition in Bends of Circular Cross Section ». In : *Aerosol Science and Technology* 7.3 (jan. 1987), p. 301-315. doi : https://doi.org/10.1080/02786828708959166.

[22] Da-Ren Chen et David Y.H. Pui. « Numerical and experimental studies of particle deposition in a tube with a conical contraction—Laminar flow regime ». In : *Journal of Aerosol Science* 26.4 (juin 1995), p. 563-574. doi : https://doi.org/10.1016/0021-8502%2894%2900127-K.

[23] Arnold Muyshondt, Andrew R. McFarland et N. K. Anand. « Deposition of Aerosol Particles in Contraction Fittings ». In : *Aerosol Science and Technology* 24.3 (jan. 1996), p. 205-216. doi : https://doi.org/10.1080/02786829608965364.

[24] L. Talbot, R. K. Cheng, R. W. Schefer et D. R. Willis. « Thermophoresis of particles in a heated boundary layer ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 101.4 (déc. 1980), p. 737-758. doi : https://doi.org/10.1017/S0022112080001905.

[25] Craig F. Bohren et Donald R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley, avr. 1998. doi : 10.1002/9783527618156.

[26] Richard A. Dobbins et Constantine M. Megaridis. « Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates ». In : *Applied Optics* 30.33 (20 nov. 1991), p. 4747. issn : 0003-6935, 1539-4522. doi : 10.1364/AO.30.004747. url : https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=ao-30-33-4747 (visité le 05/02/2020).

[27] L. A. Melton. « Soot diagnostics based on laser heating. » eng. In : *Applied optics* 23 (13 juill. 1984), p. 2201.

[28] Fengshan Liu, Gregory J. Smallwood et David R. Snelling. « Effects of primary particle diameter and aggregate size distribution on the temperature of soot particles heated by pulsed lasers ». In : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 93.1-3 (juin 2005), p. 301-312. doi : http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.08.027.

[29] H.A. Michelsen, C. Schulz, G.J. Smallwood et S. Will. « Laser-induced incandescence : Particulate diagnostics for combustion, atmospheric, and industrial applications ». In : *Progress in Energy and Combustion Science* 51 (déc. 2015), p. 2-48. issn : 03601285. doi : 10.1016/j.pecs.2015.07.001. url : https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0360128515300071 (visité le 05/02/2020).

[30] Z.W. Sun, D.H. Gu, G.J. Nathan, Z.T. Alwahabi et B.B. Dally. « Single-shot, Time-Resolved planar Laser-Induced Incandescence (TiRe-LII) for soot primary particle sizing in flames ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 35.3 (2015), p. 3673-3680. doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2014.07.066.

[31] A. V. Drakon, A. V. Eremin, E. V. Gurentsov, E. Yu. Mikheyeva et R. N. Kolotushkin. « Optical properties and structure of acetylene flame soot ». In : *Applied Physics B* 127.6 (mai 2021). doi : 10.1007/s00340-021-07623-8.

[32] Silvana De Iuliis, Francesco Cignoli, Sergio Benecchi et Giorgio Zizak. « Determination of soot parameters by a two-angle scattering–extinction technique in an ethylene diffusion flame ». In : *Applied Optics* 37.33 (nov. 1998), p. 7865. doi : https://doi.org/10.1364/AO.37.007865.

[33] J. Reimann, S.-A. Kuhlmann et S. Will. « 2D aggregate sizing by combining laser-induced incandescence (LII) and elastic light scattering (ELS) ». In : *Applied Physics B* 96.4 (sept. 2009), p. 583-592. issn : 0946-2171, 1432-0649. doi : 10.1007/s00340-009-3546-4. url : http://link.springer.com/10.1007/s00340-009-3546-4 (visité le 05/02/2020).

[34] Maxime Bouvier, Jerôme Yon, Franck Lefebvre, G. Godard, Aurélien Perrier, Gilles Cabot et Frederic Grisch. « Time-resolved 2D angular scattering of soot particles in atmospheric turbulent flames ». In : *39th International Symposium on Combustion*. Vancouver, Canada, juill. 2022. url : https://hal-normandie-univ.archives-ouvertes.fr/hal-03763465.

[35] Chloé Caumont-Prim, Jérôme Yon, Alexis Coppalle, François-Xavier Ouf et Kuan Fang Ren. « Measurement of aggregates' size distribution by angular light scattering ». In : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 126 (sept. 2013), p. 140-149. issn : 00224073. doi : 10.1016/j.jqsrt.2012.07.029. url : https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0022407312003639 (visité le 05/02/2020).

[36] M. Bouvier, J. Yon, G. Lefevre et F. Grisch. « A novel approach for in-situ soot size distribution measurement based on spectrally resolved light scattering ». In : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 225 (mars 2019), p. 58-68. issn : 00224073. doi : 10.1016/j.jqsrt.2018.12.018. url : https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0022407318306496 (visité le 05/02/2020).

[37] Jun-You Zhang, Hong Qi, Yi-Fei Wang, Bao-Hai Gao et Li-Ming Ruan. « Retrieval of fractal dimension and size distribution of non-compact soot aggregates from relative intensities of multi-wavelength angular-resolved light scattering ». In : *Optics Express* 27.2 (jan. 2019), p. 1613. doi : https://doi.org/10.1364/OE.27.001613.

[38] Sameer V. Naik et Normand M. Laurendeau. « Spectroscopic, calibration and RET issues for linear laser-induced fluorescence measurements of nitric oxide in high-pressure diffusion flames ». In : *Applied Physics B* 79 (2004), p. 641-651.

[39] John W. Daily. « Saturation effects in laser induced fluorescence spectroscopy ». In : *Appl. Opt.* 16.3 (mars 1977), p. 568-571. doi : 10.1364/AO.16.000568. url : http://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-16-3-568.

[40] Christian Brackmann, Vladimir A. Alekseev, Bo Zhou, Emil Nordström, Per-Erik Bengtsson, Zhongshan Li, Marcus Aldén et Alexander A. Konnov. « Structure of premixed ammonia + air flames at atmospheric pressure : Laser diagnostics and kinetic modeling ». In : *Combustion and Flame* 163 (2016), p. 370-381. issn : 0010-2180. doi : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.10.012. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0010218015003600.

[41] R. Sadanandan, M. Stöhr et W. Meier. « Flowfield-flame structure interactions in an oscillating swirl flame ». In : *Combustion, Explosion, and Shock Waves* 45.5 (2009), p. 518-529. issn : 1573-8345. doi : 10.1007/s10573-009-0063-z. url : https://doi.org/10.1007/s10573-009-0063-z.

[42] ALexandre Bresson. « Techniques d'imagerie quantitatives : fluorescence induite par laser appliquée aux écoulements et aux combustions ». Physique Atomique. Université de Rouen, 2000.

[43] Philippe Baranger. « Détection du kérosène par imagerie de fluorescence induite par laser, pour application sur foyer aéronautique ». Thèse de doct. Université Paris Sud-Paris XI, 2004.

[44] Björn Rossow. *Processus photophysiques de molécules organiques fluorescentes et du kérosène applications aux foyers de combustion : applications aux foyers de combustion.* 27 sept. 2011. URL : http://www.theses.fr/2011PA112176.

[45] Pierre Malbois, Erwan Salaün, Felix Frindt, Gilles Cabot, Lisa Bouheraoua Antoine Verdier, Stéphane Richard, Mourad Boukhalfa et Bruno Renou Frédéric Grisch. « Equivalence Ratio and Flame Structure Measurements in an LP Aero-engine Injection System under Relevant Operating Conditions ». In : (avr. 2017).

[46] Jerry M. Seitzman, George Kychakoff et Ronald K. Hanson. « Instantaneous temperature field measurements using planar laser-induced fluorescence ». In : *Optics Letters* 10.9 (sept. 1985), p. 439. DOI : https://doi.org/10.1364/OL.10.000439.

[47] Sylvain Legros. « Développement de diagnostics lasers femtosecondes pour l'étude de la combustion kérosène/air à haute pression (conditions aéronautiques) ». Thèse de doct. Déc. 2020.

[48] Peter Andresen, Gerard Meijer, Harald Schlüter, Heiner Voges, Andrea Koch, Werner Hentschel, Winfried Oppermann et Erhard Rothe. « Fluorescence imaging inside an internal combustion engine using tunable excimer lasers ». In : *Applied Optics* 29.16 (juin 1990), p. 2392. DOI : https://doi.org/10.1364/AO.29.002392.

[49] Wolfgang G. Bessler, Christof Schulz, Tonghun Lee, Jay B. Jeffries et Ronald K. Hanson. « Strategies for laser-induced fluorescence detection of nitric oxide in high-pressure flames I A–Xexcitation ». In : *Applied Optics* 41.18 (juin 2002), p. 3547. DOI : 10.1364/AO.41.003547.

[50] Christof Schulz, Volker Sick, Johannes Heinze et Winfried Stricker. « Laser-induced-fluorescence detection of nitric oxide in high-pressure flames with A–X(0, 2) excitation ». In : *Applied Optics* 36.15 (mai 1997), p. 3227. DOI : 10.1364/ao.36.003227.

[51] S.V. Naik et N.M. Laurendeau. « Spectroscopic, calibration and RET issues for linear laser-induced fluorescence measurements of nitric oxide in high-pressure diffusion flames ». In : *Applied Physics B* 79.5 (août 2004), p. 641-651. DOI : https://doi.org/10.1007/s00340-004-1604-5.

[52] D.Douglas Thomsen et Normand M Laurendeau. « Lif measurements and modeling of nitric oxide concentration in atmospheric counterflow premixed flames ». In : *Combustion and Flame* 124.3 (fév. 2001), p. 350-369. DOI : https://doi.org/10.1016/S0010-2180(00)00210-8.

[53] R. V. RAVIKRISHNA, SAMEER V. NAIK, C. S. COOPER et NORMAND M. LAURENDEAU. « QUANTITATIVE LASER-INDUCED FLUORESCENCE MEASUREMENTS AND MODELING OF NITRIC OXIDE IN HIGH-PRESSURE (6–15 ATM) COUNTERFLOW DIFFUSION FLAMES ». In : *Combustion Science and Technology* 176.1 (2004), p. 1-21. DOI : 10.1080/00102200490267331. eprint : https://doi.org/10.1080/00102200490267331. URL : https://doi.org/10.1080/00102200490267331.

[54] William P. Partridge, John R. Reisel et Normand M. Laurendeau. « Laser-saturated fluorescence measurements of nitric oxide in an inverse diffusion flame ». In : *Combustion and Flame* 116.1-2 (jan. 1999), p. 282-290. DOI : https://doi.org/10.1016/S0010-2180%2898%2900030-3.

[55] L. Pillier, M. Idir, J. Molet, A. Matynia et S. de Persis. « Experimental study and modelling of NOx formation in high pressure counter-flow premixed CH 4 /air flames ». In : *Fuel* 150 (juin 2015), p. 394-407. DOI : https://doi.org/10.1016/j.fuel.2015.01.099.

[56] Michael D. Di Rosa, Kurt G. Klavuhn et Ronald K. Hanson. « PLIF imaging of NO and O 2 in high-pressure flames ». In : (sept. 1995). Sous la dir. de Soyoung S. Cha et James D. Trolinger. doi : https://doi.org/10.1117/12.221555.

[57] Tonghun Lee, Jay B. Jeffries et Ronald K. Hanson. « Experimental evaluation of strategies for quantitative laser-induced-fluorescence imaging of nitric oxide in high-pressure flames (1–60bar) ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 31.1 (jan. 2007), p. 757-764. doi : https://doi.org/10.1016/J.PROCI.2006.07.090.

[58] K. Verbiezen, R.J.H. Klein-Douwel, A.P. van Vliet, A.J. Donkerbroek, W.L. Meerts, N.J. Dam et J.J. ter Meulen. « Quantitative laser-induced fluorescence measurements of nitric oxide in a heavy-duty Diesel engine ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 31.1 (jan. 2007), p. 765-773. doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2006.07.061.

[59] K. Verbiezen, R.J.H. Klein-Douwel, A.P. van Vliet, A.J. Donkerbroek, W.L. Meerts, N.J. Dam et J.J. ter Meulen. « Attenuation corrections for in-cylinder NO LIF measurements in a heavy-duty Diesel engine ». In : *Applied Physics B* 83.1 (fév. 2006), p. 155-166. doi : https://doi.org/10.1007/s00340-006-2141-1.

[60] Wolfgang G. Bessler, Christof Schulz, Tonghun Lee, Jay B. Jeffries et Ronald K. Hanson. « Strategies for laser-induced fluorescence detection of nitric oxide in high-pressure flames II A–X(0,1) excitation ». In : *Applied Optics* 42.12 (avr. 2003), p. 2031. doi : 10.1364/ao.42.002031.

[61] P. Jamette, V. Ricordeau, B. Deschamps et P. Desgroux. « Laser Induced Fluorescence Detection of NO in the Combustion Chamber of an Optical GDI Engine with A-X(0,1) Excitation ». In : (mai 2001). doi : https://doi.org/10.4271/2001-01-1926.

[62] C. Schulz, J.D. Koch, D.F. Davidson, J.B. Jeffries et R.K. Hanson. « Ultraviolet absorption spectra of shock-heated carbon dioxide and water between 900 and 3050 K ». In : *Chemical Physics Letters* 355.1-2 (mars 2002), p. 82-88. doi : http://dx.doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S0009-2614(02)00190-2.

[63] C. Schulz, J.B. Jeffries, D.F. Davidson, J.D. Koch, J. Wolfrum et R.K. Hanson. « Impact of UV absorption by CO2 and H2O on no lif inhigh-pressure combustion applications ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 29.2 (jan. 2002), p. 2735-2742. doi : http://dx.doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/S1540-7489(02)80333-9.

[64] E. Salaün, F. Frindt, G. Cabot, B. Renou, S. Richard, M. Cazalens, P. Malbois et F. Grisch. « Experimental Investigation on NO Pollutant Formation in High-Pressure Swirl-Stabilized Kerosene/Air Flames Using NO-, OH- and Kerosene-PLIF and PIV Laser Diagnostics ». In : (sept. 2020). doi : 10.1115/GT2020-14985.

[65] Pierre Gautier. « Dosage des polluants NO et CO par imagerie de fluorescence induite par laser dans les écoulements réactifs ». Thèse de doct. CORIA, déc. 2017.

[66] Brett E. Battles et Ronald K. Hanson. « Laser-induced fluorescence measurements of NO and OH mole fraction in fuel-lean, high-pressure (1–10 atm) methane flames : Fluorescence modeling and experimental validation ». In : *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 54.3 (sept. 1995), p. 521-537. doi : http://dx.doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/0022-4073(95)00020-L.

[67] Erwan Salaün. « Etude de la formation de NO dans les chambres de combustion haute pression kérosène/air par fluorescence induite par laser ». Thèse de doct. CORIA, 2017.

[68] M. Raffel, Christian Willert, Steve Wereley et Juergen Kompenhans. *Particle Image Velocimetry : A Practical Guide*. Jan. 2007. isbn : 978-3-540-72307-3. doi : 10.1007/978-3-540-72308-0.

Chapitre 3

Moyen d'essais et dispositifs expérimentaux

Sommaire

3.1 Salle d'essai 53
3.2 Banc de combustion haute pression HERON 54
3.2.1 Alimentation en air et en carburant 55
3.2.2 Description détaillée 55
3.3 Brûleur SIRIUS 57
3.3.1 Alimentation en air et en carburant 58
3.3.2 Description du brûleur 58
3.4 Références 60

Au début des années 2010, le laboratoire CORIA s'est doté d'infrastructures permettant l'étude de processus de combustion aéronautique dans des conditions sévères de pression et de température. Les financements qui ont permis la création de ce pôle d'innovations technologiques proviennent de la région Haute-Normandie et de l'Europe, au travers d'un projet de recherche FEDER (Fonds Européen de Développement Régional). L'objectif de ce pôle vise à mieux interpréter les mécanismes de formation de polluants dans les processus de combustion aéronautique, et, dans une plus grande mesure, participer au développement de systèmes de propulsion aéronautique plus vertueux. Les essais sont réalisés au C-CAAF (*Centre de Combustion pour l'Aéronautique du Futur*) localisé dans le bâtiment Magellan de l'INSA Rouen Normandie. La salle d'essai comprend deux installations d'essai, à savoir le brûleur semi-académique SIRIUS ainsi que le banc de combustion haute-pression HERON.

3.1 Salle d'essai

La figure 3.1 illustre la disposition des différents éléments constituant le C-CAAF. Chaque installation expérimentale est placée dans un local séparé, situé au centre de la salle d'essai. Les infrastructures dédiées à l'alimentation en air et en carburant des deux bancs de combustion sont situées à l'extérieur du bâtiment, notamment pour des raisons de sécurité. Les flux d'alimentation du banc de combustion HERON provenant de l'extérieur sont régulés par un ensemble de débitmètres fixés au fond de la salle d'essai (« zone débitmétrie »). Contrairement au banc de combustion HERON, l'air d'alimentation de la chambre de combustion SIRIUS provient du compresseur d'air installé au laboratoire CORIA. Les systèmes de mesure laser mobilisés pour l'application des différents diagnostics laser sont disposés dans les deux espaces situés entre les murs extérieurs du C-CAAF et les cloisons des cellules d'essai (« espace laser »). Enfin, un poste de pilotage insonorisé permet aux utilisateurs de contrôler les bancs de combustion et les différentes chaînes d'acquisition des mesures (baies d'analyse, lasers, caméras, etc..).

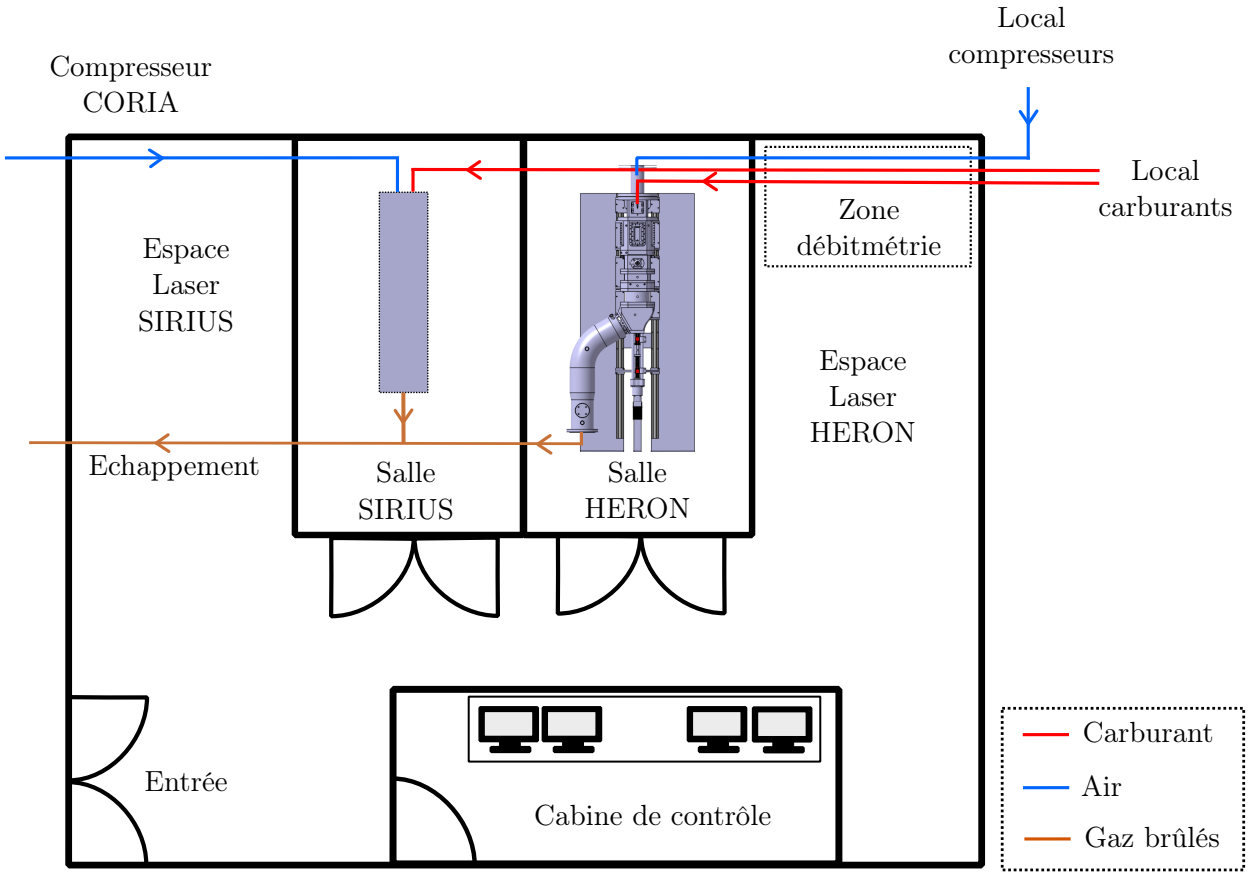

FIGURE 3.1 – Agencement du Centre de Combustion Avancée pour l'Aéronautique du Futur

3.2 Banc de combustion haute pression HERON

Le banc de combustion aéronautique HERON (*High prEssuRe facility for aerO-eNgines combustion*) est un banc d'essai mono-injecteur destiné à l'étude et à la compréhension des processus de combustion aéronautique. Le banc de combustion HERON a été intégralement imaginé, développé et usiné par le laboratoire CORIA. Celui-ci est en mesure de reproduire des conditions opératoires de fonctionnement (pression, température, débits), similaires à celles rencontrées dans des chambres réelles de combustion aéronautique.

TABLE 3.1 – Capacités opératoires du banc de combustion HERON

Grandeur	Gamme de fonctionnement	Unité
Pression	1 – 20	bar
Température air	300 – 900	K
Débit air	0 – 300	g/s
Débit kérosène	0 – 8	g/s
Puissance flamme	0 – 330	kW

3.2.1 Alimentation en air et en carburant

Les débits en air sont assurés par un dispositif de compresseur d'air à double étage installé dans un local annexe au bâtiment (figure 3.2). La pressurisation de l'air s'effectue tout d'abord par un premier compresseur à vis (1–10 bar), puis par un compresseur à piston (10–40 bar). La puissance électrique nécessaire au fonctionnement des deux compresseurs est de 230 kW. La température des compresseurs est régulée par un circuit d'eau connecté à un aérotherme placé à l'extérieur du local compresseur. L'air pressurisé est acheminé vers le banc de combustion par le biais de conduites souterraines. Avant d'être injecté dans le banc de combustion HERON, l'air d'alimentation est élevé en température par un réchauffeur électrique. D'une puissance de 300 kW, le dispositif est capable de préchauffer l'air d'alimentation du banc HERON jusqu'à 900 K.

A l'extérieur du bâtiment se trouve également une rangée de locaux fermés et sécurisés, dans lesquels sont stockées les bouteilles de gaz (méthane, éthylène, hydrogène, azote ...). Un local est dédié au stockage du kérosène, conditionné dans des fûts de 200 L. Tout comme pour l'air, le kérosène et les autres gaz sont acheminés vers la salle d'essai au travers de conduites souterraines. Une pompe de gavage extrait le kérosène du fût et alimente un circuit entre le local carburant et la salle d'essai. Le kérosène est entrainé et mis sous pression par une pompe volumétrique à engrenage permettant de fonctionner sur la gamme 0–8 g/s. La régulation de débit s'effectue au moyen d'un débitmètre à effet Coriolis.

FIGURE 3.2 – Vue aérienne des infrastructures alimentant le banc de combustion HERON (cadre rouge : banc de combustion HERON, cadre bleu : local compresseurs, cadre vert : local carburants)

3.2.2 Description détaillée

Le banc de combustion HERON se distingue par son architecture modulaire (figure 3.3). Montés sur rails, les différents blocs constitutifs du banc d'essai sont aisément amovibles, ce qui permet toute opération de maintenance ou de modification à la fois facile et rapide.

Veine d'entrée d'air Le premier élément du banc de combustion HERON est un tube en inox de

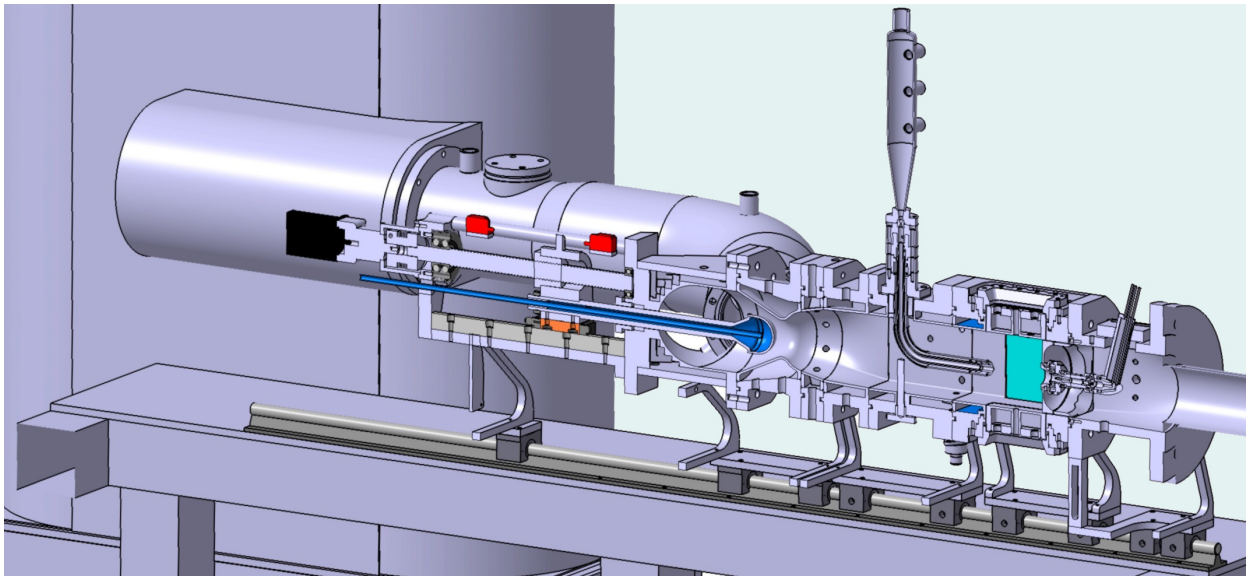

FIGURE 3.3 – Banc de combustion HERON

transition permettant de linéariser l'écoulement sortant à angle droit du réchauffeur. Ce tube contient une grille métallique allongée permettant de « casser » les grandes structures tourbillonnaires. Dans le but de limiter au maximum les pertes thermiques, ce tube est recouvert d'une housse d'isolation thermique. Sous l'effet de la pression et de l'expansion thermique des matériaux, la veine d'essai est susceptible de se déplacer lors de son fonctionnement. Or, ce déplacement n'est pas souhaitable pour les mesures optiques, puisque le plan de sortie de l'injecteur se retrouverait modifié. Afin de limiter les translations de l'installation le long des rails, l'entrée d'air de la veine d'essai est reliée à la sortie du réchauffeur par un compensateur de dilatation. De plus, la veine d'essai est liée au châssis du réchauffeur par des barres de traction.

Module injecteur Ce module est le support du mât de l'injecteur, qui permet de centrer ce dernier dans la veine d'essai et de le maintenir sur le fond de chambre. La forme profilée du mât d'injection assure l'alimentation en kérosène de l'injecteur, tout en minimisant les perturbations de l'écoulement d'air amont. Le bloc est équipé de capteurs de mesure de température (thermocouple type K), de pression statique (KELLER PR-33X) et de pression dynamique (KISTLER modèle 7001). Les informations extraites de ces capteurs sont exploitées pour définir des conditions d'entrée des expériences et de donner des données d'entrée pour les simulations numériques.

Module de visualisation Le bloc de visualisation est le module dédié aux diagnostics laser employés sur le banc de combustion HERON. Sa section interne est de 100 × 100 mm^2. Il comprend deux paires de hublots optiques. Les hublots optiques inférieur et supérieur du module de visualisation assurent le passage des nappes laser utilisées pour la mise en œuvre des diagnostics laser. Les dimensions utiles de ces hublots dits « de nappe » sont de 80 × 30 mm^2. Le bloc comporte également deux hublots latéraux, destinés à l'observation de la flamme, mais également à la collection des signaux de fluorescence, d'incandescence et/ou de diffusion de la lumière par différentes caméras d'analyse. Ces hublots latéraux ont pour dimensions 80 × 100 mm^2. Les quatre hublots optiques sont en silice fondue (grade KrF ou ArF), qui présente d'excellents coefficients de transmission de la lumière, en particulier dans l'UV. Les hublots optiques sont dimensionnés pour supporter les niveaux élevés de pression

de la chambre (max. 20 bar). Ceux-ci sont installés dans des brides métalliques. L'étanchéité entre la silice et le métal est assurée par des joints en graphite. Les hublots de visualisation représentent l'atout majeur qu'offre le banc de combustion HERON, au regard des fortes contraintes thermomécaniques imposées par les flammes kérosène/air.

Module capteur - sonde - dilution secondaire Ce module situé en aval du bloc de visualisation a de multiples fonctions. La première d'entre-elles est le support de capteurs de mesure, à savoir deux thermocouples de type K, deux capteurs de pression statique (KELLER PR-33X) ainsi qu'un capteur de pression dynamique (KISTLER 7001). De plus, le module comprend la bougie d'allumage de la chambre de combustion, qui a également été conçue et fabriquée au laboratoire. Au cours de cette thèse, le banc de combustion a été modifié pour réaliser les essais sur les systèmes d'injection de kérosène de type RQL. Cette adaptation passe par un remplacement du module initial assurant désormais deux fonctions supplémentaires : il fait office de support pour la sonde de prélèvement de suie qui doit être installée dans la chambre de combustion, et d'assurer un dispositif d'injection d'air secondaire. La modification du banc de combustion HERON ainsi que la conception de la sonde de prélèvement sont détaillées dans le chapitre 4.

Modules dilution col Il s'agit d'un ensemble de deux blocs intermédiaires situés entre le module de visualisation et la zone de positionnement du col de la chambre de combustion. Le premier module est une simple pièce de transition destinée à passer d'une section carrée à circulaire. Le second module contient huit canaux de dilution d'air orientés vers la sortie de la chambre de combustion. L'air injecté provient du circuit d'injection d'air pressurisé mais n'est pas préchauffé. L'apport de cet air à température ambiante dans la chambre de combustion vise avant tout à refroidir les gaz brûlés et à protéger le col de son agression thermique par ces gaz chauds.

Module col Ce bloc comprend un col sonique d'échappement à section variable. La section de sortie est ajustée à l'aide d'un pointeau refroidi par eau, assurant ainsi une pressurisation de la chambre de combustion. Une vis sans fin et un moteur pas-à-pas assurent la translation du pointeau.

Veine d'échappement En aval de la section de sortie de la chambre de combustion, les gaz brûlés transitent au travers d'une veine coudée à 45° refroidie par eau, avant d'atteindre l'épurateur. Il s'agit d'une installation grâce à laquelle les gaz d'échappement sont refroidis et dépollués, au travers d'un lavage des gaz chauds par un spray d'eau et par l'utilisation de divers échangeurs. Les gaz sont ensuite évacués à la sortie de cet épurateur vers l'extérieur du bâtiment, par le biais d'un extracteur. À l'entrée de la veine de sortie, une sonde de prélèvement permet d'extraire et d'analyser la concentration en O_2, CO_2, CO, HC et NO_x des fumées.

3.3 Brûleur SIRIUS

Le brûleur SIRIUS (pour l'acronyme *SwIrl stRatIfied bUrner for the study of Soot production*) est un brûleur semi-académique conçu pour produire une flamme prémélangée, swirlée et stratifiée éthylène-air ou méthane-air. Conçu et fabriqué par le laboratoire CORIA, ce brûleur est capable de produire une large gamme de topologies de flammes, en termes de nombres de swirl, de stratification et de teneur en suie. Fabriqué dans le cadre du projet européen SOPRANO (de l'anglais *Soot Processes and Radiation in Aeronautical inNOvative combustors*), le banc de combustion SIRIUS vise à étudier et à interpréter les mécanismes de formation de suie dans un environnement simplifié afin d'entreprendre des études à plus grande échelle sur le banc de combustion HERON. Bien que

le brûleur SIRIUS ne permette pas de réaliser une combustion kérosène/air, les flammes produites par celui-ci restent néanmoins similaires à des conditions opératoires rencontrées dans une flamme aéronautique, notamment par son caractère swirlé et stratifié. Par ailleurs, l'installation se distingue par sa grande flexibilité et sa facilité de prise en main. Dans le cadre de cette thèse, le brûleur semi-académique est utilisé dans les activités de recherche présentées dans les chapitres 5 et 6.

3.3.1 Alimentation en air et en carburant

Le brûleur est alimenté en air par le compresseur en air du laboratoire CORIA (8 bar). Un filtre à air est placé devant les débitmètres afin d'éliminer toute particule susceptible de les encrasser (huile compresseur, poussières...). L'éthylène utilisé pour alimenter le banc SIRIUS provient d'un cadre de bouteilles de gaz de 200 bar stocké dans le local carburant situé à l'extérieur du bâtiment (figure 3.2). Le gaz est détendu à 50 bar dès sa sortie du cadre, puis à 8 bar à l'entrée dans la salle d'essai.
Les conduites d'alimentation en air et en éthylène se subdivisent chacune en quatre canaux : un pour la couronne interne, un pour le poreux, et deux pour la couronne externe (tangentiel et axial). Chaque canal d'air et d'éthylène dispose de son propre débitmètre thermique Bronkhorst EL-FLOW®. Le prémélange des débits d'injection des couronnes interne et externe s'effectue avec des mélangeurs de gaz installés en aval des débitmètres. Les mélangeurs sont des dispositifs usinés au laboratoire CORIA. Ils consistent en des cylindres en inox au sein desquels des plaques métalliques ont été soudées, forçant le mélange entre l'éthylène et l'air.

3.3.2 Description du brûleur

Le brûleur SIRIUS présente une architecture similaire au brûleur swirlé et stratifié de Sandia Livermore [1]. Celui-ci est composé de trois tubes concentriques de 10, 20 et 29,5 mm (figure 3.4 b.). Le tube central est scellé à son extrémité supérieure par un bouchon en céramique (figure 3.4 a.). Cette pastille a pour rôle d'accroche-flamme par production d'une zone de recirculation des gaz chauds vers le centre de la flamme. Le tube extérieur est entouré par un milieu poreux de 93 mm de côté. À travers ce poreux passe un coflow garantissant la stabilité de la flamme. Deux mélanges éthylène-air indépendants sont injectés au travers des couronnes formées par les tubes concentriques. L'écoulement interne est axial (canal bleu sur la figure 3.4 b.), tandis que l'écoulement externe est swirlé. Ce dernier est composé de deux injections : une injection axiale $\dot{m}_{o,\ axial}$ orientée vers le haut, et une injection tangentielle $\dot{m}_{o,\ tang}$ (plan YZ), assurée par la pièce représentée en vert sur la vue 3D. Le taux de swirl de la flamme est fixé par le rapport d'injection des débits externes axial et tangentiel SFR :

$$\mathrm{SFR} = \frac{m_{o,tang}}{m_{o,tang} + m_{o,axial}} \tag{3.1}$$

Les richesses des écoulements interne et externe sont contrôlées avec des débitmètres indépendants. Le taux de stratification, de la flamme (nommé ici SR) correspond au rapport de richesse entre les écoulements interne Φ_i et externe Φ_o.

$$\mathrm{SR} = \frac{\Phi_i}{\Phi_o} \tag{3.2}$$

Les trois tubes concentriques sont fixés sur une base sphérique réglable leur permettant de s'incliner plus ou moins dans le plan ZY (figure 3.4 c) Le réglage est effectué avec des vis accessibles depuis la partie inférieure du brûleur.

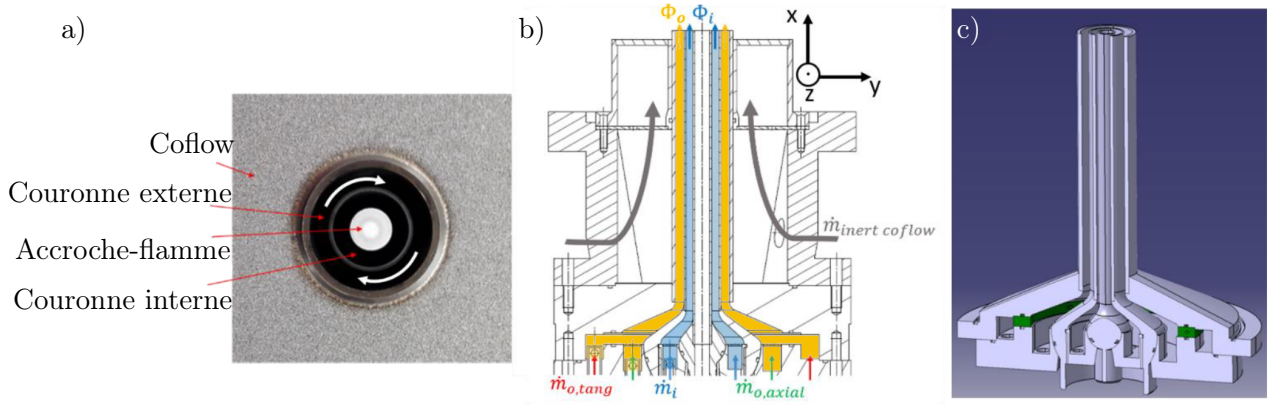

FIGURE 3.4 – Présentation du brûleur SIRIUS : (a) sortie du brûleur vue de dessus, (b) coupe transversale du brûleur, (c) représentation 3D

Le brûleur SIRIUS, en phase de développement continu, a tout d'abord fonctionné à pression atmosphérique, avant de se voir adjoindre un module assurant un fonctionnement à pression élevée (1-5 bar). Les deux versions du brûleur SIRIUS sont affichées sur la figure 3.5.

FIGURE 3.5 – Déclinaisons du brûleur SIRIUS. À gauche : en version atmosphérique. À droite, doté de son module à pression élevée

Brûleur atmosphérique

La sortie du brûleur se caractérise simplement par les deux couronnes d'injection de mélange combustible/air, entourées par une paroi poreuse de section carrée. La flamme est non confinée et est à pression atmosphérique. L'air injecté à travers le poreux stabilise la flamme, et limite les perturbations causées par les mouvements d'air dans la pièces (causées notamment par le système

d'extraction des gaz). L'allumage de la flamme est commandé par une bougie à arc déplaçable, pouvant rapidement entrer et sortir de la flamme grâce à un vérin pneumatique. Cette configuration laisse à l'utilisateur une totale liberté pour la mise en œuvre de diagnostics optiques, puisque les contraintes d'encombrement des caméras et des lasers sont totalement absentes.

Brûleur haute pression

À partir de la deuxième campagne de mesure (chapitre 6), le brûleur SIRIUS a été équipé d'un module de visualisation servant à étudier des flammes à pression élevée. Grâce à cette évolution technique, celui-ci est maintenant capable de produire une flamme jusqu'à une pression absolue de 5 bar. Grâce à son nouvel équipement haute-pression, le brûleur SIRIUS se veut être une miniaturisation du banc de combustion HERON.

Le bloc de visualisation installé sur le brûleur est une réplique à l'identique du bloc de visualisation installé sur le banc de combustion HERON. En aval de ce bloc de visualisation est installé un module regroupant un col sonique de section réglable par lequel sont extraits les gaz d'échappement. Tout comme le banc de combustion HERON, le maintien de la pression chambre est réalisé par un pointeau refroidi par eau. La position de ce pointeau est pilotée par un système de déplacement piloté par un moteur électrique. Bien que le principe du contrôle de la pression soit identique, le dispositif monté sur le brûleur SIRIUS possède un design simplifié : pas de pointeau axial avec une vis sans fin, ni de déviation d'écoulement par un échappement coudé à 45°. Cette fois-ci, le pointeau consiste en une tige comportant une extrémité hémisphérique, refroidie par eau. Contrairement au banc de combustion HERON, le pointeau du brûleur SIRIUS ne se déplace pas en direction du col, mais opère un mouvement de rotation de manière à approcher plus ou moins la tête du pointeau vers le col de sortie de la chambre de combustion. Par ailleurs, la veine d'échappement est droite, et les gaz brûlés en sortie de chambre ne sont pas refroidis par un système d'épurateur semblable à celui installé sur le banc de combustion HERON.

En raison de la faible puissance de flamme produite par cette chambre de combustion, la simplification de l'architecture de la chambre de combustion se traduit également par une absence de dilution secondaire dans la chambre ou à proximité du col. Enfin, l'installation ne comporte pas de système de refroidissement incluant un circuit fermé en eau, à l'instar du banc de combustion HERON, mais un refroidissement à eau en circuit ouvert.

3.4 Références

[1] Mark S. Sweeney, Simone Hochgreb, Matthew J. Dunn et Robert S. Barlow. « The structure of turbulent stratified and premixed methane/air flames I : Non-swirling flows ». In : *Combustion and Flame* 159.9 (sept. 2012), p. 2896-2911. DOI : 10.1016/j.combustflame.2012.06.001.

Chapitre 4

Adaptation du banc de combustion haute pression HERON

Sommaire

4.1 Module de post-combustion 61
4.2 Sonde de prélèvement de suie 62
4.2.1 État de l'art sur le prélèvement de particules dans les flammes 62
4.2.2 Méthodologie de prélèvement haute pression 63
4.2.3 Design final 64
4.2.4 Qualification du dispositif de prélèvement 65
4.3 Références 66

Le banc de combustion HERON du CORIA a fait l'objet d'une mise à jour technologique majeure en préparation des systèmes d'injection RQL à étudier. Cette modification du banc de combustion passe par l'ajout d'un dispositif de post-combustion, ainsi que par la fabrication et l'installation d'une sonde de prélèvement de suie placée au sein de la chambre de combustion.

4.1 Module de post-combustion

Le banc de combustion HERON, historiquement conçu pour étudier des systèmes d'injection fonctionnant en richesse pauvre, n'est de fait pas équipé d'un dispositif de post-combustion nécessaire à l'étude de flammes riches, telle que celles produites par les systèmes d'injection RQL. Pour des raisons de sécurité et environnementales, il est nécessaire d'installer un dispositif d'injection d'air secondaire en aval de la flamme riche. Cet air permet alors une combustion complète du kérosène imbrûlé issu de la zone riche. L'architecture modulaire du banc de combustion haute-pression HERON a permis l'ajout et/ou le remplacement d'un module avec simplicité. L'ajout d'un module spécifiquement dédié à cette post-dilution est considéré a priori comme une solution simple. Cependant, la chambre de combustion se retrouverait allongée, ce qui peut poser des contraintes d'encombrement à plus long terme, notamment lors de l'installation de modules supplémentaires. Le choix s'est donc porté sur un remplacement d'un module préexistant situé juste en aval du module de visualisation. Les fonctions initiales de ce module servaient à supporter la bougie d'allumage et différents capteurs de pression et de température. Il a été remplacé par un nouveau module assurant la même fonction, mais possédant également une fonction de post-dilution assuré par l'injection d'un flux d'air secondaire. Ce nouveau bloc fait également office de support pour fixer la future sonde de prélèvement dans la chambre de combustion.

L'ajout d'une injection d'air secondaire nécessite la création d'une nouvelle ligne d'air vers la chambre de combustion. Initialement, le banc de combustion HERON ne disposait que d'une ligne d'air primaire. Le débit d'air était alors régulé par un débitmètre Bronkhorst de 300 g/s. Sur les nouveaux systèmes d'injection RQL, le débit d'air secondaire représente environ 70% de l'air

total injecté dans la chambre de combustion. Il a donc été décidé d'allouer ce débitmètre massique de 300 g/s à l'injection d'air secondaire. Le débit d'air primaire est maintenant régulé par un débitmètre Bronkhorst de 100 g/s. Néanmoins, cette modification infrastructurelle lourde ampute considérablement les capacités du banc de combustion HERON, puisque 100 g/s d'air primaire peuvent seulement être injectés dans la chambre de combustion, contre 300 g/s auparavant. Pour pouvoir retourner aisément à la configuration d'origine sans opération de maintenance, une vanne quatre voies a été ajoutée pour permuter à souhait les flux d'air contrôlés par les débitmètres de 100 et 300 g/s.

4.2 Sonde de prélèvement de suie

L'analyse granulométrique par prélèvement de particules de suie dans la chambre de combustion constitue l'un des objectifs principaux de la thèse. Cependant, le banc de combustion HERON ne dispose pas, au début de ce projet, de dispositif ou de sonde assurant un prélèvement de particules de suie au cœur même de la chambre de combustion.

4.2.1 État de l'art sur le prélèvement de particules dans les flammes

Les dispositifs de prélèvement dans des flammes haute-pression recensés dans la littérature sont des sondes de prélèvement thermophorétiques, où les agrégats sont capturés par effet de thermophorèse sur des grilles refroidies. Les particules de suie déposées sur les grilles sont ensuite analysées avec un Microscope Electronique à Transition (MET). Ces dispositifs de prélèvement ont montré leur capacité à fonctionner à haute-pression : jusqu'à 10 bar pour la sonde multi-grilles de Vargas et Gülder [1], et 25 bar pour celle de Leschowski et al. [2]. Malheureusement cette technologie n'est pas adaptée pour mesurer des concentrations en particules, mais ne permet que de remonter à la taille et la morphologie des particules de suie. Les sondes de prélèvement de gaz dans les flammes proposées dans la littérature ne concernent que des flammes académiques, à pression atmosphérique. Mulla et al. [3] analyse par prélèvement les émissions de suie d'une flamme laminaire éthylène/air. La sonde utilisée consiste en un tube inox de diamètre 6 mm par lequel s'écoule de l'azote, percé d'un trou de prélèvement 1 mm. Les particules aspirées par la sonde sont alors refroidies et diluées par l'injection d'azote dans le tube. Ce concept de prélèvement fut initialement proposé par Kasper et al. [4], puis repris dans les travaux de Wang et al. [5], de Boyette et al. [6] ou encore de Musavi et al. [7]. Très récemment, Michelsen et al. [8] propose un dispositif de prélèvement composé de deux tubes en quartz, plongés dans une flamme de diffusion et disposés orthogonalement au sens de l'écoulement. Les deux extrémités sont séparées de 1 mm. Un jet d'azote sort du premier tube et est aspiré par le second. Par effet d'entrainement, les particules issues de la flamme sont aspirées et immédiatement diluées. En 2012, Heath [9] étudie les performances d'une sonde de prélèvement de gaz isocinétique, pour étudier les émissions de particules rejetées par les avions à haute altitude. La sonde est conçue pour prélever un écoulement à basse pression et basse température. Il s'agit d'une sonde coudée à 90°, comprenant un dispositif d'injection d'azote au niveau de l'entrée de la sonde. De Falco et al. [10] propose une sonde de prélèvement coudée placée dans l'échappement d'un brûleur RQL académique à pression atmosphérique. En 2022, une géométrie de sonde innovante est proposée par Shariatmadar et al. [11]. Il s'agit d'une sonde en quartz se caractérisant par une entrée très fine (de diamètre de 286 µm) qui limite la perturbation de l'écoulement, associé à un système de double dilution à l'azote interne. Bien qu'il ne s'agisse pas de sondes haute-pression, les géométries de sonde de Heath, de Falco et al. ou de Shariatmadar et al. suscitent l'intérêt de ne pas traverser l'écoulement de part en part, comme le font les sondes de Mulla et al. ou encore de Michelsen et al.. Tous les dispositifs mentionnés se caractérisent par un même dénominateur commun : une injection d'azote, indispensable au figeage chimique des particules de suie.

Des prélèvements de suie à haute température connus et effectués sur un banc de combustion aéronautique, seuls ceux réalisés dans le cadre du projet MERMOSE [12], sur le banc haute-pression M1 de l'ONERA sont disponibles. La sonde de prélèvement utilisée consiste alors en un tube percé de trous faisant face à l'écoulement et permettant ainsi d'avoir une distribution de taille moyennée spatialement sur toute la longueur de la sonde. Bien qu'il s'agisse de gaz de combustion censés représenter des conditions opératoires rencontrées en chambre de combustion aéronautiques, le prélèvement est uniquement réalisé à pression atmosphérique, la sonde étant disposée en avant du col de la chambre de combustion. Au regard de la littérature sur le prélèvement de suie, il est indéniable que la géométrie de cette sonde ait modifié l'aérosol prélevé. Tout d'abord, celle-ci ne présente pas de dispositif de dilution à l'azote à l'entrée de la sonde pour figer chimiquement l'aérosol. Celles-ci sont donc susceptibles d'évoluer au travers de la ligne de prélèvement. D'autre part, la longueur de la ligne de prélèvement est de 7 mètres avant le premier étage de dilution. En conséquence, les risques d'agrégation ou d'agglomération des particules de suie le long de la ligne de prélèvement sont maximums.

En conclusion de ce travail d'analyse bibliographique, il apparaît qu'aucune sonde de prélèvement proposée dans la littérature ne puisse satisfaire au besoin de la présente étude. La conception de la sonde de prélèvement HERON sera donc unique en son genre. Son dimensionnement devra s'inspirer des géométries de sonde fonctionnant à pression atmosphérique, tout en s'adaptant aux contraintes qu'imposent le prélèvement à haute-pression.

4.2.2 Méthodologie de prélèvement haute pression

La sonde de prélèvement HERON doit permettre une analyse des agrégats de suie, tout en garantissant un prélèvement représentatif : les agrégats ne doivent pas se retrouver piégés le long de la ligne de prélèvement, et la sonde ne doit pas privilégier certaines tailles d'agrégats de suie. À cela s'ajoute une contrainte supplémentaire : les appareils d'analyse de suie tels que le SMPS ne sont pas conçus pour fonctionner ni à haute-pression, ni à haute-température. Il est donc nécessaire de détendre et refroidir en amont l'aérosol prélevé, avant de l'acheminer vers l'appareil d'analyse. Au-delà d'une simple sonde, c'est donc toute une chaîne de prélèvement qui a dû être imaginée.

La stratégie de prélèvement retenue et appliquée sur le banc de combustion est la suivante : un échantillon de gaz à haute pression est extrait de la chambre de combustion par une sonde de prélèvement (figure 4.1). Cette sonde possède une géométrie pensée pour réaliser un prélèvement de particules de qualité satisfaisante. Au passage des agrégats dans la sonde, ceux-ci sont immédiatement dilués par un gaz inerte (typiquement de l'azote), et amenés à température ambiante. La différence de pression entre la chambre et l'échappement est telle que l'écoulement est sonique à l'endroit où la chute de pression est effectuée. La section de passage du fluide doit donc être faible, de manière à éviter qu'une grande partie de l'écoulement issu de la chambre de combustion ne soit évacué par la sonde. Le débit de fluide circulant dans la sonde est donc fixé par la présence d'un diaphragme situé en aval de la sonde de prélèvement. Celui-ci bloque à la fois le débit et assure la chute de pression nécessaire. À la sortie de la sonde, les particules de suie sont acheminées dans un réservoir « tampon », relié à l'échappement. Une portion du gaz est ensuite prélevée depuis le volume tampon, puis circule dans un second étage de dilution avant d'être envoyé vers le SMPS. D'autres appareils d'analyse des propriétés des particules de suie peuvent également être connectés à ce volume tampon. Le gaz non utilisé est renvoyé à l'échappement.

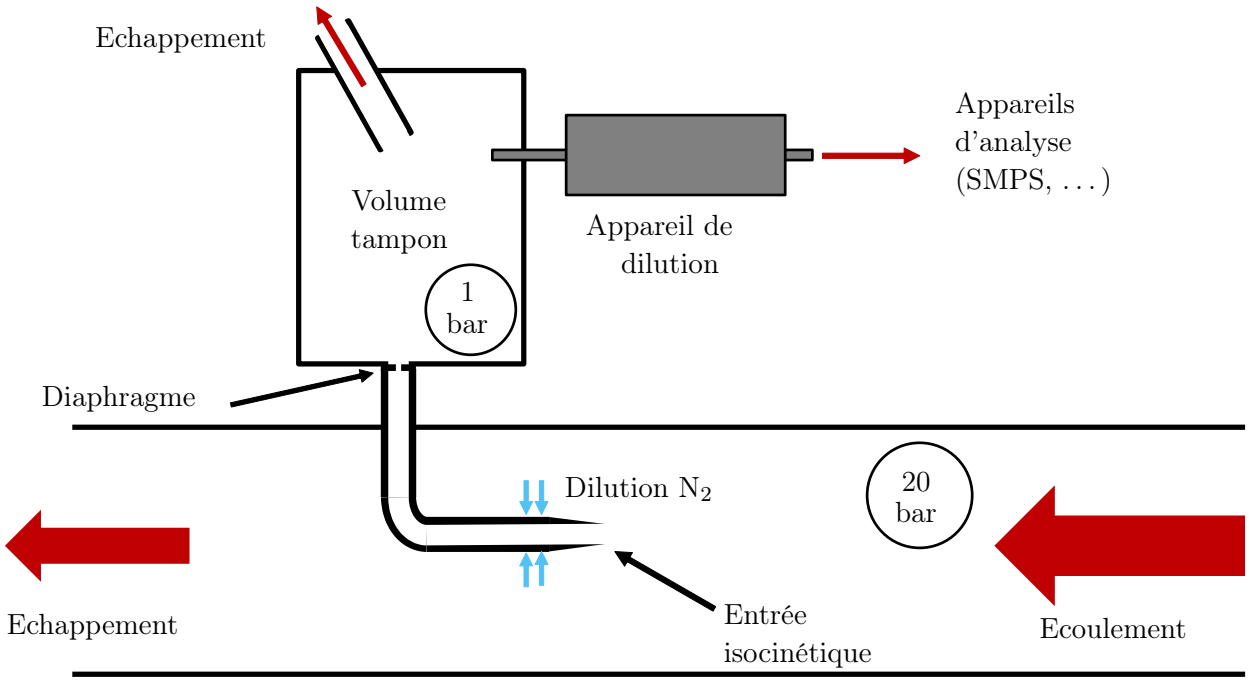

FIGURE 4.1 – Schéma de principe du dispositif de prélèvement de suie sur le banc de combustion HERON

4.2.3 Design final

Les choix techniques décidés pour la sonde résultent d'un compromis à assurer entre les contraintes mécaniques et thermiques du banc de combustion, et celles métrologiques pour analyser les particules de suie. La géométrie de la sonde de prélèvement nouvellement usinée est représentée sur la figure 4.2. Inspirée de la géométrie de Heath [9], la sonde de prélèvement HERON consiste en une conduite coudée en acier inoxydable, de diamètre interne 6 mm. L'entrée de la sonde a pour diamètre interne 5 mm. Afin de figer chimiquement les particules de suie pénétrant dans la sonde de prélèvement, une couronne d'injection d'azote est placée au plus près de l'entrée de la sonde. L'azote y est acheminé au travers d'une enveloppe coaxiale à la conduite interne. L'ensemble est protégé thermiquement de l'agression thermique et chimique de la flamme grâce à une seconde enveloppe dans laquelle circule de l'eau de refroidissement. Cette même eau est acheminée au plus proche de l'entrée de sonde par l'intermédiaire de quatre capillaires, de diamètre interne 1,7 mm. En dépit de la complexité de la sonde de prélèvement, avec notamment une conduite centrale, deux enveloppes et quatre capillaires d'eau, celle-ci présente un encombrement contenu, avec un diamètre extérieur de 20 mm uniquement.
Pour limiter le débit total de gaz azote+gaz brûlés passant au travers de la sonde, un diaphragme de diamètre 1 mm est placé entre la sonde et le volume tampon. Au besoin, ce diaphragme est interchangeable par un diaphragme de section différente. Changer la section de passage permet de modifier le débit de gaz brûlés aspirés, et donc de jouer sur la vitesse d'entrée des gaz dans la sonde, ou bien sur le taux de dilution des gaz brûlés dans la sonde. Le diaphragme est également amovible pour permettre un prélèvement de particules de suies à pression atmosphérique.

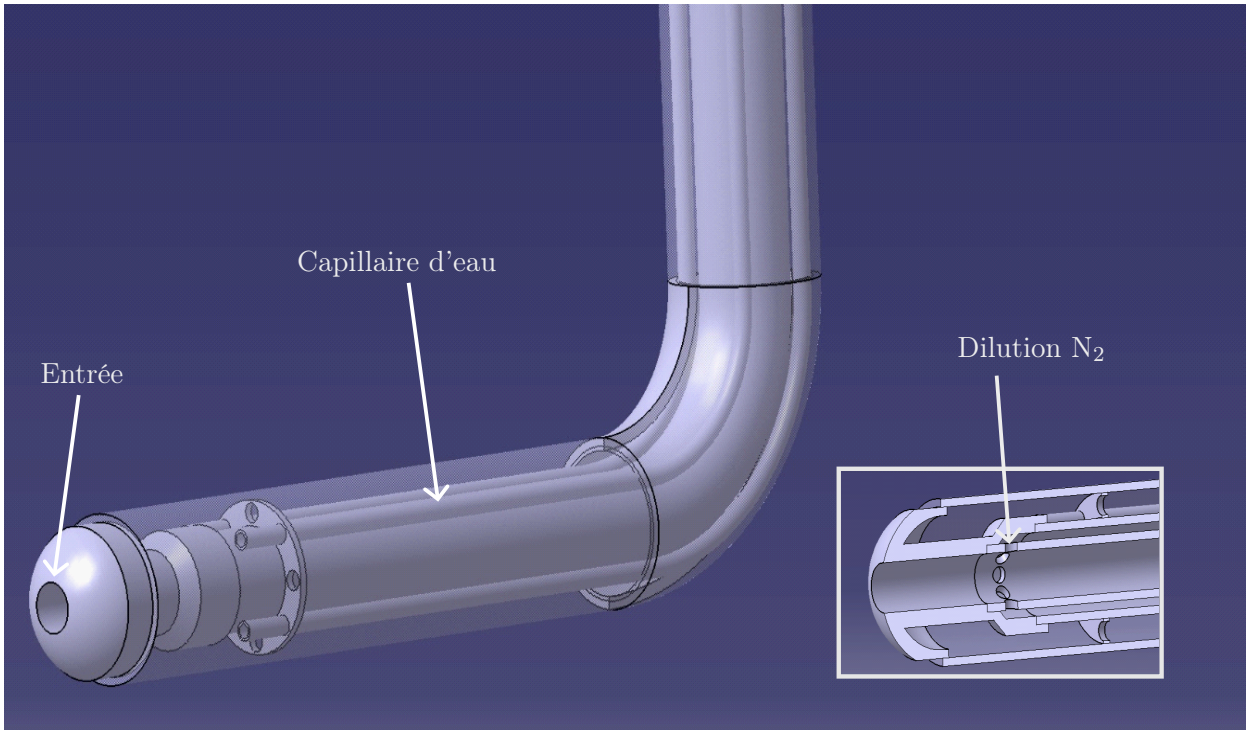

FIGURE 4.2 – Sonde de prélèvement HERON

4.2.4 Qualification du dispositif de prélèvement

L'évaluation de la concentration en particules fines de suie prélevée dans la chambre de combustion nécessite de connaître le taux de dilution des gaz brûlés circulant dans la sonde de prélèvement. Le taux de dilution DF de la sonde est alors défini comme le rapport des débits de gaz brûlés et d'azote de dilution :

$$\mathrm{DF} = \frac{\dot{m}_{N_2}}{\dot{m}_{tot} - \dot{m}_{N_2}} \tag{4.1}$$

$\dot{m}_{N_2}$ représente le débit d'azote injecté dans la sonde, et $\dot{m}_{tot}$ le débit total passant au travers du diaphragme situé entre la sonde et le volume tampon. Le débit d'azote de dilution $\dot{m}_{N_2}$ est connu et contrôlé par un régulateur Bronkhorst. En revanche, le débit de gaz total $\dot{m}_{tot}$, reste à déterminer. La méthode choisie ici pour estimer le débit total est purement empirique, illustrée par la figure 4.3 a.). Le principe consiste à faire varier le débit d'azote injecté et d'observer son effet sur la température du mélange azote+gaz brûlés, mesurée avec un thermocouple placé en amont du diaphragme.
Lorsque le débit d'azote injecté est inférieur au débit total aspiré par la sonde (région bleue), la valeur de la température des gaz au passage du col T_{col} est naturellement située entre la température des gaz dans la chambre de combustion et la température d'injection d'azote. La température d'injection d'azote correspond à la température de l'eau, c'est-à-dire 30°C. Or, en augmentant le débit d'azote injecté, il est observé que la température diminue linéairement jusqu'à tendre vers la valeur limite de 30°C. Lorsque le débit d'azote injecté devient supérieur au débit total aspiré par la sonde (région rouge sur la figure 4.3 a.), alors la sonde de prélèvement est « saturée », et injecte cette fois de l'azote dans la chambre de combustion. Au-delà de ce débit limite, la température des gaz au col reste constante et égale à 30°C. La fonction $\dot{m}_{tot}(T_{col})$ décrit ainsi une ligne verticale comme celle représentée sur la ligne pointillée de la figure 4.3 a.).
Cette procédure empirique est appliquée aux mesures allant de 3 à 8 bar pour différents systèmes

d'injection. Les résultats d'étalonnage en dilution sont présentés sur la figure 4.3 b). On remarque que le débit total de la sonde évolue linéairement avec la pression et est indépendant du système d'injection.

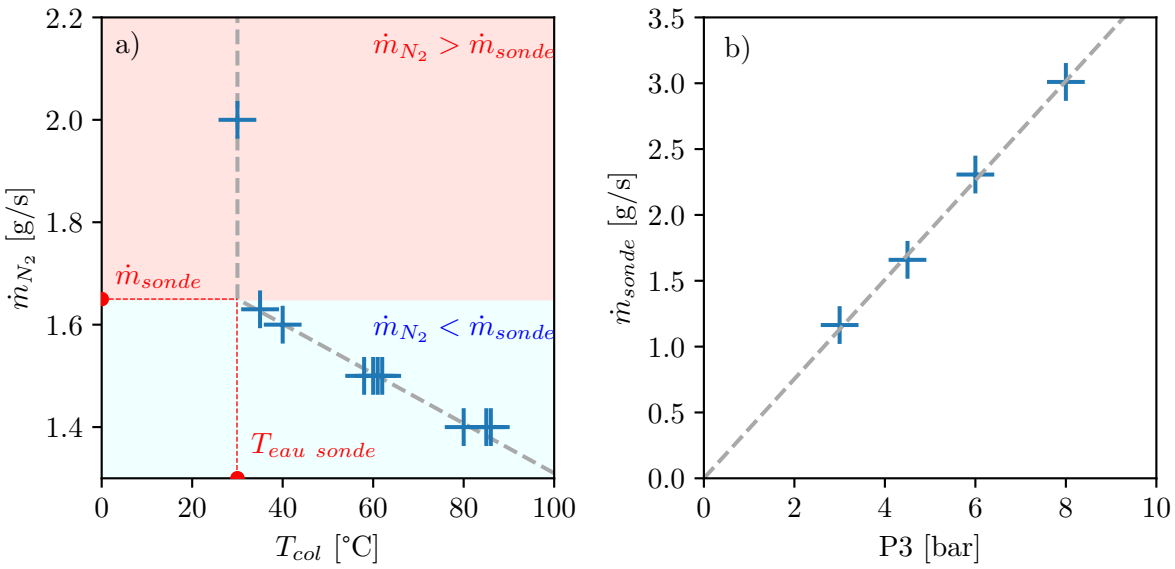

FIGURE 4.3 – Qualification de la sonde de prélèvement : a) Détermination du débit passant dans la sonde par méthode empirique, b) Débit total sonde mesuré en fonction de la pression chambre

4.3 Références

[1] Alex M. VARGAS et Ömer L. GÜLDER. « A multi-probe thermophoretic soot sampling system for high-pressure diffusion flames ». In : *Review of Scientific Instruments* 87.5 (mai 2016), p. 055101. DOI : https://doi.org/10.1063/1.4947509.

[2] Martin LESCHOWSKI, T. DREIER et Christof SCHULZ. « Soot measurements in premixed high-pressure flames using light emission, TiRe-LII, laser extinction, and TEM-sampling ». In : juin 2014.

[3] I.A. MULLA, J. YON, D. HONORÉ, C. LACOUR, A. CESSOU et B. LECORDIER. « Comprehensive characterization of sooting butane jet flames, Part 2 : Temperature and soot particle size ». In : *Combustion and Flame* 233 (nov. 2021), p. 111596. DOI : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2021.111596.

[4] M. KASPER, K. SIEGMANN et K. SATTLER. « Evaluation of an in situ sampling probe for its accuracy in determining particle size distributions from flames ». In : *Journal of Aerosol Science* 28.8 (déc. 1997), p. 1569-1578. DOI : https://doi.org/10.1016/S0021-8502(97)00031-1.

[5] Hai WANG, Sanghoon KOOK, Jeffrey DOOM, Joseph OEFELEIN, Jiayao ZHANG, Christopher SHADDIX, Robert SCHEFER et Lyle PICKETT. « Understanding and predicting soot generation in turbulent non-premixed jet flames. » In : (oct. 2010). DOI : 10.2172/1011219.

[6] Wesley Boyette, Snehaunshu Chowdhury et William Roberts. « Soot Particle Size Distribution Functions in a Turbulent Non-Premixed Ethylene-Nitrogen Flame ». In : *Flow, Turbulence and Combustion* 98.4 (fév. 2017), p. 1173-1186. doi : 10.1007/s10494-017-9802-5.

[7] Zari Musavi, Yao Zhang, Etienne Robert et Klas Engvall. « Experimental and Numerical Investigation of Flow Field and Soot Particle Size Distribution of Methane-Containing Gas Mixtures in a Swirling Burner ». In : *ACS Omega* 7.1 (jan. 2022), p. 469-479. doi : 10.1021/acsomega.1c04895. url : https://doi.org/10.1021/acsomega.1c04895.

[8] Hope A. Michelsen, Emeric Boigné, Paul E. Schrader, K. Olof Johansson, Matthew F. Campbell, Ray P. Bambha et Matthias Ihme. « Jet-entrainment sampling : A new method for extracting particles from flames ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* (sept. 2022). doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2022.07.140.

[9] Christopher M. Heath. « Design and Analysis of an Isokinetic Sampling Probe for Submicron Particle Measurements at High Altitude ». In : 2012.

[10] Gianluigi De Falco, Ingrid El Helou, Pedro M. de Oliveira, Mariano Sirignano, Ruoyang Yuan, Andrea D'Anna et Epaminondas Mastorakos. « Soot particle size distribution measurements in a turbulent ethylene swirl flame ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 38.2 (2021), p. 2691-2699. doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2020.06.212.

[11] H. Shariatmadar et R.P. Lindstedt. « Soot particle size distributions in turbulent opposed jet flames with premixed propene–air reactants ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* (sept. 2022). doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2022.07.201.

[12] David Delhaye, François-Xavier Ouf, Daniel Ferry, Ismael K. Ortega, Olivier Penanhoat, Samuel Peillon, François Salm, Xavier Vancassel, Cristian Focsa, Cornelia Irimiea, Nadine Harivel, Bruno Perez, Etienne Quinton, Jérôme Yon et Daniel Gaffie. « The MERMOSE project : Characterization of particulate matter emissions of a commercial aircraft engine ». In : *Journal of Aerosol Science* 105 (mars 2017), p. 48-63. doi : https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2016.11.018.

Chapitre 5

Étude comparative de mesure de taille et de concentration de particules de suie par prélèvement et par diffusion angulaire sur une flamme turbulente à pression atmosphérique

Sommaire

5.1 Mesures de taille de suie par prélèvement et analyse SMPS 70
5.1.1 Brûleur 70
5.1.2 Dispositif expérimental 71
5.1.3 Résultats et discussion 76
5.2 Évaluation de tailles et de concentrations de suie par technique de diffusion angulaire 78
5.2.1 Dispositif expérimental 78
5.2.2 Méthodologie d'évaluation des tailles et concentrations en particules 79
5.2.3 Résultats 81
5.3 Comparaison entre mesures in- et ex-situ 83
5.3.1 Conversion de diamètre de mobilité vers diamètre de giration 83
5.3.2 Traitement statistique 86
5.3.3 Résultats et discussions 87
5.4 Conclusion 90
5.5 Références 90

La sonde de prélèvement nouvellement conçue dans le cadre de cette thèse a été conçue pour réaliser des prélèvements de particules de suie permettant leur analyse en termes de taille et concentration. Dans l'optique de valider le principe de fonctionnement de la sonde, une campagne de mesures comparatives de taille et de concentration en particules a été réalisée sur une flamme turbulente à pression atmosphérique. Dans le cadre de cette étude, des prélèvements de particules de suie ont été réalisés à l'aide d'un dispositif simplifié. Bien que leurs géométries soient très différentes, la sonde de prélèvement utilisée et celle installée sur le banc de combustion HERON reposent sur le même principe de fonctionnement : celles-ci se caractérisent notamment par la présence d'une injection d'azote, destinée à inerter et diluer l'aérosol prélevé. Les distributions de tailles ainsi obtenues sont ensuite confrontées à des mesures de tailles et de concentrations réalisées avec le diagnostic de diffusion angulaire haute-cadence.

5.1 Mesures de taille de suie par prélèvement et analyse SMPS

Le prélèvement de particules de suie requiert une attention toute particulière : de nombreux mécanismes physico-chimiques sont en effet susceptibles de modifier leur taille et/ou leur composition chimique [1]. En effet, des agrégats de suie prélevés au sein d'une flamme, peuvent continuer de réagir chimiquement (croissance, oxydation) le long de la ligne de prélèvement. Même si l'aérosol prélevé est inerte, les particules ultrafines (<100 nm) possèdent un mouvement brownien et peuvent potentiellement se heurter entre-elles et s'agréger, menant à la fois à une croissance et une diminution de la concentration volumique des particules. Ce processus augmente naturellement si la concentration en particules est élevée. Par conséquent, il convient de figer chimiquement les agrégats de suie, et les diluer le plus tôt possible et de manière suffisante, de sorte à éviter toute agrégation le long de la ligne de prélèvement. Par ailleurs, une autre attention doit être portée sur le transport des particules vers l'appareil de mesure. En raison de divers phénomènes physico-chimiques, ces dernières peuvent se coller à la paroi de la ligne de prélèvement et donc ne pas être prise en compte lors de la mesure. L'importance de ces phénomènes varie en fonction de la taille des agrégats. Par exemple, les agrégats les plus lourds peuvent, en raison de leur inertie, heurter les parois internes de la ligne de prélèvement en cas de changement de direction trop abrupt causé par l'utilisation de coudes ou de diaphragmes. En revanche, les agrégats les plus légers, caractérisés par leur mouvement brownien, sont plutôt sujets aux phénomènes de pertes thermophorétiques ainsi qu'aux pertes par diffusion. Pour résumer, le dispositif de prélèvement doit être conçu de manière à limiter les pertes de particules dans la gamme de taille correspondant à l'aérosol prélevé, et éviter toute réaction chimique ou agrégation au sein de la ligne de prélèvement. Dans le cadre de cette campagne de mesure, une procédure de prélèvement de suie a été développée et évaluée pour réaliser des prélèvements les plus représentatifs possibles.

5.1.1 Brûleur

Les flammes étudiées dans le cadre de cette étude comparative sont produites par le brûleur swirlé et stratifié éthylène/air SIRIUS, disponible au laboratoire. L'étude est réalisée sur trois points de fonctionnement, appelés ici P1, P2 et P3. Les paramètres de ces points sont décrits dans le tableau 5.1. Ils sont définis pour présenter un même facteur de stratification (richesse interne de 2,1 et richesse externe de 0,74). Seul le nombre de swirl SFR varie, passant de 0,2 pour P1 à 0,3 pour P3.

Table 5.1 – Points de fonctionnements étudiés

PF	Φ_i	Φ_e	SR	SFR
P1	2,21	0,74	3	0,20
P2	2,21	0,74	3	0,25
P3	2,21	0,74	3	0,30

Il en résulte une modification significative de la structure de flamme et de l'émission en suie, comme l'illustrent les images des flammes aux points de fonctionnement (figure 5.1).

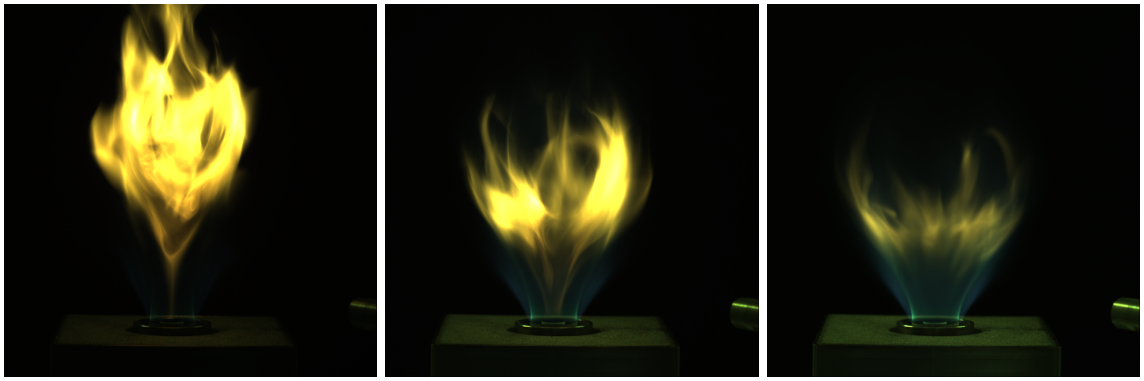

FIGURE 5.1 – Emission naturelle des points de fonctionnement P1, P2 et P3

5.1.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental dédié à la mesure de particules fines par mesure ex-situ est présenté sur la figure 5.2. Les gaz brûlés sont prélevés par un système semblable à celui proposé par Mulla et al. [2] ou Boyette et al. [3]. La sonde de prélèvement, faisant également office de premier étage de dilution, est un tube en inox de diamètre 6 mm et de longueur 500 mm. Celui-ci présente un trou de prélèvement de diamètre 1 mm orienté vers le bas, par lequel les gaz brûlés sont aspirés. De l'azote, destiné à figer l'aérosol chimiquement et à le diluer dès son entrée dans la ligne de prélèvement, est injecté à l'extrémité du tube. Le débit d'azote est ajusté de manière à minimiser tout phénomène d'agrégation le long de la ligne de prélèvement. Une pompe à vide est utilisée pour forcer l'aspiration des gaz brûlés dans la sonde de prélèvement. La pression d'aspiration est contrôlée avec un capteur de pression différentielle et est maintenue constante pendant toute la durée de prélèvement des particules de suie. Le deuxième étage de dilution est assuré par un appareil commercial Dekati® FPS-4000. Tout le dispositif est monté sur des platines de translation, permettant de réaliser une analyse des gaz à diverses positions dans la flamme réparties sur une hauteur allant de 25 à 75 mm et sur une distance à l'axe du brûleur comprise entre 0 à 40 mm. L'aérosol est ensuite acheminé vers un spectromètre de mobilité électrique (SMPS TSI® 3082), capable de mesurer la distribution en taille des particules prélevées.

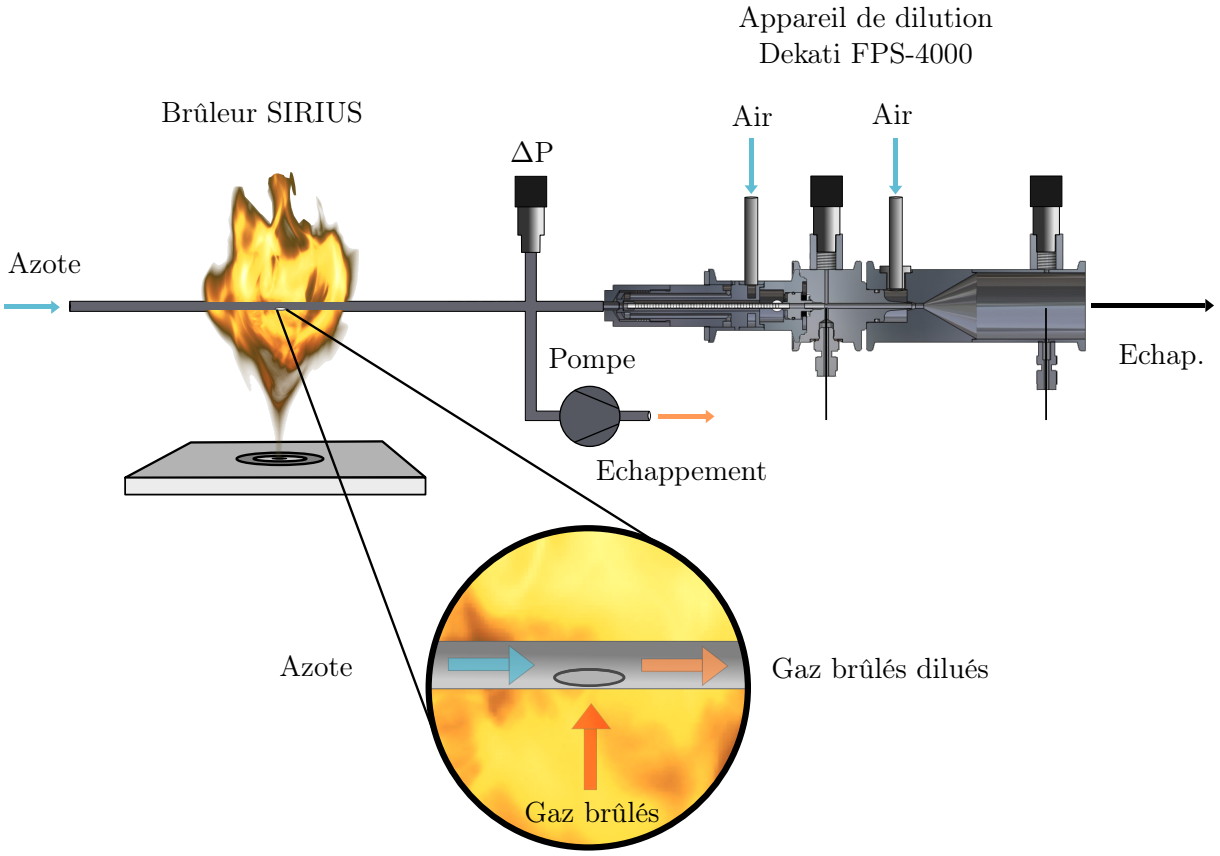

FIGURE 5.2 – Dispositif de prélèvement

5.1.2.1 Tests de convergence

Afin d'assurer des mesures représentatives, le dispositif de prélèvement de suie doit satisfaire le cahier des charges spécifié dans le tableau 5.2 ci-dessous. Étant donné que les particules de suie sont collectées directement dans la zone de réaction de la flamme, il est nécessaire de les figer chimiquement dès leur entrée dans la sonde de prélèvement par mélange avec un gaz inerte. Le gaz utilisé ici est de l'azote et non de l'air. En effet, l'air est composé d'oxygène à environ 21%, lequel pourrait potentiellement réagir avec les agrégats de suie. D'un autre côté, la sonde de prélèvement de suie doit être idéalement la plus compacte possible pour limiter au maximum la perturbation de la flamme induite par sa présence. La solution proposée dans le papier de Mulla et al., à savoir un tube inox de diamètre extérieur 6 mm qui traverse la flamme de part en part, semble être un bon compromis en termes d'efficacité de figeage des gaz brûlés, de compacité et de tenue thermique de la sonde.

Bien qu'un taux de dilution élevé soit suffisant pour figer chimiquement les gaz brûlés, celui-ci peut ne pas éviter l'agrégation des particules inertes. Comme mentionné précédemment, l'aérosol a naturellement tendance à s'agréger, et ce d'autant plus si celui-ci est particulièrement concentré. L'agrégation des particules de suie a pour effet d'augmenter leur taille et de diminuer leur concentration en nombre. Pour limiter cette agrégation des particules de suie, une dilution à deux étages est utilisée : une première fois à l'azote, dans la sonde de prélèvement, et une seconde fois à l'air, entre la sortie de la sonde et l'entrée de l'appareil d'analyse. Un test préliminaire est réalisé pour déterminer le taux de dilution minimal à appliquer pour éviter tout phénomène d'agrégation au sein de la sonde de prélèvement. Le brûleur SIRIUS est réglé sur P1, la flamme la plus apte à produire une concentration élevée en suie. La sonde de prélèvement de suie est positionnée à une hauteur

de la base du brûleur (HAB) de 25 mm et le long de l'axe du brûleur ($r = 0$). Cette position a été préalablement identifiée comme un point particulièrement chargé en particules. Le second étage de dilution est ajusté avec un taux de dilution proche de 100, et la pression d'aspiration est maintenue à 9 mbar. Plusieurs prélèvements de particules de suie sont effectués avec un débit d'azote injecté variant de 3 à 9 lpm, par pas de 1 lpm. Les distributions des tailles des particules de suie sont reportées sur la figure 5.3.

On observe que les distributions en taille, de nature log-normale, ont tendance à se décaler vers les plus petites particules au fur et à mesure que le débit d'azote injecté augmente, illustrant du phénomène d'agrégation qui s'opère dans la sonde. Les modes des fonctions densité de probabilité (PDF) de la figure 5.3 convergent à une abscisse correspondant à un diamètre d'environ 20 nm, et ce à partir d'un débit d'azote injecté de 5 lpm. Par ce résultat, il a été admis que le débit d'azote à injecter devait être au minimum égal à 5 lpm pour éviter tout phénomène d'agrégation dans la sonde. Par la suite, le débit d'azote a été fixé à 9 lpm pour se donner une marge de sécurité au cas où des aérosols plus concentrés seraient prélevés.

TABLE 5.2 – Cahier des charges du système de prélèvement

Source potentielle de pertes de particules	Solution
Intrusivité de la sonde	Sonde compacte
Réactions chimiques	Figeage par injection à l'azote
Agrégation des particules de suie	Dilution à deux étages (azote+air)
Perte par diffusion	Réduction de la longueur de ligne de prélèvement
Pertes par thermophorèse	Refroidissement des gaz brûlés par le premier étage de dilution
Pertes électrostatiques	Dispositif relié à la terre

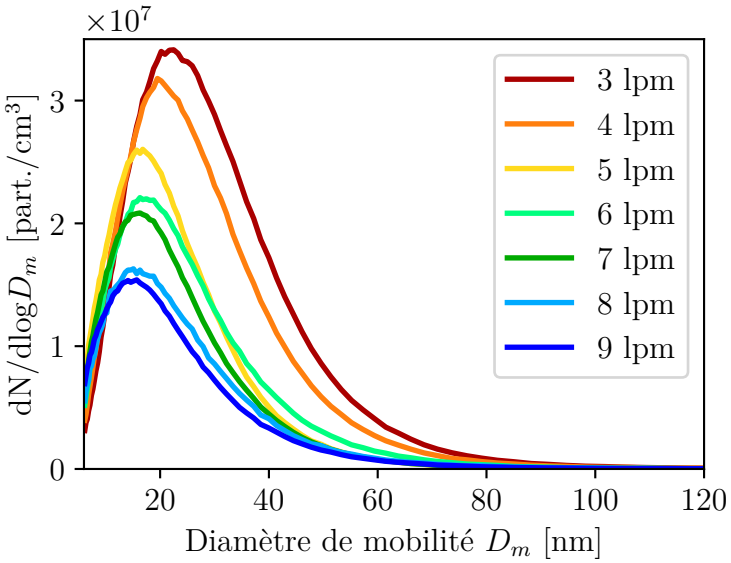

FIGURE 5.3 – Détermination du débit d'azote avant agrégation des particules

5.1.2.2 Étalonnage du dispositif de prélèvement

Maintenant que les paramètres expérimentaux à utiliser sont établis, il est crucial de vérifier que les agrégats de suie soient transportés vers l'appareil d'analyse sans être piégés le long de la ligne de prélèvement. Cependant, toute évaluation de la performance d'un dispositif de suie reste une tâche complexe : la qualité du prélèvement dépend avant tout de la géométrie de la sonde et de la ligne de prélèvement à travers laquelle les particules de suie sont transportées. Mais, en fonction des conditions expérimentales à étudier, l'importance relative des phénomènes à l'origine du piégeage des agrégats mentionnés dans le tableau 5.2 peut varier.

Pour confirmer la bonne efficacité de prélèvement de notre système de mesure, un étalonnage du dispositif complet de prélèvement et d'analyse est réalisé en utilisant un générateur d'aérosol de référence, qui produit un aérosol aux conditions connues et stables dans le temps. La plupart des aérosols sont classifiés selon différentes catégories : les nébuliseurs, qui produisent des gouttelettes sphériques en atomisant un liquide ; les générateurs à électrodes, où des nanoparticules sont issues de la dégradation d'électrodes lors de la génération d'un arc électrique ; et les particules fines produites par une combustion parfaitement contrôlée. Pour un étalonnage optimal, l'aérosol de référence doit être similaire à l'aérosol d'étude en termes de morphologie et de densité, et les conditions de prélèvement (température, pression, débit) les plus similaires possibles. Malheureusement, il est impossible de reproduire à l'identique les conditions expérimentales de prélèvement de cette campagne de mesure. En effet, les gaz prélevés sur le brûleur SIRIUS sont à température élevée, tandis que l'aérosol produit par le générateur de référence est à température ambiante. Le compromis trouvé ici est d'évaluer l'efficacité de prélèvement en deux étapes :

- Évaluation du facteur de dilution gaz à haute température
- Étalonnage de perte de particules avec un aérosol de référence à froid.

Facteur de dilution La procédure mise en oeuvre pour évaluer le taux de dilution du premier étage est décrit ci-après. Le débit d'aspiration de la sonde de prélèvement dépend des propriétés du gaz, notamment la température d'entrée et la densité des gaz. Pour reproduire les conditions expérimentales, le brûleur SIRIUS est réglé sur le point de fonctionnement P3 et la sonde de prélèvement placée à une HAB de 25 mm. La pression d'aspiration est fixée à 9 mbar pour assurer un débit de prélèvement constant. Le débit d'azote injecté est contrôlé par un régulateur Bronkhorst® El-Flow. Le facteur de dilution DF_{exp} est évalué par soustraction en utilisant un second débitmètre (Definer 220), qui mesure le débit total Q_{tot} {azote+gaz brûlés}, en aval de la sonde de prélèvement de suie.

$$\mathrm{DF}_{exp} = \frac{Q_{tot}}{Q_{tot} - Q_{N_2}} \tag{5.1}$$

Dans le cas présent, le facteur de dilution du premier étage est estimé à 6,40 en flamme et 4,36 à froid, avec une incertitude relative de 22%.

Efficacité de prélèvement Dans un second temps, l'efficacité de prélèvement du dispositif η_p est évaluée à froid en analysant un aérosol de référence. Ce paramètre est défini comme la proportion de particules de suie correctement transportées d'un bout à l'autre de la ligne de prélèvement :

$$\eta_p = \frac{\mathrm{N}\left(D_m\right)_{aval}}{\mathrm{N}\left(D_m\right)_{amont}} \tag{5.2}$$

où N(D_m) représente la densité de particules de diamètre de mobilité D_m. Pour déterminer son efficacité de prélèvement, le montage expérimental de la figure 5.2 est comparé avec un dispositif ayant déjà fait ses preuves dans la littérature [4]. Ce dernier consiste en deux appareils de dilution PALAS® VKL10 connectés en série. L'aérosol de référence utilisé pour la comparaison des deux systèmes de prélèvement est issu d'un généréateur MiniCAST® 5201 (Jing Ltd). Les agrégats de suie produits par l'appareil résultent d'une combustion propane/air, avec une morphologie proche d'agrégats de flamme éthylène/air. Les distributions brutes par SMPS obtenues à partir des deux dispositifs de prélèvement sont présentées dans la figure 5.5 ci-dessous. L'aérosol mesuré par le montage expérimental (courbe bleue) est dilué avec un rapport de 400 (1 : 4,36 pour la sonde, 1 : 90 pour le Dekati FPS-4000). Le dispositif de référence (courbe orange), constitué de deux PALAS® VKL10, possède un taux de dilution égal à 100.

L'étalonnage du système de mesure repose sur l'hypothèse selon laquelle le montage de référence effectue des prélèvements sans pertes :

$$\eta_{p,\ ref} = 1 \longrightarrow \mathrm{N}\left(D_m\right)_{amont} = \mathrm{N}\left(D_m\right)_{ref,} \tag{5.3}$$

N$(D_m)_{ref}$ correspond à la distribution de taille de particules prélevées, corrigée de la dilution. Ainsi l'efficacité de prélèvement du montage expérimental devient :

$$\eta_{p,\ exp} = \frac{\mathrm{N}\left(D_m\right)_{exp,\ brut} \times \mathrm{DF}_{exp}}{\mathrm{N}\left(D_m\right)_{ref,\ brut} \times \mathrm{DF}_{ref}} \tag{5.4}$$

où N$(D_m)_{brut}$ se réfère aux distributions SMPS brutes affichées sur la figure 5.5, et DF_{ref} le facteur de dilution associé au dispositif de prélèvement de référence. On observe que l'efficacité de prélèvement $\eta_{p,\ exp}$ est constant sur une large gamme de diamètres de mobilité électrique.

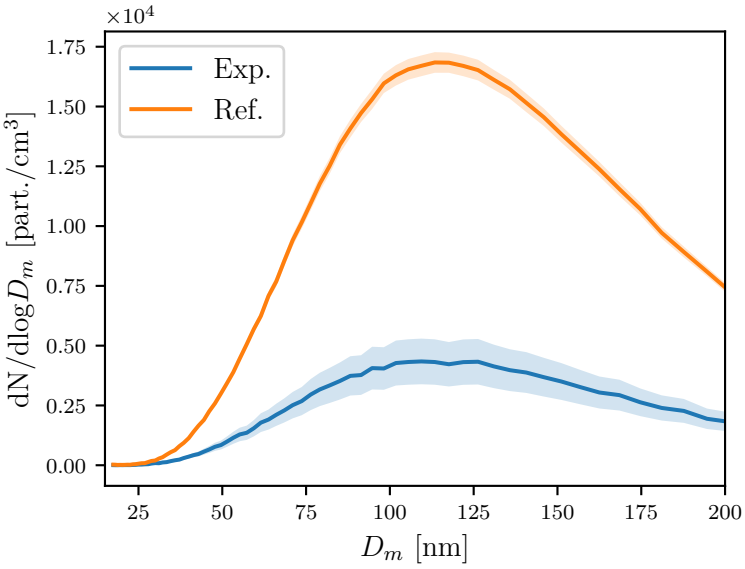

FIGURE 5.4 – Étalonnage du dispositif de prélèvement par comparaison avec un montage de référence : données brutes obtenues avec un aérosol produit par un générateur MiniCAST® 5201

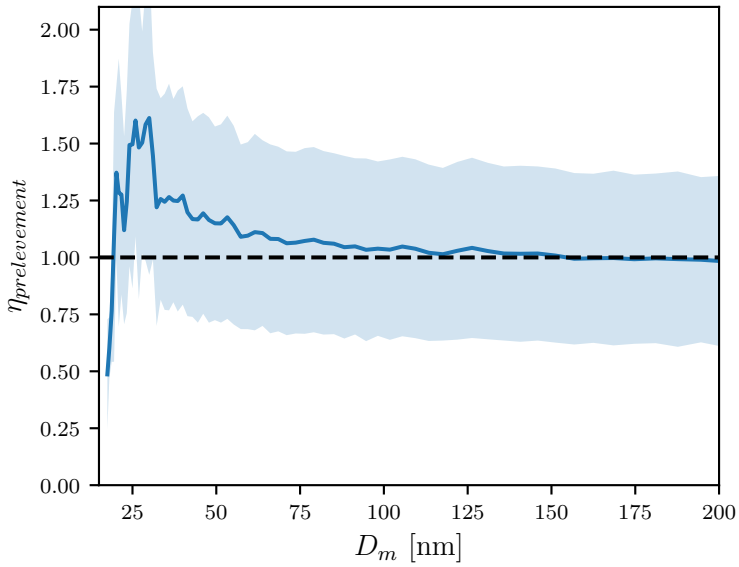

FIGURE 5.5 – Étalonnage du dispositif de prélèvement par comparaison avec un montage de référence : rendement de prélèvement η_p calculé selon l'équation 5.4

5.1.3 Résultats et discussion

Les populations en particules de suie analysées en chaque point ont toutes une distribution en taille suivant une loi monomodale de type log-normale (figure 5.3). Il s'agit d'un résultat expérimental régulièrement observé dans la littérature [4, 5, 6]. Pour chaque position (HAB, r), les paramètres $\mu_{m,\,geo}$ et $\sigma_{m,\,geo}$ de chaque distribution sont extraits suivant l'équation ci-dessous :

$$\frac{dp(D_m)}{dD_m}(\text{HAB},\ r) = \frac{1}{D_m \ln \sigma_{m,\ geo}\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(\ln D_m - \mu_{m,\ geo}(\text{HAB},\ r))^2}{2\sigma^2_{m,\ geo}}\right] \tag{5.5}$$

$\frac{dp(D_m)}{dD_m}$ représente la fonction densité de probabilité de la loi log-normale décrivant la population d'agrégats de suie, de diamètre de mobilité électrique D_m. Le diamètre médian de la distribution en taille de suie est lié au paramètre $\mu_{m,\ geo}$ par la relation suivante :

$$D_{m,geo} = \exp(\mu_{m,\ geo}) \tag{5.6}$$

Les distributions spatiales de concentrations totales d'agrégats de suie par unité de volume N_{agg} et de diamètres moyens de particules de suie sont alors présentées sur la figure 5.6.

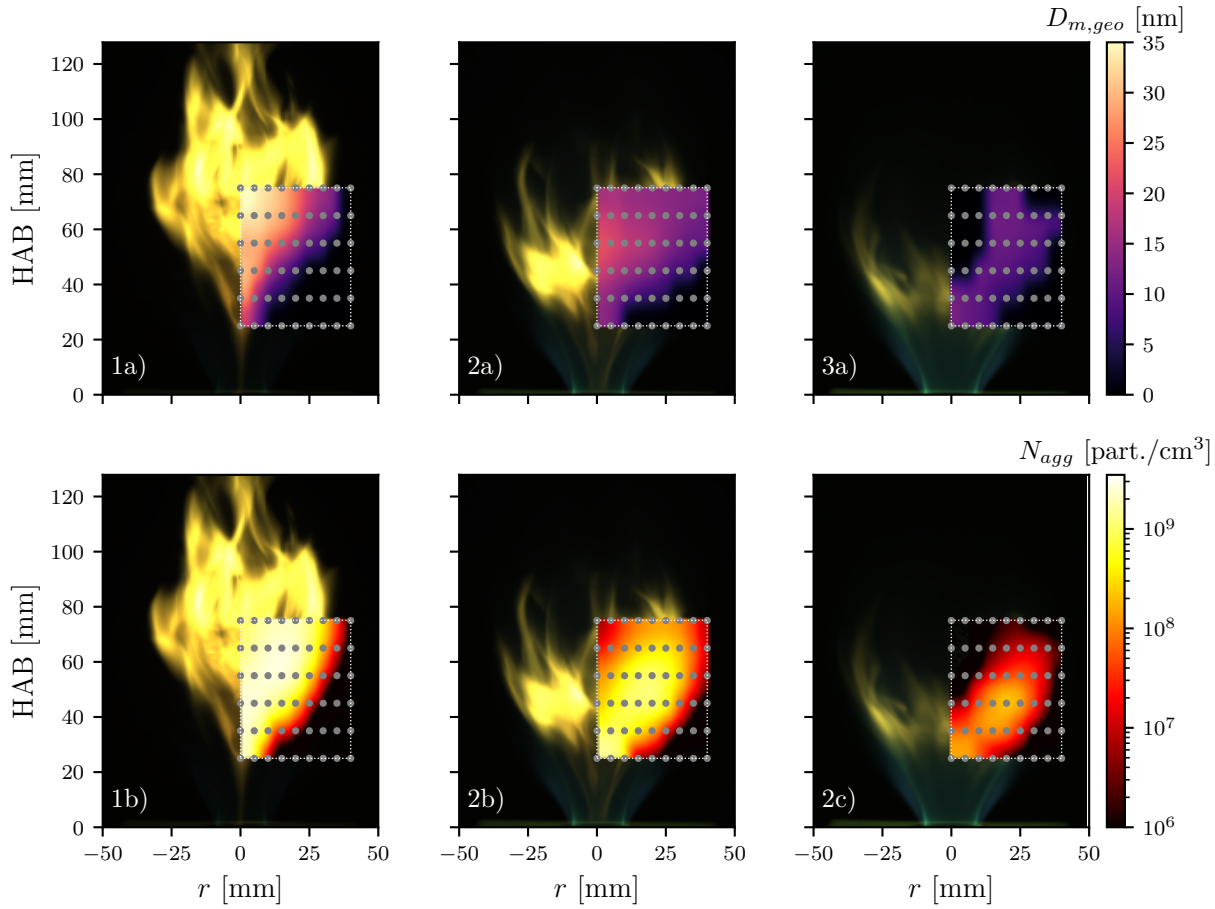

FIGURE 5.6 – Distributions spatiales des a) diamètres moyens géométriques b) concentrations en particules de suie

Pour les trois points de fonctionnement, on observe qu'un pic de concentration apparaît au cœur de la flamme. Lorsque le nombre de swirl de la flamme augmente, l'intensité de ce pic diminue et sa position a tendance à se décaler de l'axe de la flamme. Il a été montré [7] que ce pic en concentration était corrélé à la zone de présence de précurseurs de suie (HAP) issus de la décomposition de l'éthylène. Ces résultats seront confortés par la présentation dans le chapitre 6 de la thèse d'une étude détaillée de la topologie de flamme nous renseignant sur le rôle des précurseurs de suie (HAP) sur la formation des suies. L'augmentation de l'intensité du swirl conduit également à

une recirculation des gaz brûlés contenant des radicaux chimiques vers le centre de la flamme. Ces radicaux chimiques, en contact avec les HAP fraîchement formés par la décomposition de l'éthylène, oxydent ces derniers. Par conséquent, Les HAP ne réagissent pas entre-eux, et la nucléation des particules de suie diminue. On peut noter que les agrégats les plus gros se situent le long de l'axe du brûleur, dans la zone de recirculation interne (IRZ). L'IRZ est le lieu de nombreuses réactions chimiques où les agrégats de suie croissent, continuent de s'agréger, puis s'oxydent. Toutefois, la relative faible concentration en particules le long de l'axe du brûleur associée à un fort diamètre moyen laisse suggérer que l'agrégation est le phénomène majoritaire qui s'opère dans cette zone, selon le scénario suivant : Les temps de résidence élevés des espèces gazeuses et particulaires, associés aux vitesses lentes de déplacement dans l'IRZ, permettent aux petites particules de suie de s'agréger pour former des agrégats. Ces agrégats, « piégés » dans l'IRZ, vont alors croître naturellement jusqu'à leur oxydation par des produits oxygénés pénétrant dans l'IRZ. Comme évoqué plus haut, l'augmentation de l'oxydation des HAP induite par un nombre de swirl plus élevé provoque une diminution globale des diamètres des particules de suie mesurés.

5.2 Évaluation de tailles et de concentrations de suie par technique de diffusion angulaire

Dans une seconde phase, les prélèvements des particules de suie analysés par le SMPS sont comparés avec des mesures réalisées avec le diagnostic optique de diffusion angulaire haute-cadence, effectuées sur les points P1 et P2 du brûleur SIRIUS [8]. La diffusion angulaire haute-cadence est une technique non intrusive permettant de mesurer des tailles des particules de suie. Elle s'appuie sur la diffusion élastique de la lumière par les particules de suie. L'intensité diffusée par les particules est fonction de la taille des agrégats de suie présents dans la flamme, ainsi que de l'angle avec lequel la lumière diffusée est collectée.

5.2.1 Dispositif expérimental

Le montage expérimental utilisé pour la mesure de la taille des particules de suie par diffusion angulaire est décrit sur la figure 5.7. Un laser Nd :YAG (Edgewave) doublé en fréquence est utilisé comme source lumineuse. Celui-ci produit des impulsions laser de 22 mJ à 532 nm, et ce à une cadence de répétition de 1 kHz. L'énergie des faisceaux laser est atténuée par une lame demi-onde et un prisme de Glan-Taylor, qui redirige une partie de l'énergie de l'impulsion laser vers un piège à lumière. Une nappe laser de hauteur 50 mm et d'épaisseur 120 µm est ensuite formée au moyen d'un jeu de trois lentilles optiques : une lentille sphérique convergente de distance focale 1 m, et deux lentilles cylindriques divergente puis convergente, de distances focales respectives de -20 mm et 500 mm. La collection de la lumière diffusée par les particules de suie est assurée par trois caméras Phantom V2021 placées respectivement à 45, 90 et 135°. Celles-ci disposent d'objectifs Zeiss Milvus ($f = 100$ mm, ouverture $f/2$) et de filtres interférenciels centrés à 532 nm (FWHM = 10 nm). Des montures Scheimpflug sont installées sur les caméras placées à 45 et 135°, de sorte que le plan de focalisation des caméras soit confondu avec la nappe laser. Les images capturées sont ensuite corrigées en distorsion en utilisant un modèle de caméra sténopé. Cette correction se base sur des images prises par les trois caméras d'une mire d'étalonnage, elle-même préalablement disposée sur le brûleur SIRIUS. Des mesures de diffusion supplémentaires sur des particules micrométriques viennent également affiner cette correction.

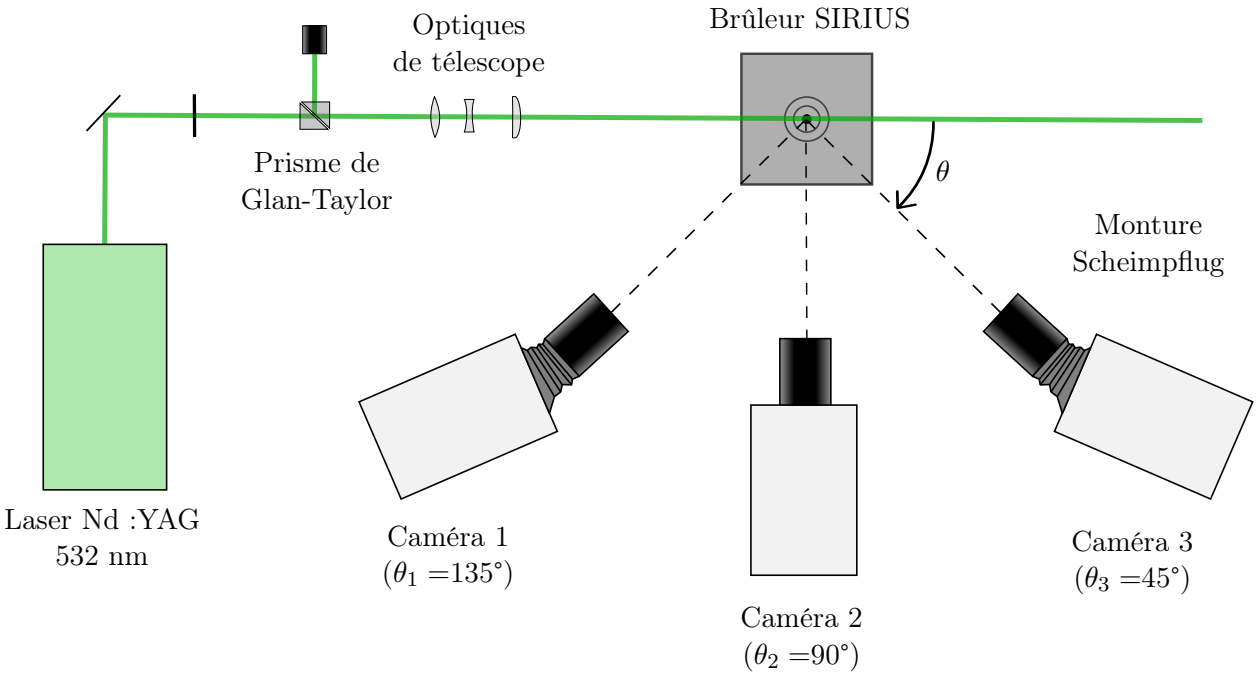

FIGURE 5.7 – Dispositif expérimental pour la mesure de taille et de concentration de particules de suie par diffusion angulaire

5.2.2 Méthodologie d'évaluation des tailles et concentrations en particules

L'intensité d'une onde électromagnétique I_{vv}, polarisée verticalement et diffusée par une population d'agrégats de suie suivant un angle θ peut être modélisée par la théorie de Rayleigh-Debye-Gans pour les agrégats fractals :

$$I_{vv}(\theta) = I_0 N_{agg} D_p^{6-2D_f} k_f^2 \frac{\pi^4}{4} \frac{F(m)}{\lambda^4} \int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta) R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g \tag{5.7}$$

I_0 est l'intensité de l'onde incidente, N_{agg} est la concentration en nombre d'agrégats de suie par unité de volume. D_p correspond au diamètre de sphérule primaire, D_f et k_f les paramètres fractals de la population d'agrégats. $F(m)$ représente la fonction de diffusion, qui dépend de l'indice de réfraction complexe des suies m, λ la longueur d'onde du laser incident. Cette expression peut être réécrite et scindée en deux parties, appelées amplitude A et terme de taille T.

$$\begin{aligned} I_{vv}(\theta) &= A \times T \\ A &= I_0 N_{agg} D_p^{6-2D_f} k_f^2 \frac{\pi^4}{4} \frac{F(m)}{\lambda^4} \\ T(\theta) &= \int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta) R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g \end{aligned} \tag{5.8}$$

Le terme de taille T dépend de la taille des agrégats et le terme d'amplitude A dépend d'une variété de paramètres, lesquels ne peuvent être connus simultanément. Pour palier à cette difficulté, De Luliis et al. [9] propose une méthode consistant à mesurer l'intensité diffusée par les particules à deux angles de collection. Le rapport de ces deux intensités est appelé ratio de dissymétrie R_{vv} :

$$
\begin{aligned}
R_{vv}(\theta,\theta_{ref}) &= \frac{I_{vv}(\theta)}{I_{vv}(\theta_{ref})} \\
R_{vv}(\theta,\theta_{ref}) &= \frac{V_m(\theta)\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta)R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g}{V_m(\theta_{ref})\displaystyle\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f\left(q(\theta_{ref})R_g\right) p\left(D_g\right) dD_g}
\end{aligned}
\tag{5.9}
$$

L'utilisation du rapport R_{vv} permet d'éliminer tous les paramètres physiques qui ne dépendent pas de l'angle de collection. En supposant certaines propriétés des agrégats de suie, il est possible de résoudre numériquement $D_g = f(R_{vv})$ (figure 5.8). En supposant par ailleurs une distribution en taille de type log-normale, la fonction densité de probabilité $p(D_g)$ peut être définie selon l'expression suivante :

$$
\frac{dp\left(D_g\right)}{dD_g} = \frac{1}{D_g \ln\sigma_{g,geo}\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln D_g - \ln D_{g,geo}}{\ln\sigma_{g,geo}}\right)^2\right] \tag{5.10}
$$

L'écart-type standard est ici fixé à 1,6, une valeur couramment rencontrée dans la littérature [9, 10]. Une fois le diamètre moyen géométrique $D_{g\ geo}$ de la population d'agrégat déterminé, le terme de taille T est déduit selon le modèle de la figure ci-dessus..

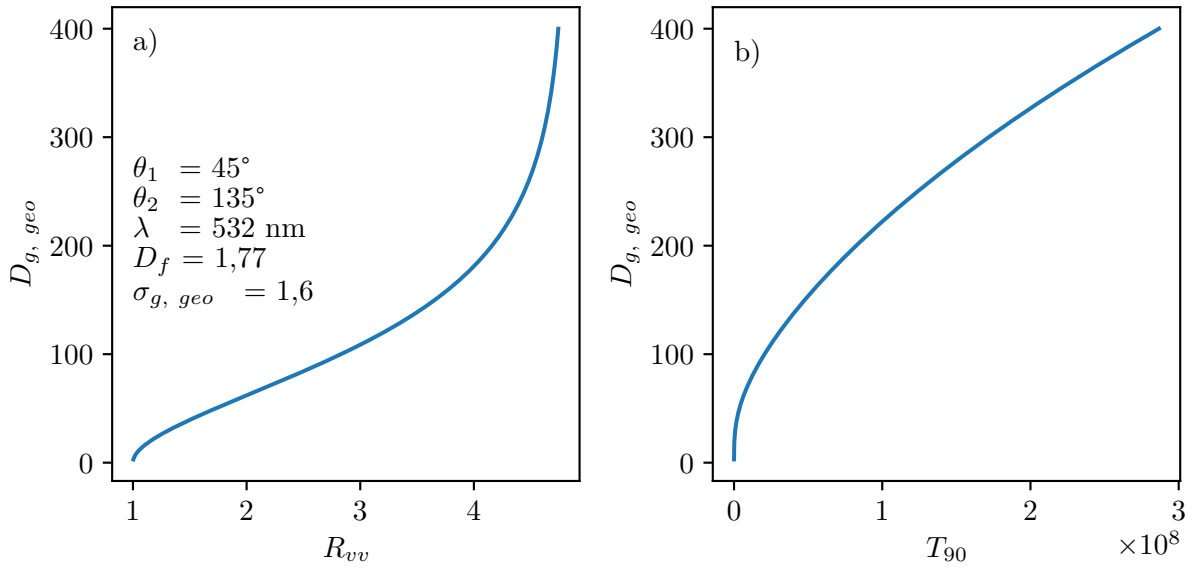

FIGURE 5.8 – Détermination du diamètre moyen géométrique a) et du paramètre de taille b) par méthode numérique, en supposant un modèle de diffusion RDG-FA et une population de type log-normale

Ce terme de taille peut être relié au signal lumineux collecté par la caméra à 90° par l'équation suivante :

$$
S_{90} = \alpha f_v D_p^{3-D_f} T_{90} \tag{5.11}
$$

où α est un coefficient d'étalonnage dépendant de l'irradiance du laser, la longueur d'onde λ, la réponse de la caméra et les paramètres intrinsèques aux particules de suie tels que k_f ou $F(m)$. En

supposant ces paramètres constants, α est estimé en moyenne, en comparant la valeur moyenne du signal mesuré à 90° avec les fractions de volume mesurées dans une étude précédente. Ce paramètre α est ensuite réinjecté dans l'équation 5.11 pour calculer une fraction de volume f_v. La densité de particule N_{agg} est finalement obtenue selon l'équation suivante :

$$N_{agg} = \frac{6 f_v}{\pi N_p D_p^3} \tag{5.12}$$

5.2.3 Résultats

Les distributions spatiales de taille obtenues par mesure de diffusion à deux angles contrastent avec les distributions SMPS, du moins au premier abord. La figure 5.9 est un exemple d'image instantanée de la distribution du diamètre des suies dans la flamme P1, la flamme la plus chargée en suie de l'étude. Contrairement aux distributions mesurées par prélèvement, qui montrent une zone de présence de suie continue, les mesures par diffusion angulaire haute-cadence révèlent une très forte intermittence des émissions de suie. En effet, contrairement à ce que laisse suggérer les analyses SMPS, le volume occupé par les particules dans la flamme est relativement faible. Les particules de suie se concentrent principalement au sein de deux types de structures : de larges poches tourbillonnantes, localisées principalement dans la zone de recirculation interne (IRZ), et de fins ligaments de suie, situés à la frontière entre la zone d'injection de carburant et l'IRZ.
Au delà de leur morphologie, les deux types de structure se distinguent également par la valeur des diamètres moyens généralement relevés en leur sein : environ 30-40 nm pour les ligaments, jusqu'à 100 nm pour les poches de suie. La cinématique des structures diffère également. Alors que les fins ligaments, formés à la frontière entre le jet de carburant et l'IRZ sont continûment évacués en aval de la flamme, les poches de suie sont convectées en amont de la flamme, au cœur de l'IRZ. Le temps de résidence des poches épaisses est grand devant celui des ligaments fins. Sous l'action du jet de carburant, elles observent un long mouvement de rotation (trajectoire en pointillés sur la figure 5.9). Au moment d'atteindre le pied de l'IRZ, les poches en suie se mélangent progressivement avec les ligaments. Il en résulte alors des structures ligamentaires plus épaisses, qui sont ensuite convectées en aval de la flamme.
Les études réalisées sur le brûleur SIRIUS [7, 11] ont mis en évidence la différence de nature des particules de suie constituant les ligaments et les poches épaisses. Les ligaments de suie, situés la périphérie du jet de carburant, sont produits par la décomposition de l'éthylène en précurseurs de suie. Il s'agit donc de particules de suie naissantes, dont la croissance ne fait que débuter, ce qui explique les faibles diamètres mesurés dans les ligaments. À l'inverse, les poches de suie trouvent leur origine plus en aval de la flamme. Sous l'effet de la dépression causée par le swirl de la flamme, des masses de gaz chargées en particules de suie se retrouvent piégées au sein de l'IRZ, leur donnant le temps de croître et de s'agréger.

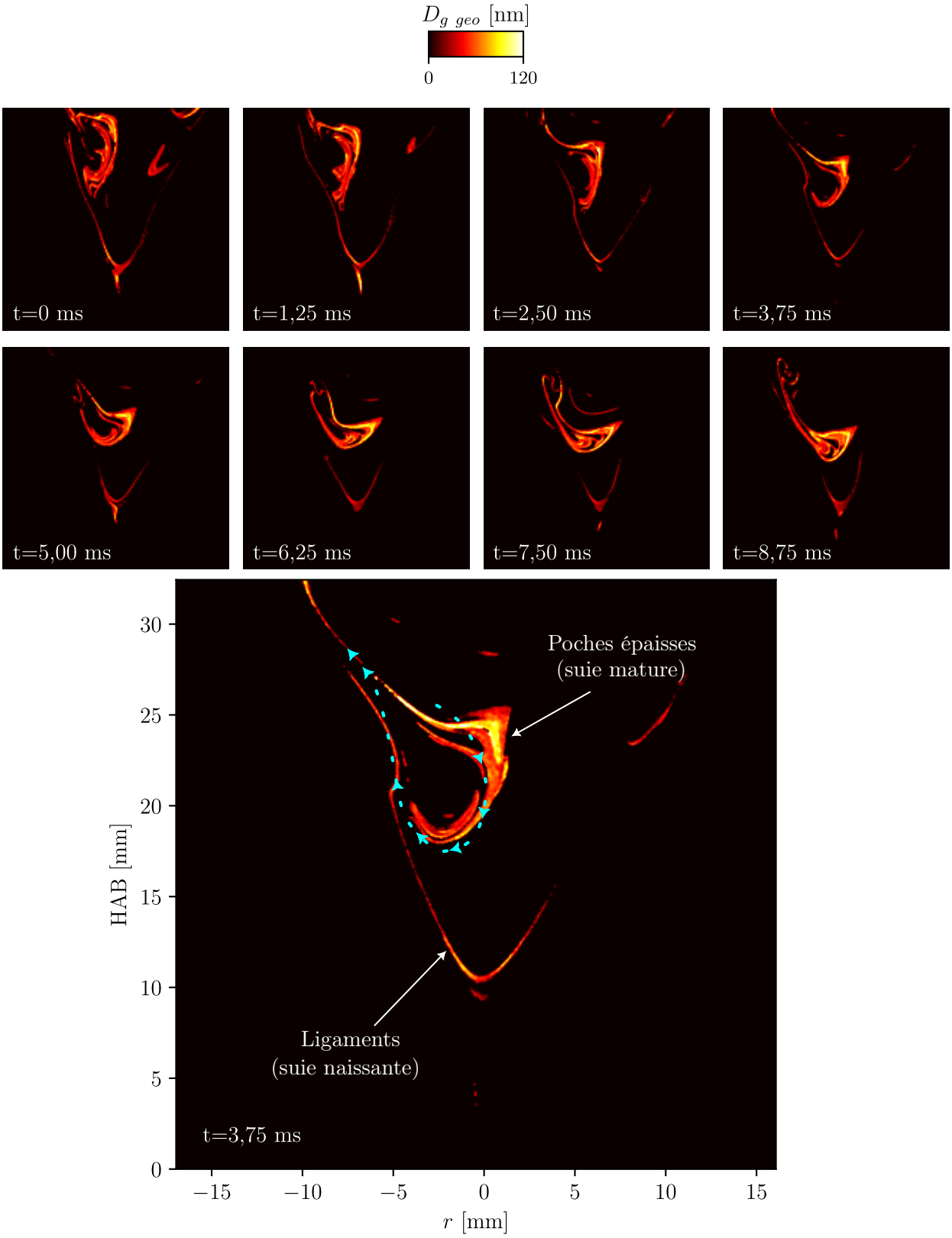

FIGURE 5.9 – Distributions instantanées de diamètres de giration, mesurées par diffusion angulaire sur la flamme P1 (données de [8])

5.3 Comparaison entre mesures in- et ex-situ

Les deux techniques de mesure ont montré leur capacité à sonder des flammes hautement turbulentes. De surcroît, celles-ci présentent des résultats concordants, avec notamment l'existence des plus grosses particules dans la zone de recirculation interne de la flamme. Dans cette troisième partie, les valeurs des diamètres et de concentrations en particules mesurées par les deux techniques de mesure in- et ex-situ sont confrontées. Néanmoins, le principe très différent des techniques de mesure confrontées représente un obstacle majeur à cette comparaison, et ce à plusieurs titres. D'une part, un détecteur SMPS analyse les tailles des particules de suie selon leur diamètre de mobilité électrique D_m, tandis que le diagnostic optique de diffusion angulaire nous renseigne sur le diamètre de giration moyen D_g d'une population de particules de suie contenue dans un volume élémentaire. D'autre part, les mesures de taille par diffusion angulaire sont réalisées à une cadence de mesure élevée (1 khZ). Une mesure par SMPS durant environ une minute, les fluctuations des distributions des particules de suie produites dans une flamme turbulente ne peuvent être captées. Par conséquent, la comparaison SMPS-diffusion nécessitera un moyennage spatio-temporel des diamètres de giration mesurés par voie optique.

5.3.1 Conversion de diamètre de mobilité vers diamètre de giration

Comme évoqué précédemment, la forme complexe des agrégats de suie ne permet pas de définir une « taille » d'agrégat à proprement parler. La dimension de ces derniers est définie par des diamètres équivalents à une sphère en termes de propriétés physiques telle que la masse, ou le volume, par exemple. L'instrument de mesure utilisé ici, à savoir le SMPS, exploite la notion de diamètre de mobilité électrique D_m. Pour une particule non sphérique, son diamètre de mobilié électrique se définit comme le diamètre d'une sphère de même mobilité électrique que l'agrégat de suie analysé (voir page 18 pour plus d'informations). Le diamètre de mobilité électrique se définit comme :

$$F_{drag} = \frac{3\eta D_m v_{drag}}{C_c(D_m)} \tag{5.13}$$

où F_{drag} est la force électrique subie par la particule au sein de la colonne DMA, v_{drag} la vitesse de migration de la particule, η la viscosité cinématique du gaz porteur, et C_c le facteur correctif de Cunningham. Le diamètre de giration, quant à lui, est équivalent au diamètre d'une sphère subissant le même moment d'inertie. Pour un agrégat constitué de sphères de même taille, le rayon de giration est lié à la moyenne des carrés des distances r_i entre chaque particule primaire de rayon R_p et le centre de masse de l'agrégat.

$$R_g^2 = \frac{3}{5}R_p + \frac{1}{N_p}\sum_i r_i^2 \tag{5.14}$$

Contrairement au diamètre de mobilité électrique, le diamètre de giration est un paramètre purement géométrique, qui ne dépend pas des conditions thermodynamiques, c'est pourquoi ce dernier sera préféré au diamètre de mobilité électrique dans cette étude. Ainsi, pour comparer directement les deux techniques de mesure, une conversion de diamètres de mobilité en diamètres de giration est effectuée au moyen d'un modèle semi-empirique proposé par Yon et al. en 2015 [12].

$$\frac{D_g}{D_m} = \frac{C_c(D_p)}{C_c(D_m)} k_f^{-1/D_f} N_p^{\frac{1}{D_f}(1-\Gamma)} \tag{5.15}$$

où Γ est une fonction Gamma cumulative obtenue expérimentalement, qui dépend uniquement du régime d'écoulement, représenté par le nombre de Knudsen de D_p.

$$\Gamma = 1,378 \left[\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \mathrm{erf} \left(\frac{K_n(D_p) + 4,4454}{10,628} \right) \right] \tag{5.16}$$

Ce modèle requiert des informations sur la morphologie des agrégats de suie considérés, représentés par les paramètres fractals D_f et k_f, ainsi que le diamètre de particule primaire D_p. Ces variables peuvent être déterminées en réalisant un traitement statistique à partir d'images enregistrées par Microscopie Electronique à Transmission (TEM). Toutefois, aucune analyse TEM n'a été effectuée dans le cadre de cette étude. Par conséquent, ces paramètres sont supposés à partir de données issues de la littérature et de mesures antérieures obtenues sur le banc de combustion SIRIUS.

Dimension fractale - D_f Parmi les paramètres cités précédemment, D_f est sans doute le paramètre le plus facile à estimer, notamment parce que sa valeur mesurée est la plus stable. La plupart des mesures de D_f réalisées sur une grande variété de flammes et de conditions expérimentales conduit à une valeur comprise entre 1,6 et 1,9 [5, 13, 14].

Préfacteur fractal - k_f En comparaison avec la dimension fractale, une estimation du préfacteur fractal k_f est bien plus complexe : sa signification physique est plus abstraite, et les mesures de k_f de la littérature présentent une plus grande variabilité. Le préfacteur fractal k_f présente une valeur constante d'environ 2,1 lorsque la loi fractale est complètement établie. Néanmoins, un agrégat de suie doit être composé d'au moins 15 à 30 particules primaires pour être considéré comme fractal. Des récentes publications on développé le concept de paramètres fractals « individuels » ($D_{f,i}$, $k_{f,i}$) et « de population » ($D_{f,p}$, $k_{f,p}$) pour que la loi fractale s'applique également à des agrégats plus petits, tels que ceux produits par le brûleur SIRIUS. Un modèle de préfacteur fractal individuel proposé dans l'article de Yon, Morán et al. [15] est utilisé dans cette étude pour la conversion des diamètres de mobilité électrique mesurés par SMPS (figure 5.10).

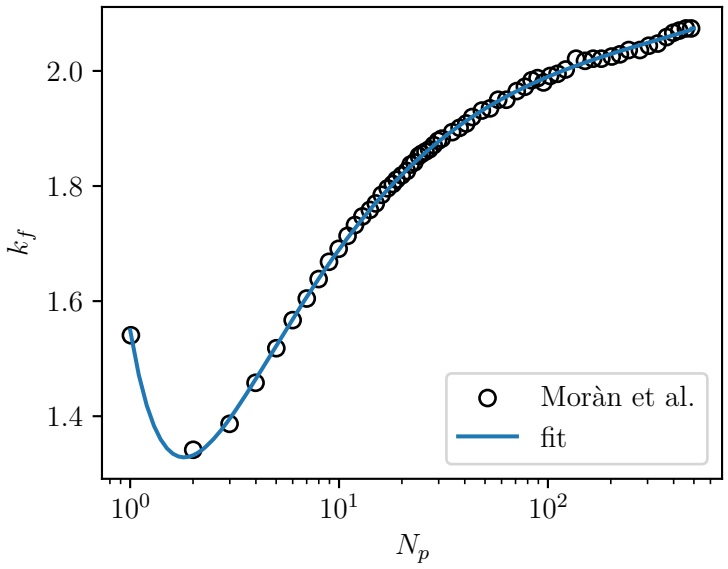

FIGURE 5.10 – Modèle de préfacteur fractal appliqué à la conversion $D_m \rightarrow D_g$ [15]

Diamètre de particule primaire - D_p Le dernier paramètre, à savoir le diamètre de particule primaire D_p, est le paramètre le plus susceptible de varier temporellement et spatialement. Des mesures de LII autocompensées ont été réalisées sur les flammes P1 et P2. En décalant temporel-

lement la fenêtre d'acquisition, l'intensité du signal LII mesuré diminue. En utilisant un modèle approprié, Bouvier et al. [11] ont pu extraire de la décroissance du signal LII des diamètres de particules primaires moyens, avec une incertitude de ± 3 nm.

Incertitude Une erreur sur un paramètre morphologique des agrégats de suie peut conduire à un biais de la conversion. La figure 5.11 illustre dans quelle mesure les hypothèses sur ces paramètres affectent la conversion en diamètres de giration.

TABLE 5.3 – Application du modèle de conversion de Yon et al. (2015) [12] sur une distribution SMPS (P1, HAB = 45 mm, $r = 5$ mm) : effet du choix des paramètres d'entrée (D_f, k_f et D_p) sur le diamètre de giration moyen géométrique obtenu

	$D_m \rightarrow D_g$ minimisé	Paramètres d'étude	$D_m \rightarrow D_g$ maximisé
D_f	1,6	1,77	1,9
k_f	2,1	Modèle [15]	1,55
D_p	20	15	10
$D_{g,\ geo}$	16,2 nm	24,0 nm	31,8 nm

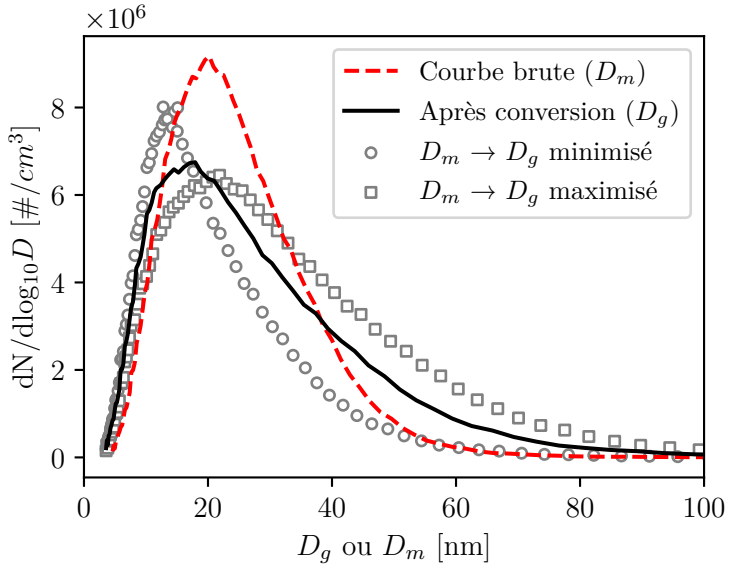

FIGURE 5.11 – Application du modèle de conversion de Yon et al. (2015) [12] sur une distribution SMPS (P1, HAB = 45 mm, $r = 5$ mm) : effet du choix des paramètres d'entrée (D_f, k_f et D_p) sur la distribution de taille de suie convertie

La courbe rouge en pointillés correspond à la distribution de tailles de suie brute mesurée par le SMPS sur la flamme P1, à HAB = 45 mm et $r = 5$ mm. Les valeurs fixées pour les paramètres D_f, k_f et D_p sont reportées dans le tableau 5.3 associé à la figure 5.11. Le diamètre de giration moyen géométrique mesuré sur cette distribution est de 24,0 nm. Afin d'évaluer l'incertitude de la conversion effectuée, le choix est fait de maximiser et de minimiser la fonction $D_m \rightarrow D_g$ à partir des valeurs extrêmes D_f (1,6/1,9), k_f(1,55/2,1) et D_p(10/20 nm). Les points circulaires et carrés

se rapportent respectivement à la minimisation et la maximisation de cette conversion. Dans le cas présent, l'incertitude absolue de mesure sur le diamètre de giration moyen géométrique est de ± 8 nm.

5.3.2 Traitement statistique

La production des suies dans les flammes étudiées est intermittente. Lorsqu'une mesure SMPS est réalisée, le SMPS aspire l'aérosol durant plusieurs dizaines de secondes. Les particules sont alors classifiées selon leur taille et comptées durant un intervalle de temps de l'ordre de la seconde. Le temps des fluctuations turbulentes étant négligable devant le temps de comptage SMPS, les intermittences sont « gommées » lors du scan SMPS. En d'autres termes, la mesure SMPS obtenue est un moyennage temporel des fluctuations de l'émission des particules. Ainsi, pour pouvoir comparer les enregistrements obtenus par prélèvement (et préalablement convertis en diamètres de giration) avec les $N_i = 8000$ distributions de taille mesurées par diffusion angulaire haute-cadence, ces dernières sont moyennées temporellement. Pour une paire d'images i captées par les caméras à haute-cadence, l'aérosol contenu dans un pixel à la position (HAB, r) se caractérise par sa distribution en taille, supposée log-normale et de paramètres $D_{g,\ geo}$ et $\sigma_{g,\ geo}$, ainsi que par sa concentration en nombre N_{agg} :

$$\begin{cases} \dfrac{dp\,(D_g)}{dD_g}\,(\mathrm{HAB},\ r,\ i) = \dfrac{1}{D_g \ln \sigma_{g,geo}\sqrt{2\pi}} \exp\left\{ \left[-\dfrac{1}{2} \left(\dfrac{\ln D_g - \ln D_{g,geo}\,(\mathrm{HAB},\ r,\ i)}{\ln \sigma_{g,geo}} \right)^2 \right] \right\} \\ \\ N_{agg}\,(\mathrm{HAB},\ r,\ i) \end{cases} \tag{5.17}$$

Dans cette campagne de mesure, le paramètre $\sigma_{g,\ geo}$ est fixé à une valeur de 1,6, un résultat reporté dans la littérature. Etant donné que le diamètre de l'entrée de sonde est de 1 mm, le prélèvement de gaz n'est pas strictement ponctuel. Par conséquent, un moyennage spatial est également réalisé au préalable sur tous les pixels contenus dans une zone carrée de $r \pm 0.5$ mm et HAB$+0-1$ mm :

$$\begin{cases} \overline{\dfrac{dp(D_g)}{d\log D_g}}\,(\mathrm{HAB},\ r, i) = \\ \dfrac{1}{N_{pix}\overline{N_{agg}}(\mathrm{HAB},\ r,\ i)} \displaystyle\sum_{j=1}^{N_{pix}} N_{agg}(\mathrm{HAB}\,(j)\,,\ r(j)) \dfrac{dp(D_g)}{d\log D_g}\,(\mathrm{HAB(j)},\ r(j)) \\ \\ \overline{N_{agg}}(\mathrm{HAB},\ r,\ i) = \dfrac{1}{N_{pix}} \displaystyle\sum_{j=1}^{N_{pix}} N_{agg}(\mathrm{HAB}\,(j)\,,\ r(j)) \end{cases} \tag{5.18}$$

où N_{pix} est le nombre total de pixels contenus dans la zone d'étude. Le moyennage temporel des distributions instantanées moyennées spatialement, est réalisé sur les 8000 paires d'images i acquises selon l'expression suivante :

$$\begin{cases} \langle \overline{\dfrac{dp(D_g)}{d\log D_g}} \rangle\,(\mathrm{HAB},\ r) = \dfrac{1}{N_i} \displaystyle\sum_{i=1}^{N_i} \overline{N_{agg}}(\mathrm{HAB},\ r) \dfrac{dp(D_g)}{d\log D_g}\,(\mathrm{HAB},\ r) \\ \\ \overline{N_{agg}}(\mathrm{HAB},\ r,\ i) = \dfrac{1}{N_{pix}} \displaystyle\sum_{j=1}^{N_{pix}} N_{agg}(\mathrm{HAB},\ r) \end{cases} \tag{5.19}$$

5.3.3 Résultats et discussions

La procédure développée et présentée ci-dessus est appliquée aux données enregistrées dans cette campagne de mesure : les distributions SMPS ont été converties en diamètres de giration, et les distributions instantanées obtenues par diffusion angulaire ont été moyennées temporellement. Bien que, mathématiquement parlant, la combinaison linéaire de fonctions de type log-normale n'est pas elle-même une fonction log-normale, on peut constater que la distribution moyennée temporellement reste de type log-normale. Ainsi, la distribution SMPS convertie et la distribution moyenne issue de la technique optique sont *fittées* par des lois log-normales. Les résultats de cette comparaison sont affichés sur les figures 5.12 et 5.13.
Les points rouges se rapportent aux mesures SMPS, et les croix noires aux mesures par diffusion angulaire. Les diamètres moyens des agrégats, ainsi que les concentrations locales des particules, sont comparés sur trois hauteurs (35, 45 et 55 mm) et trois positions radiales (de 0 à 20, par pas de 5 mm). Les valeurs moyennes de $D_{g,\ geo}$ relevées par la technique optique sont très homogènes pour toutes les positions dans la flamme : de l'ordre de 30 nm. Concernant les mesures obtenues avec la technique ex-situ, on observe globalement des valeurs de $D_{g,\ geo}$ situées entre 25 et 30 nm lorsque la position radiale de l'entrée de la sonde est voisine de 0. Celles-ci tendent à diminuer au fur et à mesure que la position du prélèvement s'éloigne de l'axe du brûleur. Ainsi, autour de l'axe du brûleur, les diamètres mesurées avec les deux techniques présentent de bonnes similitudes caractérisées par la superposition de leurs barres d'erreur respectives. Néanmoins, pour des positions radiales plus élevées, l'écart est tel que les incertitudes estimées pour chaque technique de mesure ne peuvent expliquer les différences observées. Ces écarts s'accentuent notamment lorsque la position de prélèvement s'approche de la sortie du brûleur. Sur la flamme P1, à une hauteur de 45 mm, un écart significatif s'opère à partir de $r = 10$ mm. Pour HAB = 35 mm, il apparaît dès $r = 5$ mm. Ces différences peuvent s'expliquer notamment par la présence « intrusive » de la sonde dans la flamme lors des mesures par prélèvement. Alors que son impact est relativement limité loin de la sortie du brûleur (c'est-à-dire lorsqu'on analyse des gaz brûlés), l'effet de la présence de la sonde se fait ressentir à de très faibles HAB, malgré sa compacité. La perturbation de la flamme par la sonde conduit alors à une modification de la production des particules de suie. Afin d'évaluer cette l'intrusivité de la sonde, il aurait fallu réaliser les mesures supplémentaires par diffusion angulaire à haute cadence en présence de la sonde de prélèvement. Une seconde explication plausible quant aux écarts observés peut provenir de l'opération de conversion des diamètres de mobilité électrique. Cette opération repose en effet sur des paramètres morphologiques non mesurés directement dans la flamme. L'écart observé peut également être dû au diagnostic optique, dont la sensibilité en termes de signal-à-bruit diminue lorsque les agrégats sont petits, ce qui est le cas ici. Notons également que les diamètres mesurés par diffusion angulaire sont presque systématiquement supérieurs à ceux obtenus par le SMPS. Il s'agit sans doute d'un artefact de mesure, causé par l'impossibilité du diagnostic de diffusion à détecter les trop petits agrégats. Enfin, la diffusion angulaire repose sur différents modèles nécessaires à calculer le diamètre moyen $D_{g,\ geo}$. Le modèle de diffusion utilisé, à savoir la RDG-FA, reste un modèle simple en utilisation mais relativement peu sophistiqué. Par ailleurs, bien que le caractère log-normal des distributions en particules semble vérifié (d'après les relevés SMPS), la valeur du paramètre de σ_g reste supposée égale à 1,6. Or, la polydispersion peut avoir un impact non négligeable sur la distribution moyenne en temps en taille de particules moyennée.
De la même manière, les concentrations d'agrégats par unité de volume affichent les mêmes ordres de grandeur : autour de 10^9 agrégats par centimètre cube. Sur la flamme P1, les concentrations obtenues par les techniques in- et ex-situ observent le même comportement, hormis l'anomalie observée à HAB = 35 mm et $r = 10$ mm. Sur la flamme P2, les résultats concordent à $r = 10$ et 15 mm, mais un écart d'un ordre de grandeur est observé pour $r = 5$ mm. A priori, il ne s'agit pas d'une erreur causée par la technique de mesure par prélèvement. Le SMPS, par l'intermédiaire de son

CPC, compte les agrégats de suie unitairement, avec une incertitude annoncée de 10%. Une erreur sur la concentration peut s'expliquer par une mauvaise évaluation du taux de dilution appliqué à l'aérosol, qui trouverait son origine au moment de l'étalonnage du dispositif de prélèvement. Côté mesure par voie optique, les sources d'incertitudes sont plus nombreuses. En effet, l'évaluation de N_{agg} repose avant tout sur la détermination de $D_{g,\ geo}$, au travers du paramètre de taille T. Ces deux termes sont dépendants de plusieurs biais possibles, comme évoqué plus haut : entre autres, un modèle de diffusion RDG-FA et une distribution supposée log-normale, avec un paramètre de polydispersion de 1,6. Enfin, une possible erreur systématique peut également avoir été causée lors de l'étalonnage du paramètre α, utilisé pour la détermination de N_{agg}.

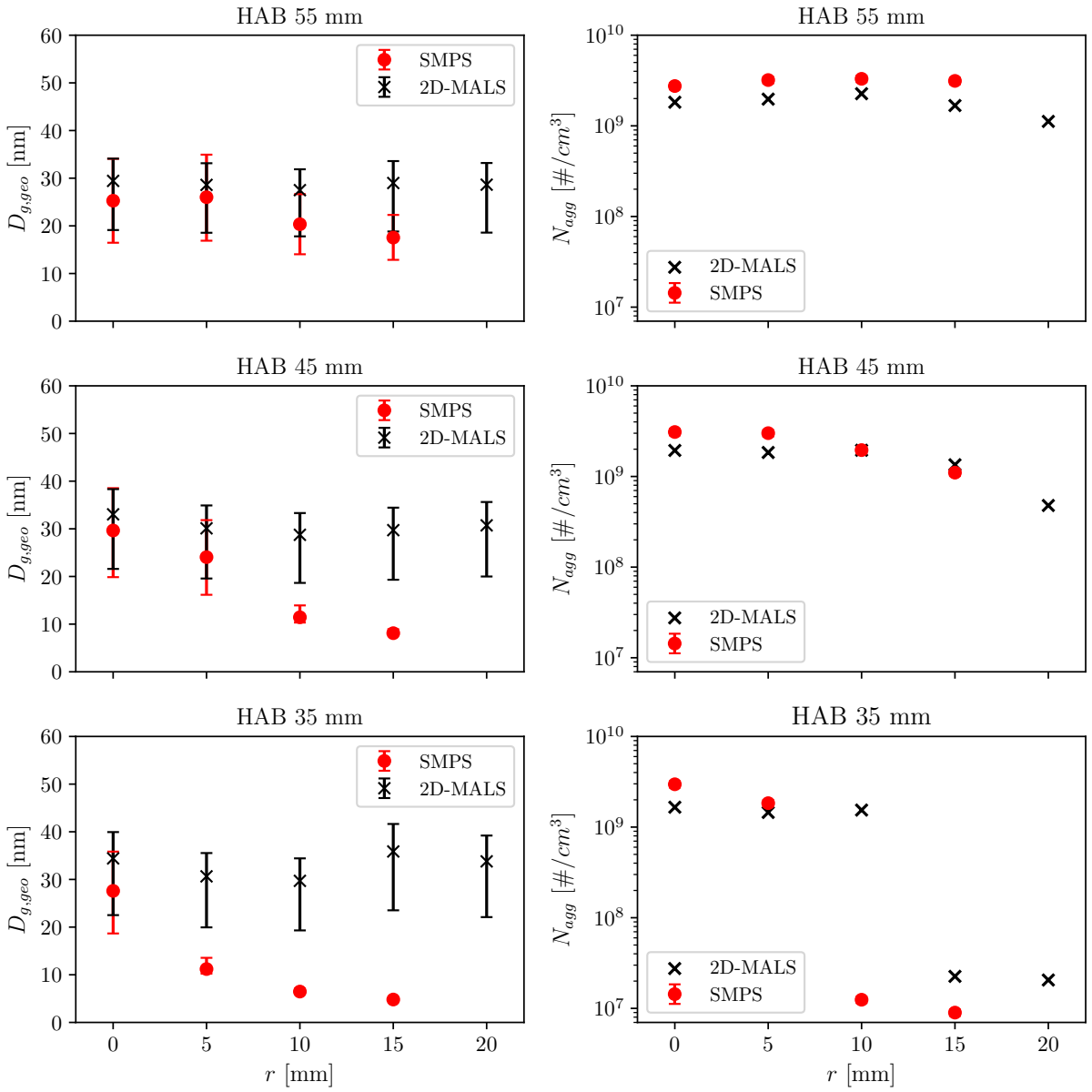

FIGURE 5.12 – Comparaisons finales de mesures optiques (noires) et par prélèvement (rouge) sur la flamme P1

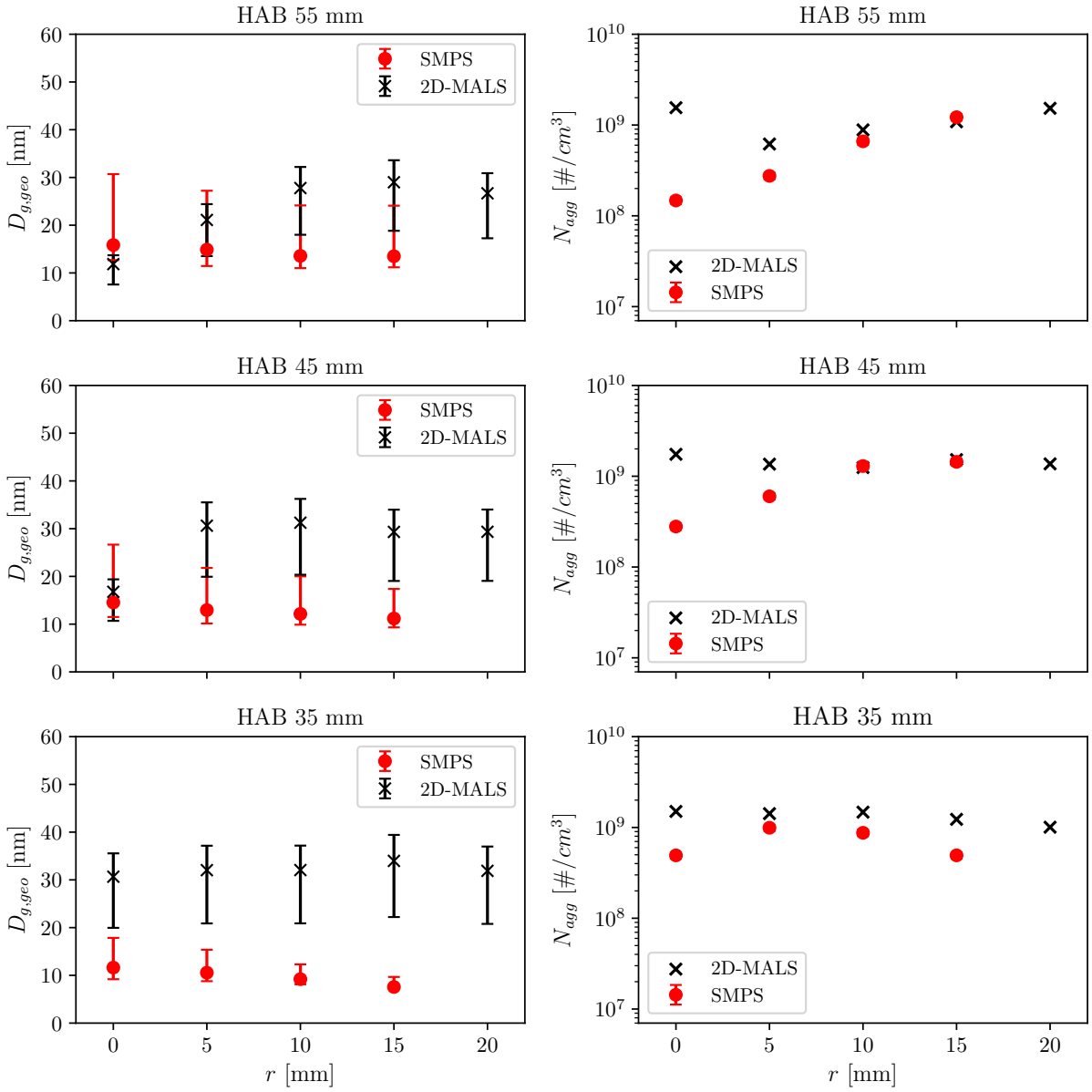

FIGURE 5.13 – Comparaisons finales de mesures optiques (noires) et par prélèvement (rouge) sur la flamme P2

5.4 Conclusion

Une campagne de mesure comparative de tailles de particules de suie a été réalisée sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique. Dans un premier temps, un dispositif de prélèvement, semblable à celui qui sera utilisé sur le banc de combustion HERON, a été installé sur le brûleur SIRIUS. Des prélèvements ont été réalisés sur trois points de fonctionnement de la flamme, puis ont été analysés par SMPS. Grâce à un système de déplacement, des prélèvements de particules de suie ont été effectués sur une zone étendue de flamme, et des distributions spatiales de taille et de concentration en particules de suie ont pu être dressées. Ces distributions ont été comparées avec des mesures de taille obtenues avec le diagnostic optique de diffusion angulaire haute cadence réalisées sur le banc de combustion SIRIUS. Cette technique optique in-situ exploite la variation de l'intensité diffusée par les agrégats en fonction de l'angle pour remonter à des diamètres de giration moyens dans la flamme. Parce que les techniques in- et ex-situ sont foncièrement différentes, une étape de post-traitement des données a été réalisée au préalable. Celle-ci a consisté à réaliser une conversion des diamètres de mobilité électrique, mesurée par le SMPS, en diamètres de giration, en ayant recours à un modèle semi-empirique issu de la littérature. Dans un deuxième temps, les mesures optiques à haute cadence ont été combinées afin d'obtenir une distribution moyennée en temps, de manière à être comparée aux distributions en taille mesurées par SMPS. En dépit du principe fondamentalement différent des deux techniques de mesure, et de leurs incertitudes qui leur sont propres, les diamètres de giration moyens relevés et les concentrations mesurées observent une bonne similarité. Un écart reste présent dès lors que la mesure est réalisée dans la zone d'injection des fluides frais (i.e. liée aux perturbations de l'écoulement par l'intrusivité de la sonde), ou lorsqu'elle est éloignée de l'axe de sortie du brûleur (i.e. dans une zone réactive turbulente).

Dans une plus large mesure, les résultats de cette étude montrent que la métrologie ex-situ, appliquée à l'étude de la production de suie des systèmes d'injection RQL dans la chambre de combustion haute-pression HERON, donnera des informations quantitatives en termes de taille et concentration de particules de suie. La concordance des mesures obtenues par les deux techniques de mesure dans les flammes étudiées dans le brûleur SIRIUS permet en effet de valider le principe de mesure de la taille et de la concentration en particules par prélèvement avec une sonde de prélèvement disposant d'un système de dilution à l'azote et placée dans une zone de gaz brûlés.

5.5 Références

[1] Pramod Kulkarni, Paul A. Baron et Klaus Willeke. *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*. John Wiley & Sons, 9 sept. 2011. 904 p. isbn : 978-1-118-00167-7.

[2] I.A. Mulla, J. Yon, D. Honoré, C. Lacour, A. Cessou et B. Lecordier. « Comprehensive characterization of sooting butane jet flames, Part 2 : Temperature and soot particle size ». In : *Combustion and Flame* 233 (nov. 2021), p. 111596. doi : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2021.111596.

[3] Wesley Boyette, Snehaunshu Chowdhury et William Roberts. « Soot Particle Size Distribution Functions in a Turbulent Non-Premixed Ethylene-Nitrogen Flame ». In : *Flow, Turbulence and Combustion* 98.4 (fév. 2017), p. 1173-1186. doi : 10.1007/s10494-017-9802-5.

[4] A.T. Juarez Facio, J. Yon, C. Corbière, T. Rogez-Florent, C. Castilla, H. Lavanant, M. Mignot, C. Devouge-Boyer, C. Logie, L. Chevalier, J.-M. Vaugeois et C. Monteil. « Toxicological impact of organic ultrafine particles (UFPs) in human bronchial epithelial BEAS-2B cells at air-liquid interface ». In : *Toxicology in Vitro* 78 (fév. 2022), p. 105258. DOI : 10.1016/j.tiv.2021.105258.

[5] Uemit Koeylue, Yangchuan Xing et Daniel E. Rosner. « Fractal Morphology Analysis of Combustion-Generated Aggregates Using Angular Light Scattering and Electron Microscope Images ». In : *Langmuir* 11.12 (déc. 1995), p. 4848-4854. DOI : https://doi.org/10.1021/la00012a043.

[6] S. Chippett et W. Gray. « The Size and Optical Properties of Soot Particles ». In : *Combustion and Flame* 31 (1978), p. 149-159. DOI : https://doi.org/10.1016/0010-2180(78)90125-6.

[7] Maxime Bouvier, Gilles Cabot, Jérôme Yon et Frédéric Grisch. « On the use of PIV, LII, PAH-PLIF and OH-PLIF for the study of soot formation and flame structure in a swirl stratified premixed ethylene/air flame ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 38.1 (2021), p. 1851-1858. DOI : 10.1016/j.proci.2020.10.002.

[8] Maxime Bouvier, Jerôme Yon, Franck Lefebvre, G. Godard, Aurélien Perrier, Gilles Cabot et Frederic Grisch. « Time-resolved 2D angular scattering of soot particles in atmospheric turbulent flames ». In : *39th International Symposium on Combustion*. Vancouver, Canada, juill. 2022. URL : https://hal-normandie-univ.archives-ouvertes.fr/hal-03763465.

[9] Silvana De Iuliis, Francesco Cignoli, Sergio Benecchi et Giorgio Zizak. « Determination of soot parameters by a two-angle scattering–extinction technique in an ethylene diffusion flame ». In : *Applied Optics* 37.33 (nov. 1998), p. 7865. DOI : https://doi.org/10.1364/AO.37.007865.

[10] Michael Altenhoff, Simon Assmann, Julian F. A. Perlitz, Franz J. T. Huber et Stefan Will. « Soot aggregate sizing in an extended premixed flame by high-resolution two-dimensional multi-angle light scattering (2D-MALS) ». In : *Applied Physics B* 125.9 (août 2019). DOI : 10.1007/s00340-019-7282-0.

[11] M. Bouvier, J. Yon, F. Liu, G. Cabot et F. Grisch. « Application of planar auto-compensating laser-induced incandescence to low-sooting turbulent flames and investigation of the detection gate width effect ». In : *Aerosol Science and Technology* 55.11 (juin 2021), p. 1215-1229. DOI : https://doi.org/10.1080/02786826.2021.1935699.

[12] J. Yon, A. Bescond et F.-X. Ouf. « A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates ». In : *Journal of Aerosol Science* 87 (sept. 2015), p. 28-37. DOI : 10.1016/j.jaerosci.2015.05.003.

[13] Almila Güvenç Yazicioglu, Constantine M. Megaridis, Angela Campbell, Kyeong-Ook Lee et Mun Young Choi. « Measurement of Fractal Properties of Soot Agglomerates in Laminar Coflow Diffusion Flames using Thermophoretic sampling in Conjuction with Transmission Electron Microscopy and Image Processing ». In : *Combustion Science and Technology* 171.1 (jan. 2001), p. 71-87. DOI : https://doi.org/10.1080/00102200108907859.

[14] Marina Schenk, Sydnie Lieb, Henning Vieker, André Beyer, Armin Gölzhäuser, Hai Wang et Katharina Kohse-Höinghaus. « Morphology of nascent soot in ethylene flames ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 35.2 (2015), p. 1879-1886. DOI : 10.1016/j.proci.2014.05.009.

[15] Jérôme Yon, José Morán, François.-Xavier Ouf, Marek Mazur et Jean-Baptiste Mitchell. « From monomers to agglomerates : A generalized model for characterizing the morphology of fractal-like clusters ». In : *Journal of Aerosol Science* 151 (jan. 2021), p. 105628. doi : https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2020.105628.

Chapitre 6

Campagne de mesures couplées de PLIF-OH, PLIF-HAP, LII et PIV basse cadence sur une flamme prémélangée, swirlée et stratifiée à pression variable

Sommaire

6.1 Dispositif expérimental 94
6.1.1 Brûleur 94
6.1.2 Montage optique 94
6.1.3 Lasers et chemins optiques 95
6.2 Résultats et discussions 97
6.2.1 Pression atmosphérique 97
6.2.2 Pression élevée 103
6.2.3 Scénario de formation de particules de suie 111
6.3 Conclusions globales 113
6.4 Références 113

Dans l'optique de préparer les campagnes de mesures par diagnostics laser avancés sur le banc de combustion HERON, une campagne de mesure préparatoire a été réalisée sur une chambre de combustion à pression élevée fonctionnant avec un combustible gazeux disponible au CORIA. Quatre diagnostics optiques couplés sont mis en œuvre :

- La Fluorescence Induite par Laser sur le radical OH (PLIF-OH), dont l'interprétation des signaux de mesure renseignent sur la structure de la flamme.
- La Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV), utilisée ici pour mesurer les distributions spatiales de vitesse nécessaires pour analyser l'aérodynamique de la flamme.
- La Fluorescence Induite par Laser sur les HAP, ces derniers étant connus pour leur rôle de précurseur dans la formation de particules de suie.
- L'Incandescence Induite par Laser (LII), permettant d'obtenir la fraction de volume occupée par les particules de suie produites au sein de la flamme.

Cette campagne fait suite à une autre campagne de mesures couplées de PLIF-OH, de PLIF-HAP, de LII et de PIV réalisée par Bouvier et al. [1] sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique. L'objectif de cette nouvelle campagne de mesure est double : d'une part, celle-ci va permettre d'apporter de premiers éléments de réponse concernant la phénoménologie des mécanismes de formation de suie à pression élevée sur des systèmes de combustion complexes. D'autre part, ce gain d'expérience permettra d'aborder les futures mesures à réaliser sur le banc de combustion HERON

de manière à optimiser les paramètres optiques servant à optimiser la qualité et la précision des mesures.

6.1 Dispositif expérimental

6.1.1 Brûleur

La campagne de mesures couplées est réalisée sur le brûleur SIRIUS. Déjà détaillé dans le chapitre 5, le brûleur fonctionnant dans un mode de flamme prémélangée, swirlée et stratifiée éthylène/air s'est vu doté, dans le cadre de cette campagne de mesure, d'un nouveau boitier de visualisation optique dans le but de pouvoir produire des flammes à pression élevée. Il s'agit du même module de visualisation que celui installé sur le banc de combustion haute-pression HERON, celui-ci étant équipé de quatre accès optiques dont deux sont de grandes dimensions, i.e. 100 x 80 mm^2. Ce module permet de produire une flamme confinée avec une pression pouvant atteindre 5 bar. Au cours de cette étude, quatre niveaux de pression sont ainsi étudiés. Les conditions opératoires des points de fonctionnement correspondent au point P2 présenté au chapitre 5, associée à une augmentation homothétique des débits de carburants avec la pression chambre. Comme l'illustrent les images d'émission naturelle sur la figure 6.1, la montée en pression a pour effet de considérablement transformer la structure de flamme ainsi que la production des particules de suie : celle-ci devient plus lumineuse, plus large, et plus courte.

FIGURE 6.1 – Emission naturelle de la flamme SIRIUS observée à 1, 2, 3 et 4 bar (de gauche à droite, même temps d'exposition caméra)

6.1.2 Montage optique

Dans cette étude, un ensemble de deux sources laser et de cinq caméras a été nécessaire pour combiner les quatre diagnostics laser utilisés. L'agencement des systèmes laser et des caméras disposées autour du brûleur est décrit dans la figure 6.2.

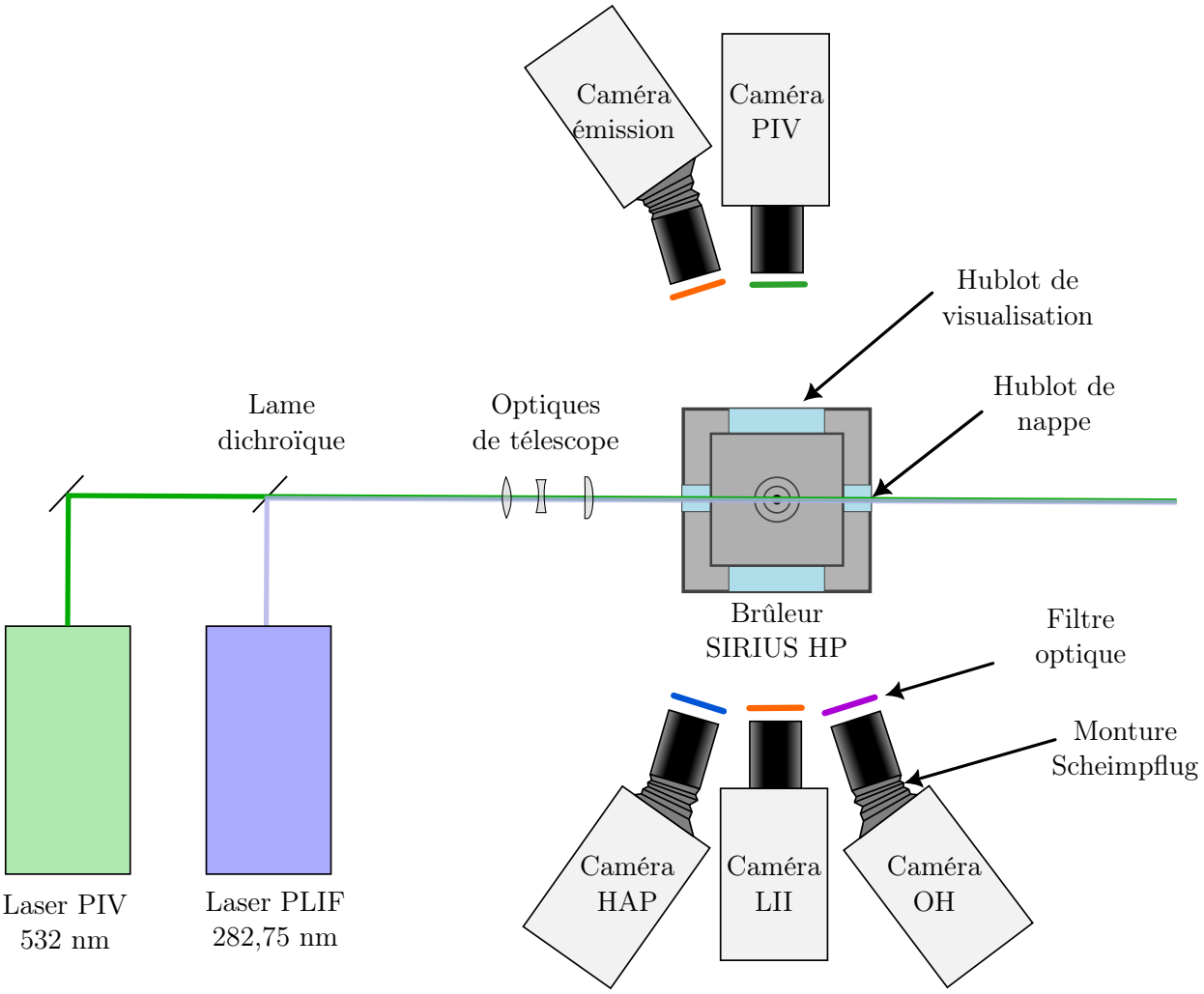

FIGURE 6.2 – Dispositif expérimental

6.1.3 Lasers et chemins optiques

La source laser servant aux mesures de PLIF-OH, de PLIF-HAP et la LII-2D est une source laser à colorant utilisant de la Rhodamine 590 diluée dans de l'éthanol et pompé par un laser Nd :YAG produisant des impulsions laser à 532 nm d'une durée de 6 ns, à une fréquence de répétition de 10 Hz. Le laser à colorant est réglé pour exciter la transition $Q_1(5)$ de la bande électronique $A^2X^+(0,0) \leftarrow X^2\Pi(0,1)$ du radical OH, à λ=282,75 nm. L'impulsion laser permet également d'exciter les HAP (principalement des mono- et diaromatiques) et les particules de suie. La transition $Q_1(5)$ a été sélectionnée pour sa capacité à délivrer des signaux intenses de fluorescence de OH, et pour leur faible dépendance en température. L'énergie du faisceau laser est fixée à quelques mJ de manière à s'assurer que les mesures de fluorescence aient lieu dans un régime d'excitation linéaire. Les mesures de PIV sont réalisées avec une source laser Nd :YAG double-impulsion 532 nm (Quantel Q-smart 850). Chaque tête du système laser délivre des impulsions laser de 340 mJ, à une fréquence de 10 Hz. Les faisceaux laser à 282,75 nm et 532 nm sont ensuite superposés par le biais d'une lame dichroïque. Ce composant optique permet de réfléchir le faisceau UV tout en transmettant le rayonnement visible provenant du laser PIV. Le recouvrement des faisceaux laser est optimisé afin de s'assurer d'une superposition parfaite des nappes laser venant interagir avec la flamme dans la zone d'investigation.
Les impulsions lumineuses émises par les deux sources laser sont ensuite transformées chacune en

une nappe laser de dimensions 50 mm × 50 mm × 200 μm au moyen d'une combinaison de lentilles : une sphérique convergente (f = 1000 mm) servant à focaliser les deux nappes laser au volume de mesure et deux lentilles cylindriques, une convergente (f = 300 mm) et une divergente (f = -25 mm), servant de télescope. Les mesures par PLIF, LII et PIV sont synchronisées temporellement en intercalant l'impulsion laser servant à la PLIF et à la LII entre les deux impulsions laser de PIV.

6.1.3.1 PLIF-OH et PLIF-HAP

La collection des signaux de fluorescence est assurée par deux caméras PI-MAX 4 emICCD 16 bit (Princeton Instruments), munies d'une matrice sensible de 1024 × 1024 pixels. Ces caméras sont équipées d'un objectif UV Cerco (f/2,8). Les caméras de PLIF-OH et de PLIF-HAP sont disposées de part et d'autre de la caméra utilisée pour la LII (figure 6.2), et sont légèrement inclinées. Les caméras sont accompagnées d'une monture Scheimpflug. Il s'agit d'un dispositif optique utilisé pour redresser le plan de focalisation des caméras et ainsi les confondre avec le plan de la nappe laser.
Pour les mesures par PLIF-OH, la caméra est équipée d'un filtre dichroïque centré sur 315 nm (FWHM = 15 nm), d'un filtre coloré Schott WG295 ainsi que d'un filtre passe-bas Asahi 325 nm. Concernant les mesures de PLIF-HAP, le filtrage du signal est assuré par un filtre passe-bande 350-400 nm (Edmund Optics) couplé à un filtre passe-bas à 400 nm (Asahi). La durée d'exposition des caméras est fixée à 10 ns.

6.1.3.2 LII

Comme mentionné précédemment, le signal d'incandescence est produit en utilisant le faisceau laser dédié aux mesures de PLIF. La détection du signal de LII est assurée par une caméra PI-MAX 4 emICCD 16 bit (Princeton Instruments), avec une résolution de 1024 × 1024 pixels, placée orthogonalement au plan de la nappe laser. Celle-ci est équipée d'un objectif Nikkor (f = 105 mm, f/4,5). Le filtrage du signal de LII est réalisé avec un filtre optique passe-haut de 400 nm, permettant d'éliminer l'émission de fluorescence parasite de OH et des HAP.
Une caméra supplémentaire, intitulée caméra « émission » sur la figure 6.2, est utilisée pour enregistrer l'émission naturelle de la flamme et la soustraire au signal brut de LII. Il s'agit d'une caméra PI-MAX 4 emCCD 16 bit (Princeton Instruments), munie d'une matrice de 1024 × 1024 pixels. Pour des raisons d'encombrement, la caméra émission est placée à côté de la caméra PIV. Etant inclinée comme les caméras OH et HAP, elle est de fait équipée d'une monture Scheimpflug. La caméra émission dispose du même matériel de collection que la caméra LII : un objectif Nikkor (f = 105 mm, f/4,5) ainsi qu'un filtre passe-haut de 400 nm.
Les durées d'exposition de la caméra LII ainsi que celle de la caméra émission sont réglées sur 100 ns. L'ouverture de la caméra émission est avancée de 110 ns par rapport à l'impulsion laser émise par la source laser OH.

6.1.3.3 PIV

Les mesures par PIV sont réalisées en ensemençant les prémélanges gazeux des couronnes interne et externe du brûleur SIRIUS avec des particules inertes. Il s'agit en l'occurrence d'un mélange de particules solides d'oxyde de zirconium ZrO_2 (5 µm) associées à d'un faible pourcentage d'oxyde de silicium SiO_2. Les particules sont mises en mouvement par deux ensemenceurs cycloniques conçus au laboratoire. Ceux-ci sont installés entre les débitmètres d'air du brûleur SIRIUS et les mélangeurs gazeux éthylène-air.
La diffusion de Mie des particules ensemencées dans l'écoulement réactif, provenant de leur excitation par la source laser PIV, est détectée avec une caméra CCD dual-frame (Jai TM4200CL, 2048 × 2048 pixels). La caméra PIV est placée perpendiculairement à la propagation de la nappe laser,

et fait face à caméra LII (figure 6.2). La caméra PIV dispose d'un objectif Zeiss Milvius et d'un filtre interférentiel à 532 nm.
Les images enregistrées par la caméra PIV sont analysées par un algorithme de corrélation croisée en utilisant le logiciel Dynamic Studio (Dantec Dynamics) avec une taille finale de fenêtre d'interrogation de 16 × 16 pixels. Le champ de vitesse ainsi obtenu est une grille 2D composée de vecteurs vitesses séparés de 455 µm.

6.2 Résultats et discussions

Dans cette section sont présentées les données enregistrées par les diagnostics laser ainsi que leurs corrélations pour les quatre conditions de pression analysées. La première partie concerne les résultats de PLIF, de LII et de PIV à presion atmosphérique, dans le but de comprendre les mécanismes de formation de particules de suie produites par la flamme SIRIUS à pression atmosphérique. Dans un second temps, l'attention est portée sur l'effet de la pression chambre sur la formation des suies.

6.2.1 Pression atmosphérique

6.2.1.1 Écoulement global et topologie de flamme

La flamme produite par le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique est caractéristique d'une flamme swirlée conventionnelle. Comme illustrée sur la figure 6.3 d), celle-ci comprend une zone de recirculation interne (IRZ), stabilisée par la présence d'un accroche-flamme à la sortie du brûleur, ainsi que de zones de recirculation externes (ORZ). Les deux zones de recirculation sont séparées par les jets annulaires de prémélange éthylène-air. Les vitesses mesurées par PIV (figure 6.3) révèlent des valeurs de vitesse des gaz dans l'IRZ de l'ordre de 1 m/s. À titre de comparaison, celles-ci sont inférieures aux valeurs de vitesses des jets annulaires interne (5 m/s) et externe (15 m/s). Ces forts gradients de vitesse induisent deux couches annulaires de cisaillement interne et externe, où sont observées de larges fluctuations de vitesse ainsi que la présence de structures fortement plissées.
En supplément de l'aérodynamique de l'écoulement, la topologie de flamme est analysée en sondant la distribution spatiale du radical OH au moyen de la PLIF. Le radical OH est un sous-produit des réactions de combustion, qui est progressivement produit et consumé dans la flamme en raison de sa nature réactive. Les pics de fluorescence sont naturellement localisés dans les zones les plus réactives, c'est-à-dire là où les mécanismes réactionnels de consommation du combustible se produisent. Ces régions, appelées front de flamme, ne font que quelques centaines de microns d'épaisseur, et libèrent d'intenses dégagements de chaleur. Ainsi, le gradient du signal de fluorescence de OH peut être interprété pour localiser le front de flamme. Par ailleurs, les signaux de OH ne disparaissent pas immédiatement en aval du front de flamme, ceux-ci pouvant également être utilisés comme un marqueur de gaz brûlés à haute température. Pour toutes les images instantanées, un fort gradient de signal de OH est observé sur la partie externe du jet d'injection externe du mélange éthylène/air, révélant la zone du front de flamme majoritaire. Ce gradient de OH est fortement plissé par la turbulence résultant non seulement des mécanismes de mélange entre le jet externe et le coflow, mais également des gradients de température causés par les forts dégagements de chaleur. L'image instantanée de la figure 6.3 b) révèle que le plissement de la flamme démarre dès la sortie du brûleur, à $r = 10$ mm. Ce rayon correspond au bord du tube intermédiaire, également de rayon 10 mm, et séparant les injections des mélanges combustible/air interne et externe. En d'autres termes, la flamme est accrochée sur le bord du tube intermédiaire. En revanche, bien que le jet interne soit un prémélange éthylène/air susceptible de brûler, aucun signal de fluorescence de OH n'est observable au centre de la flamme, ce qui montre qu'aucune réaction de combustion ne se produit dans la zone d'injection d'un prémélange riche combustible/air. Enfin, des signaux de OH apparaissent par intermittence dans la partie supérieure de l'IRZ, signe du transport de gaz chauds fortement

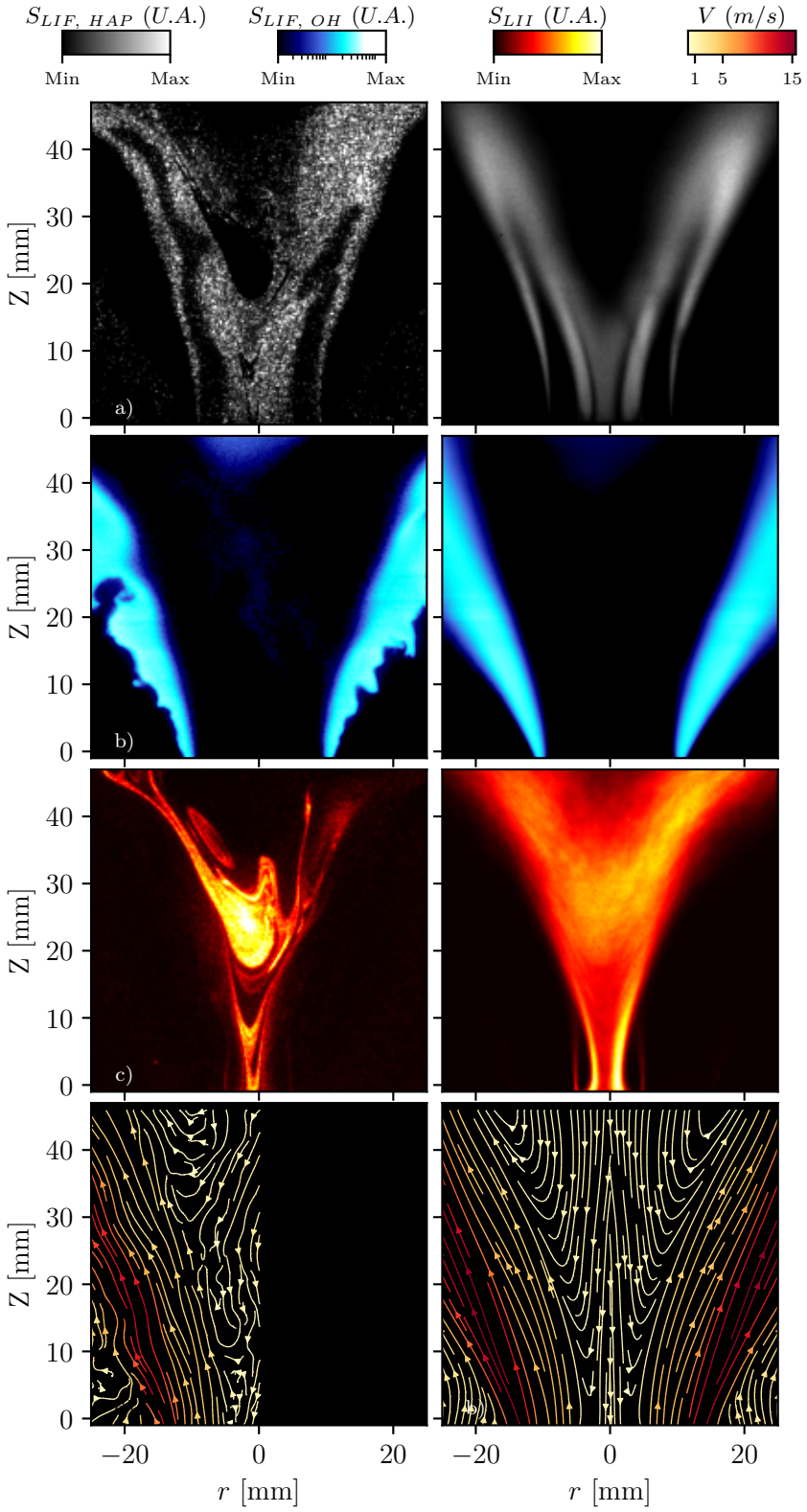

FIGURE 6.3 – Distributions spatiales de a) PLIF-HAP, b) PLIF-OH, c) LII et d) lignes de courant, obtenues sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique

oxydants de l'aval de la flamme vers le cœur de l'IRZ. L'analyse des signaux de mesure moyennés à 1 bar montre néanmoins que cette injection de OH dans l'IRZ reste limitée à des hauteurs excédant 40 mm.

6.2.1.2 Distribution spatiale de HAP

Les signaux de HAP se distribuent sous la forme d'une longue bande creuse centrée autour de l'injection interne du mélange air/combustible (figure 6.3 a.). Contrairement aux signaux de PLIF-OH, les signaux ont un faible rapport signal-à-bruit, ce qui témoigne d'une faible concentration en HAP dans la flamme. Par ailleurs, peu de variabilité dans le positionnement des HAP est observée. Cependant des lâchés de poches de HAP sur des images instantanées sont quelquefois observés. De toute évidence, les espèces aromatiques, en l'occurrence des mono- et des diaromatiques détectées par la technique PLIF, appartiennent aux précurseurs de suie et proviennent de la décomposition thermique de l'éthylène contenu dans le prémélange combustible/air riche. En effet, la zone de prémélange riche est localisée entre deux sources de chaleur intenses : les gaz chauds recirculant dans l'IRZ, et les gaz brûlés juste en aval du front de flamme. Réciproquement, aucun signal de fluorescence de HAP n'est observable autour du jet externe de combustible/air. Contrairement au jet interne de combustible/air, le prémélange externe réagit intégralement et alimente en combustible et en produits de décomposition le front de flamme. Dans l'hypothèse où des produits aromatiques se produiraient, ceux-ci seraient directement consommés par combustion et n'auraient pas le temps nécessaire de former les premiers cycles aromatiques, précurseurs de formation de suie.

6.2.1.3 Distribution spatiale de suie

Les signaux d'incandescence de suie enregistrées par la caméra LII indiquent que la distribution spatiale des particules de suie se concentre sur des régions de la flamme bien spécifiques (figure 6.3 d). La première zone est localisée le long de la couche de cisaillement entre le jet d'injection interne et la zone de recirculation interne, où les particules de suie se répartissent en fins filaments. La deuxième région correspond à la zone de recirculation interne IRZ, où les particules de suie sont agencées sous la forme de poches de suies hautement intermittentes, épaisses et tourbillonnantes. À première vue, il ne semble pas possible d'interpréter physiquement les mécanismes de formation de suie en se basant uniquement sur les images de LII. Cependant, le couplage des images enregistrées par PLIF-OH, PLIF-HAP, LII et PIV permettent d'obtenir des corrélations entre plusieurs grandeurs physiques intervenant dans la formation des suies. La figure 6.4 représente la superposition des images de la figure 6.3 enregistrées au même instant à partir des quatre types de mesure. Les champs de vitesse mesurés par PIV, ainsi que la localisation des agrégats témoignent de leur origine, et permettent d'affirmer que les particules de suie localisées dans les deux zones observées précédemment sont de différentes natures. Tout d'abord, les ligaments de suie se situent systématiquement en périphérie de la zone des HAP, située entre le jet interne de combustible/air et l'IRZ. À proximité de l'IRZ, les précurseurs de suie de type HAP sont au contact de gaz brûlés provenant de l'aval de la flamme et circulant dans l'IRZ. La chaleur, apportée par ces gaz brûlés à haute température, est diffusée aux HAP, et catalyse les réactions chimiques. De fait, les HAP à faible nombre de cycles benzéniques se combinent pour former des composés aromatiques plus lourds, pour ensuite nucléer et former les premières particules de suie. Notons de plus que ces processus chimiques peuvent se produire uniquement par le fait que les temps de résidence des espèces chimiques présentes à la frontière de l'IRZ et de la zone des HAP est élévé (i.e vitesses locales de l'écoulement proche de zéro), favorisant ainsi les mécanismes de transformations chimiques entre les précurseurs et la production de nanoparticules de suie. À l'inverse, les poches de suies détectées plus en aval dans l'IRZ proviennent essentiellement de particules de suie initialement produites, et viennent se convecter à faible vitesse dans l'IRZ, ce qui a pour effet de rendre leur croissance

permise.

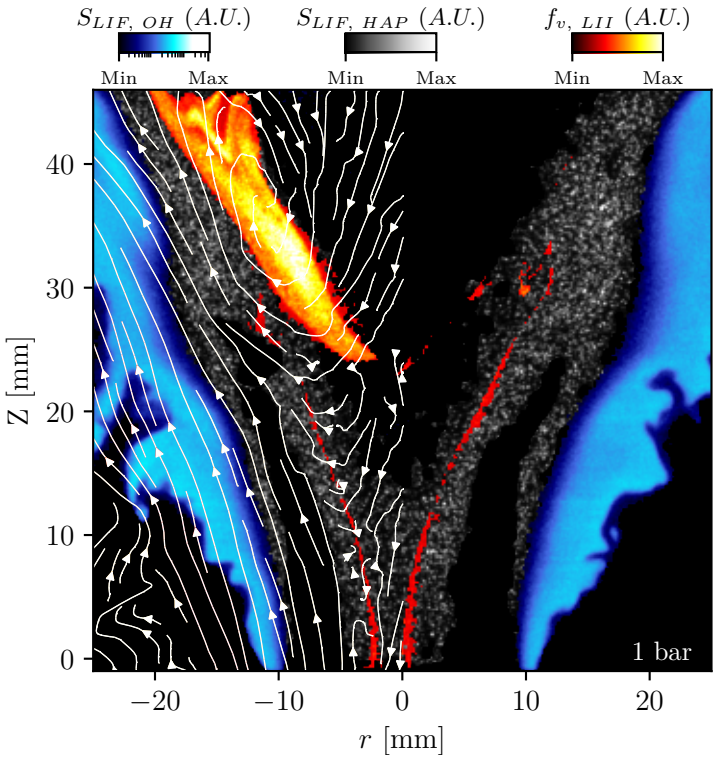

FIGURE 6.4 – Exemple de signaux couplés de PLIF-OH/PLIF-HAP, associés aux lignes de courants colorisées par leur valeur de vitesse verticale V

6.2.1.4 Corrélations entre suie, précurseur, vitesse et taux d'étirement local

Bien que l'analyse des signaux corrélés de PLIF-HAP et de LII permette d'expliquer que les filaments de suie observés sur la figure 6.4 correspondent à des particules de suie naissante, elle ne permet pas à première vue d'expliquer pourquoi la zone de production de suie est si localisée. Après tout, pourquoi n'y a-t-il pas de formation de particules de suie sur toute la largeur de la zone de présence des HAP ? Par ailleurs, aucun filament de LII n'est observé sur la face externe de cette zone de présence. Pourtant, l'apport de chaleur des gaz brûlés chargés en radical OH pourrait également largement favoriser la production de suie naissante dans cette zone, ce qui n'est pas observé.

En réalité, des études antérieures ont souligné que la présence des précurseurs de suie était une condition nécessaire mais non suffisante à la formation des particules de suie. D'autres paramètres seraient susceptibles de favoriser la formation de particules de suie, à commencer par la vitesse locale de l'écoulement [2]. En effet, un temps de résidence suffisamment long des précurseurs de suie leur permet de réagir et se combiner pour former des agrégats de suie. Un second paramètre est également cité pour son effet sur la formation des agrégats, à savoir le taux d'étirement local. Celui-ci se définit comme la somme des dérivées croisées des composantes de vitesses locales :

$$S_{xy} = \frac{1}{2}\left(\frac{d\vec{U}}{d\vec{y}} + \frac{d\vec{V}}{d\vec{x}}\right) \tag{6.1}$$

A titre d'exemple, des mesures couplées de LII et PIV, réalisées sur des flammes turbulentes de

diffusion éthylène/air par Narayanaswamy et Clemens [3], ont montré que la formation des suies était optimisée pour des vitesses voisines de 3 m/s et des taux d'étirement de 700 s^{-1}. Dans son article de 2022, Shariatmadar et al. [4] montre que le taux d'étirement local a un effet majeur sur la croissance des particules de suie à faible nombre de Reynolds. Afin de mieux appréhender le rôle de la vitesse locale et du taux d'étirement, des corrélations spatiales, entre les signaux de LII et les autres paramètres agissant sur la production de particules de suie, sont établies sur des images instantanées. La distribution spatiale du taux d'étirement local S_{xy} est calculée à partir des champs de vitesse mesurés par PIV. La figure 6.5 est un exemple de corrélation spatiale effectuée à pression atmosphérique. Sur le diagramme a), la distibution spatiale de S_{xy} est affichée en nuances de vert, associée à la distribution spatiale de suie (couleurs chaudes). Pour représenter la vitesse, un isocontour de vitesse verticale nulle ($V = 0$) est tracé en bleu marine. Les lignes roses représentent les contours associés aux zones de présence de HAP. Pour finir, le tracé noir correspond au contour du front de flamme.

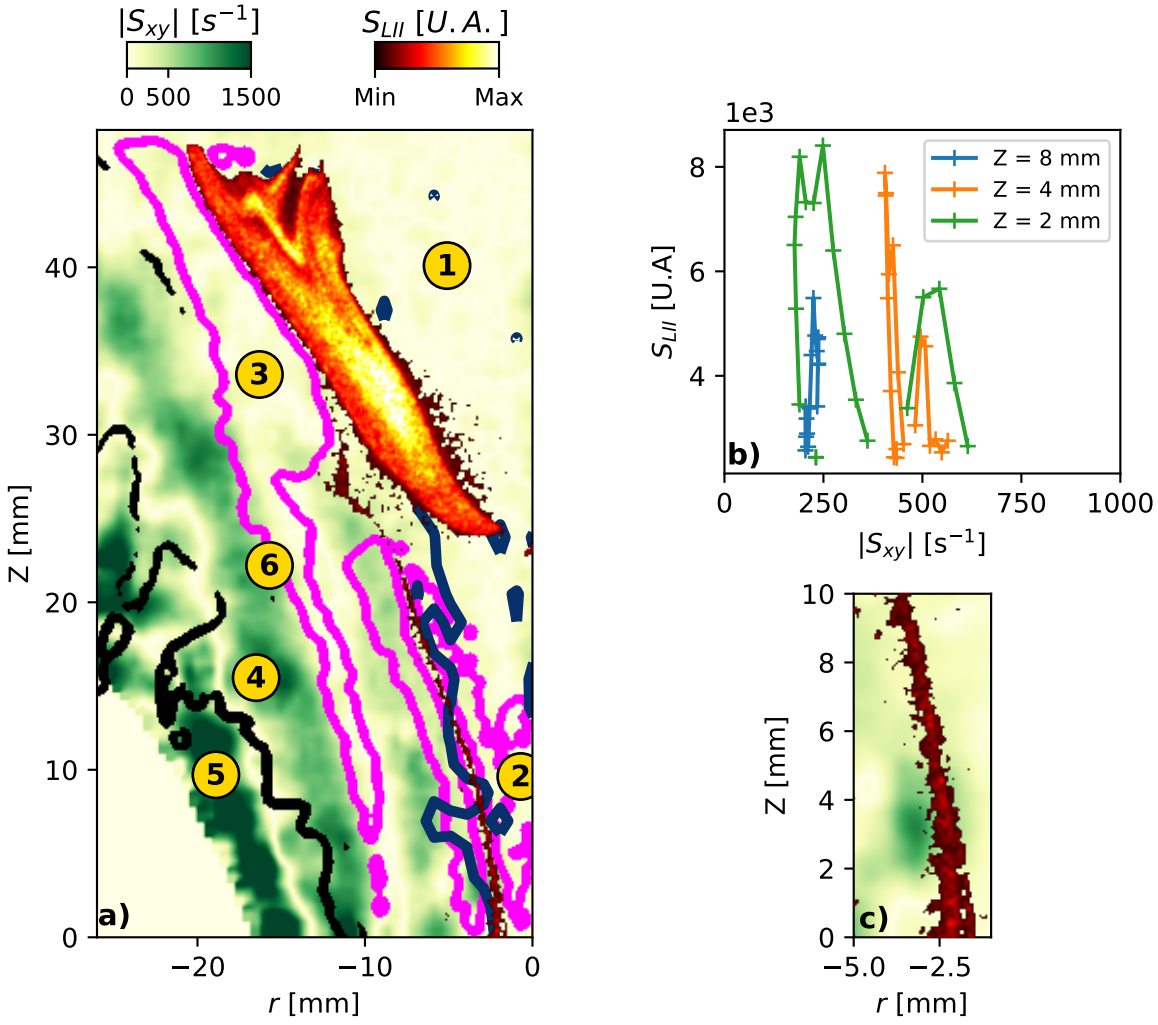

FIGURE 6.5 – Exemple de corrélation a) entre taux de d'étirement S_{xy} (couleurs vertes) et agrégats de suie (couleurs chaudes). Lignes roses : zone de répartition de précurseurs de suie. Ligne bleue : isocontour de vitesse verticale $V = 0\,\mathrm{m/s}$. Ligne noire : zone de délimitation du front de flamme. b) Valeurs de S_{xy} conditionnées par la présence de suie naissante c) Zone d'intérêt de la figure b).

Les distributions spatiales du taux d'étirement S_{xy} mettent en évidence les couches de cisaillement évoquées précédemment. La première couche de cisaillement externe sépare le coflow du jet de combustible/air extérieur. Les niveaux de taux d'étirement maximum observés sur la flamme sont localisés dans cette couche de cisaillement, avec des valeurs de S_{xy} d'environ 1000 à 1500 s^{-1}. La seconde couche de cisaillement résulte du gradient de vitesse entre les jets annulaires interne et externe. Les valeurs de S_{xy} relevées sont comprises entre 700 et 1000 s^{-1}. Enfin, la dernière couche de cisaillement sépare le jet de mélange combustible/air interne et l'IRZ. Dans cette couche de cisaillement, le taux d'étirement est moins intense. Les valeurs de S_{xy} mesurées sont de l'ordre de 500 s^{-1}.
Sur la figure 6.5 a) est représentée la distribution spatiale instantanée de particules de suie. Les agrégats matures se concentrent sur une région d'environ 5 mm d'épaisseur à une hauteur située entre 25 et 45 mm. La zone de suie naissante est distribuée sous la forme d'un long filament s'étalant jusqu'à une hauteur de 30 mm. L'intérêt étant porté à la formation des agrégats de suie, seul le filament de suie naissante sera analysé ici. Pour plus de lisibilité, la zone d'intérêt est également représentée sur la figure 6.5 c). Cette corrélation spatiale entre les différentes grandeurs scalaires d'intérêt permet de mettre en évidence l'effet des trois paramètres identifiés comme favorisant la formation des particules de suie, à savoir : la présence de précurseurs de suie (HAP), des vitesses locales faibles et des taux d'étirement élevés. Une observation de la figure 6.5 montre que la région de production de particules de suie naissantes réunit ces trois conditions. En effet, le filament est intégralement localisé au sein de la zone de présence des HAP (également visible sur la figure 6.4). D'autre part, les vitesses observées le long du filament sont extrêmement faibles, comme l'illustre l'isocontour de vitesse verticale nulle, qui longe également le filament de suie. Enfin, le filament de suie correspond à une zone au sein de laquelle les taux d'étirement sont modérément élevés. Des lignes de $S_{LII} = f(S_{xy})$ sont tracées sur la figure 6.5 c), pour différentes hauteurs Z (12, 14 et 16 mm). On observe que les zones de présence de suie naissantes correspondent à des valeurs de S_{xy} non-nulles, comprises entre 200 et 600 s^{-1}. Détail plus intéressant encore, il se trouve que la zone dans laquelle le filament de suie est créé est l'unique région où les valeurs des trois grandeurs scalaires favorisant la formation de particules (HAP, vitesse nulle et forts taux d'étirement) sont réunies :

- La zone n°1, située dans l'IRZ, se caractérise par la présence de précurseurs de suie et un temps de résidence élevé. Cependant, le taux d'étirement mesuré y est quasi-nul, d'où une absence de de suie.

- La zone n°2, identifiée sur la figure 6.5 a, correspond à la partie inférieure de l'IRZ. Celle-ci se caractérise par la présence de précurseurs de suie et un temps de résidence élevé. Cependant, le taux d'étirement mesuré y est quasi-nul ce qui supprime toute production de suie.

- La zone n°3 correspond à l'extrémité supérieure de la bande de HAP (30 mm $< Z <$ 45 mm). Elle est également située située à la frontière avec l'IRZ, ce qui signifie que le temps de résidence des précurseurs de suie est suffisament long pour permettre la formation de particules. En revanche, le taux d'étirement relevé dans cette zone avoisine 0 s^{-1}, de la même manière que pour la zone 2, ce qui empêche toute production de suie.

- A l'inverse, les zones 4 et 5 sont les régions où les taux d'étirement mesurés sont les plus élevés. En revanche, les vitesses mesurées y sont bien plus élevées. De plus, aucune présence de HAP n'est identifiée dans cette zone d'où une absence de production de suie.

- La zone n°6 représente la frontière entre la zone de présence de HAP et la couche de cisaillement intermédiaire, où les valeurs de S_{xy} sont supérieures à celles observées dans la zone de production du filament de suie. Néanmoins, les vitesses mesurées ici, supérieures à 5 m/s, sont

trop élevées pour assurer un temps de résidence élevée et permettre la production d'agrégats de suie.

Dans leur article, Narayanaswamy et Clemens avaient conclu que la production de suie était optimisée pour des valeurs de vitesse de 3 m/s et de taux d'étirement de 700 s^{-1}. Ceci va a l'encontre des résultats observés dans cette étude, où la formation de particules a lieu dans une zone, au sein de laquelle les valeurs de vitesses verticales relevées sont de 0 m/s, et les taux d'étirement de l'ordre de 200-650 s^{-1}. Difficile néanmoins d'établir des corrélations plus poussées, dans la mesure où le taux d'étirement de la flamme le long du filament de suie n'excède 600 s^{-1}. De plus, la configuration de la flamme s'approchant d'une flamme industrielle, celle-ci ne permet pas d'isoler un paramètre par rapport aux deux autres.

6.2.2 Pression élevée

Dans un second temps, les mesures ont été réalisées dans des conditions opératoires allant jusqu'à 4 bar, l'objectif de cette campagne de mesure étant de quantifier l'effet de la pression sur la structure de flamme et la formation de particules de suie. En effet, le couplage des quatre diagnostics optiques de PLIF, de LII et de PIV à pression élevée peut apporter des informations utiles à la compréhension des mécanismes de formation et d'oxydation des suies dans les flammes aéronautiques où les systèmes d'injection utilisés (i.e. systèmes d'injection à plusieurs têtes d'injection de carburant) produisent le plus souvent des flammes swirlées et stratifiées.

6.2.2.1 Écoulement global et topologie de flamme

Dans l'ensemble, et ce quelque soit la pression dans la chambre, les observations observées à pression élevée sont similaires à celles constatées à pression atmosphérique : on y observe notamment la présence de zones de recirculation interne et externe, séparées par les deux jets d'injection de combustible/air. Les vitesses au sein de ces flammes sont du même ordre de grandeur : 15 m/s pour la couronne externe, environ 5 m/s pour la couronne interne, et 1 m/s pour l'IRZ. Puisque les débits des fluides sont augmentés d'une manière proportionnelle, les vitesses en sortie de jet mesurées avec la PIV à pression élevée sont similaires à celles mesurées à pression atmosphérique (figure 6.6). Toutefois, en dépit des similitudes de vitesse observées pour tous les points de fonctionnement, on peut constater des modifications substantielles de l'écoulement au fur et à mesure que la pression augmente. En effet, les champs de vitesse et les lignes de courant associées montrent que la structure de flamme a tendance à s'ouvrir avec la pression. Cet évasement provient du blocage des gaz brûlés à l'échappement du brûleur SIRIUS, forçant la flamme à occuper davantage d'espace dans la partie inférieure de la chambre de combustion (figure 6.6). Par conséquent, si la norme de la vitesse reste similaire, les composantes radiales de vitesse sont plus élevées. Cette observation laisse suggérer une augmentation du nombre de swirl avec la pression chambre. Néanmoins, le rapport de débit entre les jets de combustible/air interne et externe (et donc le SFR) est resté identique pour tous les points de fonctionnement. Par conséquent, seule l'augmentation de la pression est responsable de l'évasement de la flamme, évasement amenant à une plus forte recirculation des gaz brûlés au centre de la flamme.
Cet évasement de flamme se manifeste également au travers des images instantanées et moyennées de PLIF-OH (figures 6.7 b et 6.8 b). En effet, les fronts de flamme, obtenus aux différentes pressions et toujours localisés au sein du jet de prémélange externe, s'écartent radialement de l'axe de sortie du brûleur au fur et à mesure que la pression s'accroît. On peut également observer que la flamme reste accrochée au bord externe du tube intermédiaire (r = 10 mm). Les images de PLIF-OH instantanées soulignent également que l'augmentation de la pression a pour effet d'amplifier progressivement les fluctuations et les interactions entre le coflow, les jets de combustible/air externe

et interne, et l'IRZ. De fait, les fronts de flamme associés sont de plus en plus plissés. Par ailleurs, la recirculation plus intense des gaz brûlés observée sur les images moyennes de vitesse se traduit par la présence renforcée à plus faible hauteur de signaux intenses de PLIF-OH au coeur de l'IRZ, présence particulièrement visible sur l'image moyennée de PLIF-OH à 4 bar (figure 6.8).

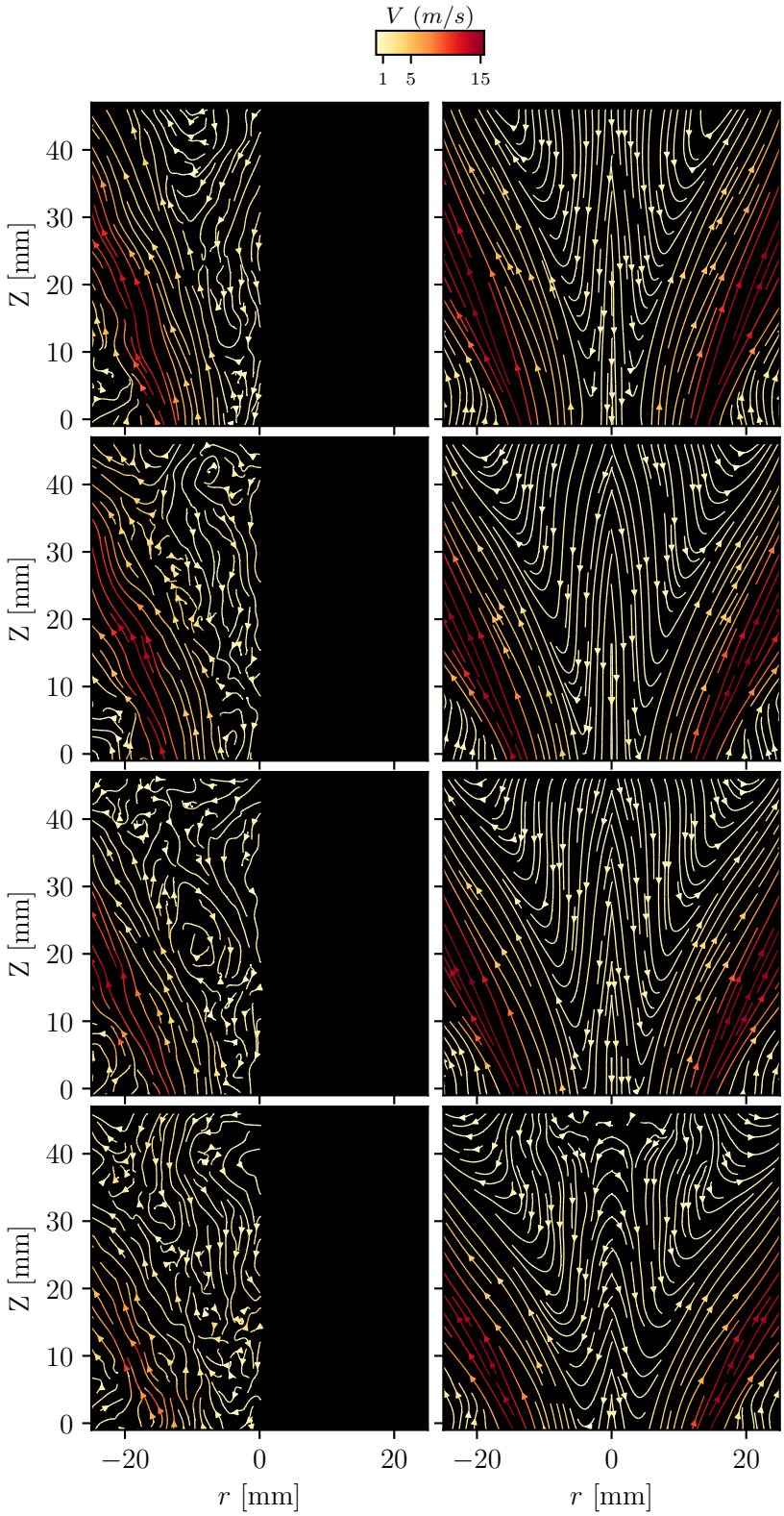

FIGURE 6.6 – Effet de la pression chambre sur l'aérodynamique de flamme

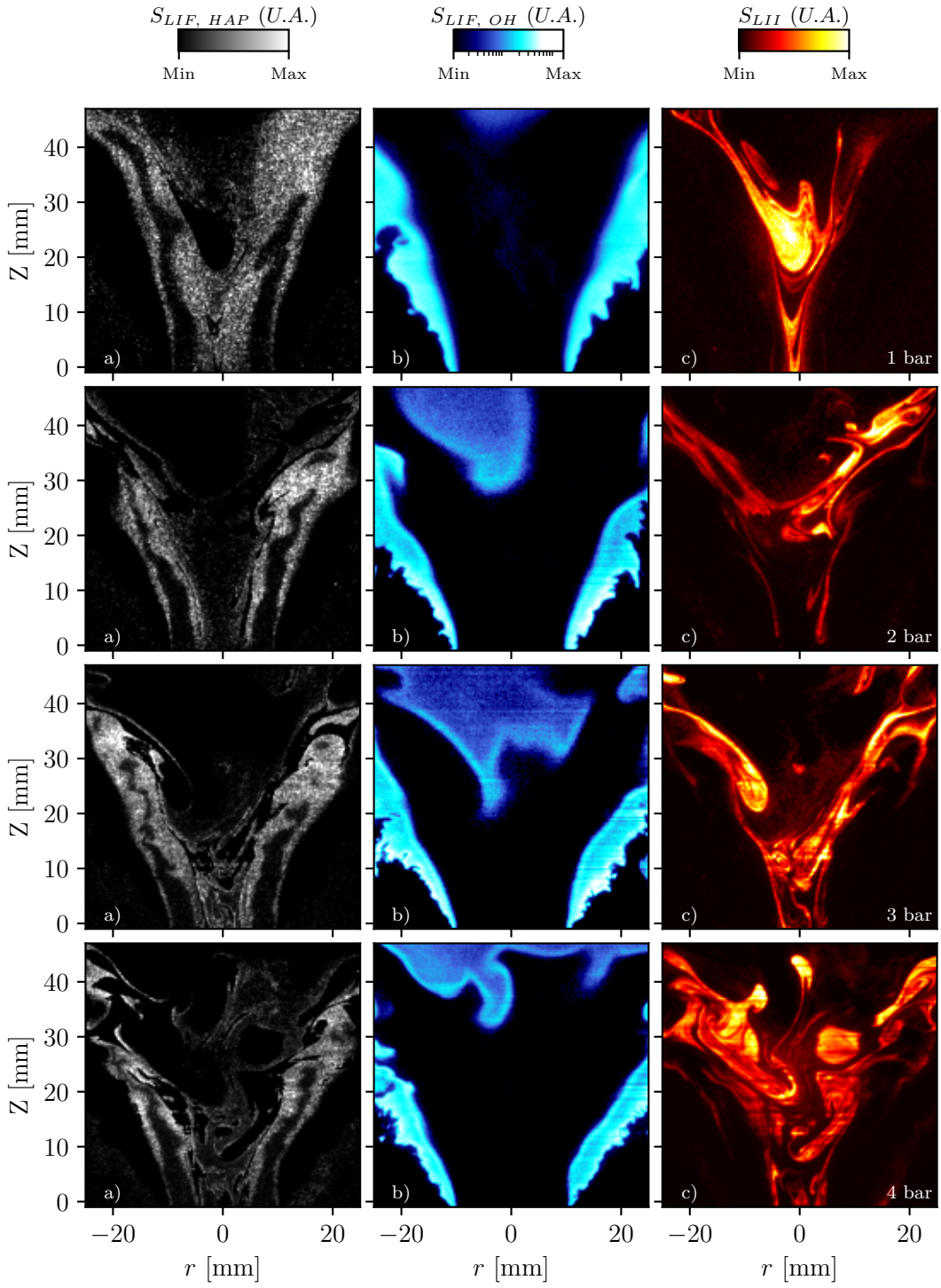

FIGURE 6.7 – Effet de la pression sur la production de suie : images instantanées de a) PLIF-HAP, b) PLIF-OH et c) LII, de 1 à 4 bar

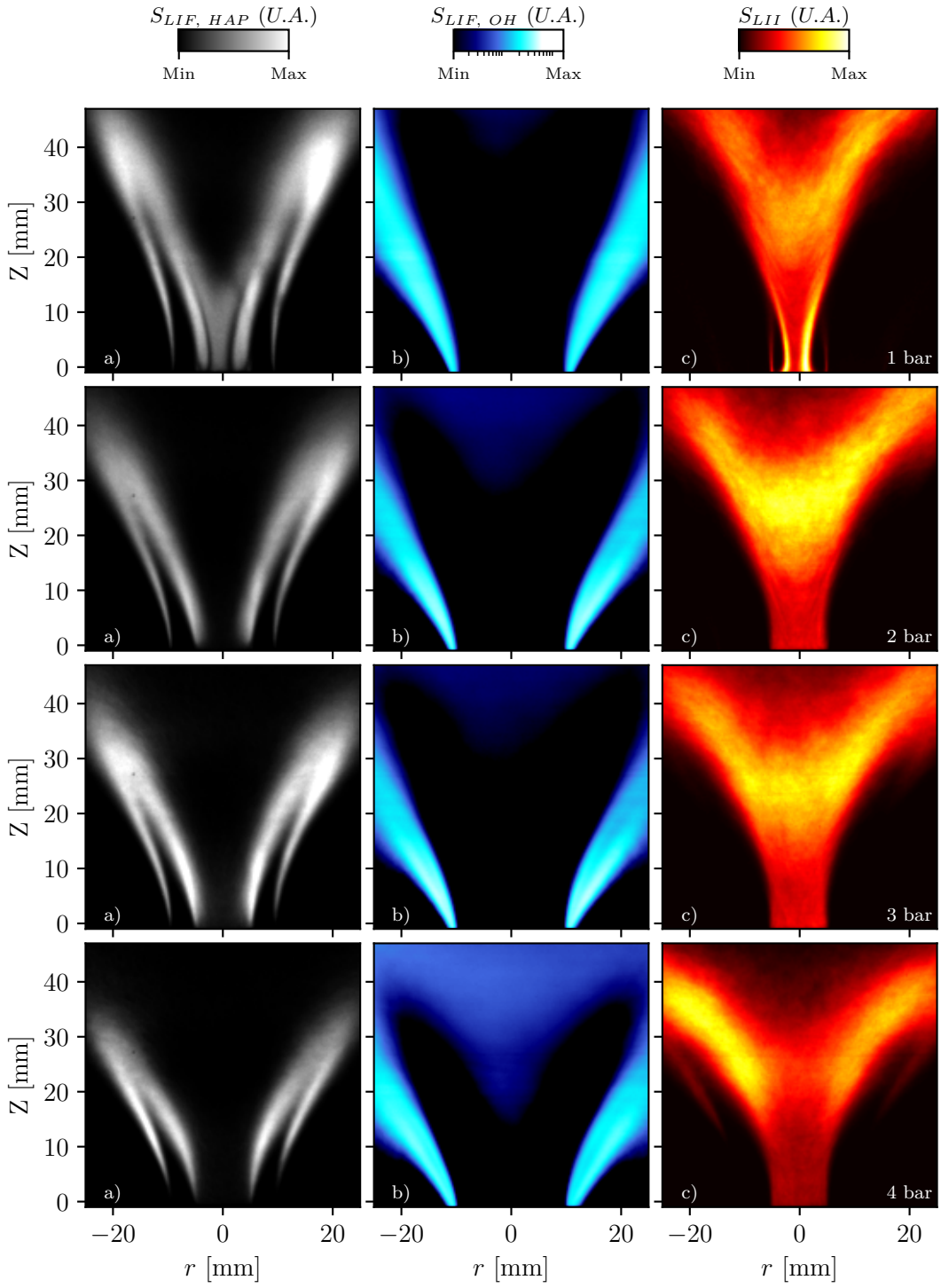

FIGURE 6.8 – Effet de la pression sur la production de suie : images moyennées de a) PLIF-HAP, b) PLIF-OH et c) LII, de 1 à 4 bar

Enfin, alors que le radical OH, fraîchement formé par la combustion de l'éthylène contenu dans le

jet externe, avait un rôle « passif » à pression atmosphérique et venait recirculer dans l'IRZ (dans la mesure où celui-ci n'interagissait pas avec la flamme et les agrégats de suie), celui-ci commence à jouer un rôle significatif d'oxydation des particules de suie circulant dans l'IRZ et cela d'autant plus que la pression augmente. La figure 6.9 illustre parfaitement ce processus physique. Cette figure regroupe les signaux instantanés de PLIF-OH, PLIF-HAP, LII et PIV extraits des figures 6.6 et 6.7 à 4 bar. En comparaison du cas à pression atmosphérique, on observe l'apparition de nouvelles zones de OH avec présence de gradients d'intensité :

- À la frontière entre la zone de OH issue de la combustion et le jet de combustible/air interne
- Dans la zone de l'IRZ, au voisinage des poches de suie matures

L'existence de gradients de OH intenses est le signe de production de fronts de flamme supplémentaires dans l'IRZ. Ces gradients de OH proviennent de la combustion effective des produits imbrûlés venant du jet interne de combustible et qui n'avait pas pu être consommé à pression atmosphérique. Cette apparition d'une grande quantité de OH dans le cœur de l'IRZ à de faibles hauteurs provoque également une plus rapide oxydation des suies dans cette partie de la flamme. Bien que ce processus physique soit très significatif à 4 bar, ces gradients de OH commencent à être observés dès 2 bar, comme le soulignent les images instantanées de PLIF-OH représentées sur la figure 6.7 b).

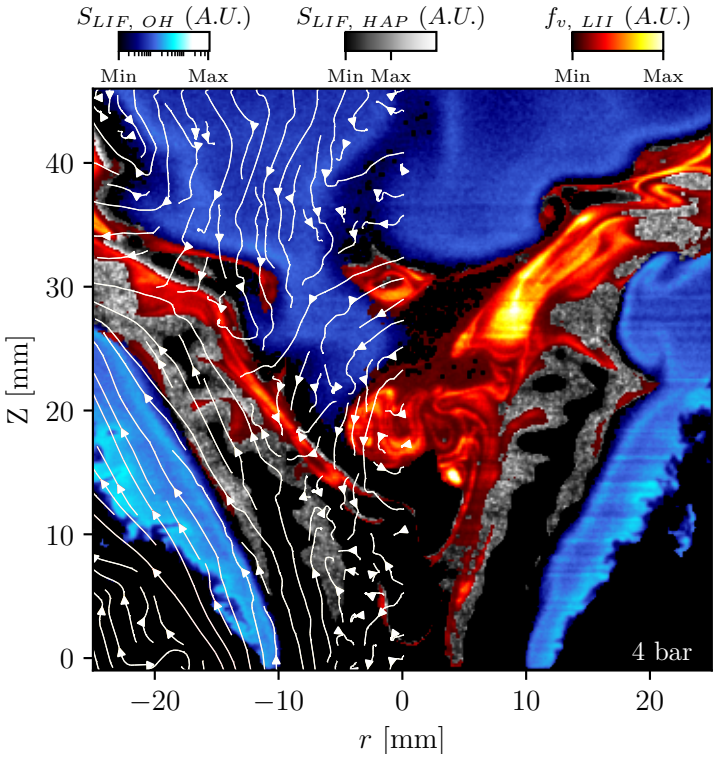

FIGURE 6.9 – Exemple de signaux couplés de PLIF-OH/PLIF-HAP/LII à 4 bar, associés aux lignes de courants obtenues par mesure PIV

6.2.2.2 Distribution spatiale de précurseurs de suie

Similairement à la pression atmosphérique, les signaux de HAP se répartissent autour de la zone interne d'injection de combustible/air, comme l'illustrent les images de PLIF-HAP moyennées en temps (figure 6.8 a.). Pour rappel, les espèces aromatiques en périphérie de ce jet interne résultent de la décomposition thermique du carburant. L'ouverture de la flamme observée sur les images de

PIV et de PLIF-OH se traduit également par un évasement progressif des zones de présence des HAP dès lors que la pression augmente de 2 à 4 bar. Cet évasement conduit mécaniquement à une plus faible pénétration axiale des HAP dans la chambre de combustion ($>$ 45 mm à 1 bar, 35 mm à 4 bar), signe d'une plus rapide consommation des HAP en suie. Les images instantanées de PLIF-HAP, (figure 6.7 a.) montrent également une plus grande diffusion des HAP dans la partie inférieure de l'IRZ suite à une augmentation de l'agitation thermique avec la pression.
Détail intéressant : le rapport signal-à-bruit des images de PLIF-HAP augmente linéairement avec la pression chambre. En effet, le débit d'éthylène injecté augmente de manière homothétique avec la pression chambre. Ainsi, pour une pression de 4 bar, le nombre de moles d'éthylène par unité de volume est également multiplié par 4. Cette observation laisse à penser que le taux de décomposition de l'éthylène en espèces aromatiques est équivalent quelque soit la pression chambre. Malgré une augmentation de la concentration en précurseurs à pression élevée, aucun signal de HAP venant d'une possible décomposition du combustible contenu dans le jet de combustible/air externe n'est observable.

6.2.2.3 Distribution spatiale de suie

Alors que les distributions de OH et des précurseurs de suie conservent globalement une similarité en forme et en répartition, les signaux de LII observent des changements de morphologie bien plus radicaux dès lors que la pression augmente. Globalement, la distribution spatiale (figure 6.7 c.) des particules de suie à pression élevée est conservée, cette dernière pouvant se subdiviser en deux zones distinctes : la zone de suie naissante identifiée à pression atmosphérique le long de la zone des HAP et l'IRZ et la zone de l'IRZ où sont convectées les larges poches de suie provenant de l'aval de la flamme. De légères différences morphologiques sont toutefois visibles avec l'augmentation de la pression. Tout d'abord, les fins filaments, relativement uniformes à pression atmosphérique, commencent à s'épaissir et à devenir de plus en plus plissés avec la pression. Cet épaississement, qui traduit l'augmentation de la production des suies naissantes, peut s'expliquer par une plus forte concentration en précurseurs de suie le long du jet interne. Tout comme pour les filaments de suies naissantes, leur forme est de moins en moins uniforme et de plus en plus complexe. Mécaniquement, l'augmentation de la production de suie naissante conduit à un renforcement de la concentration en particules de suie mature recirculant dans l'IRZ. Par ailleurs, de nouvelles zones de suie naissante font leur apparition à haute pression. De par la diffusion tourbillonnaire de HAP dans la zone interne de l'IRZ (présence de fins filaments de HAP), il est également observé de fins filaments de suies naissantes venant se placer à la frontière avec ces filaments de HAP. Par ailleurs, alors que la production de suie naissante était limitée le long de la couche de cisaillement interne (entre le jet annulaire riche et l'IRZ), de fins filaments commencent désormais à être observés le long de la couche de cisaillement intermédiaire située entre les jets de combustible/air interne et externe.
En dépit d'une plus forte production de suie, on observe en parallèle une augmentation de l'oxydation des particules de suie, comme l'illustrent les signaux de PLIF-OH de la figure 6.9. Tout d'abord, les épaisses poches de suie présentes dans l'IRZ sont maintenant au contact avec une large zone de gaz brûlés, identifiée par l'observation de signaux intenses de PLIF-OH dans l'IRZ. Comme déjà détaillé précédemment, à proximité des poches de suie situées au cœur de l'IRZ, l'existence de gradients de OH intenses souligne une réactivité avec les imbrûlés provenant du jet interne. Cette production de OH produit également des réactions d'oxydation, qui ont pour effet de consommer les poches de suies de l'IRZ. Des fronts de flammes sont également visibles dans la zone de cisaillement située entre le jet de combustible/air externe l'IRZ, ceux-ci consommant directement les précurseurs de suie et les imbrûlés provenant du jet de combustible interne. En définitive, bien que la production de suie augmente considérablement avec la pression chambre, la concentration de suie finalement produite par la flamme est modérée par les nombreuses réactions d'oxydation opérant dans le cœur de l'IRZ.

6.2.2.4 Corrélations entre suie, précurseur, vitesse et taux d'étirement local

Afin de mieux appréhender le rôle de la pression comme nouvelle grandeur scalaire favorisant ou non la production de suie, des corrélations spatiales sont établies sur les images instantanées enregistrées à 4 bar, entre les signaux de LII et les autres grandeurs scalaires agissant sur la production de suie. Sur le diagramme de la figure 6.10 a), la distribution spatiale du taux d'étirement S_{xy} est affichée en nuances de vert, associée à la distribution spatiale de suie (couleurs chaudes). Pour représenter la vitesse, un isocontour de vitesse verticale nulle ($V = 0$) est tracé en bleu marine. Les lignes roses représentent les contours associés aux zones de présence de HAP. Pour finir, le tracé noir correspond au contour du front de flamme. Les distributions spatiales du taux d'étirement S_{xy} mettent en évidence les trois zones de cisaillement déjà observées à pression atmosphérique. Les valeurs du taux d'étirement relevées à 4 bar sont analogues à celles mesurées à pression atmosphérique : de l'ordre de 500 s^{-1} pour la couche interne, de 700 à 1000 s^{-1} entre les jets annulaires interne et externe, et jusqu'à 1500 s^{-1} pour la couche externe.

Sur la figure 6.10 a) est également représentée la distribution spatiale instantanée des particules de suie. Alors que la distribution de particules de suie naissante prenait la forme d'un fin filament qui longeait la zone interne des HAP, les particules de suie naissantes se répartissent cette fois-ci sur une large bande. Dans le cas présent, cette zone de suie s'étale sur une hauteur comprise entre 15 mm et au moins 45 mm. Comme observé pour le filament de suie naissante à pression atmosphérique, cette zone chargée en suie naissante est la zone de convergence où les trois conditions initialement détectés à pression atmosphérique et favorisant la production de suie sont encore réunies. Pour commencer, la zone de suie est intégralement localisée au voisinage de la zone de présence des HAP. D'autre part, l'isocontour de vitesse verticale nulle se situe remarquablement au voisinage immédiat de la zone de suie et la zone des HAP, ce qui suggère un temps de résidence particulièrement élevé, permettant aux précurseurs de suie de se former en particules de suie. Pour finir, les valeurs de taux d'étirement dans la zone de production de suie sont celles de la couche de cisaillement interne : de l'ordre de 500 s^{-1}.

Contrairement au cas de la pression atmosphérique, où aucune émission de suie naissante n'avait été identifiée ailleurs que dans la zone précédemment mentionnée, la flamme produite à 4 bar fait apparaître de nouvelles régions de concentrations de suie naissante. Comme évoqué précédemment, de fins filaments de suie apparaissent intercalés entre la zone des précurseurs de suie et la zone de présence du radical OH formée par la combustion avec le combustible issu du jet de combustible/air externe (également visible sur la figure 6.9). Cette région spécifique représente une zone de présence de HAP, combinée à des taux d'étirement de flammes très élevés (de l'ordre de 1200 s^{-1}), mais où les vitesses locales sont relativement élevées (5 m/s). Pour plus de lisibilité, une partie du filament de suie naissante est représentée sur la 6.10 c). Des lignes de $S_{LII} = f(S_{xy})$ sont tracées sur la figure 6.5 b), pour différentes hauteurs Z (12, 14 et 16 mm). On observe que les zones de présence de suie naissante correspondent à des valeurs de S_{xy} plus élevés qu'au sein de la zone de cisaillement interne, comprises entre 400 et 1200 s^{-1}. Selon toute vraisemblance et bien que les valeurs de vitesses locales soient quelque peu élevées (i.e. $\sim$ 5 m/s), la concentration en précurseurs de suie observée à 4 bar indiquent des mécanismes réactionnels de production de suie naissante plus rapides et plus efficaces. En outre, le paramètre de vitesse nulle n'est pas une condition *sine qua non* à la formation de particules de suie. Concernant le taux d'étirement, il reste très difficile de conclure si son augmentation a pour effet d'amplifier ou de réduire le taux de production de suie naissante. Une fois encore, la configuration de la flamme s'approchant d'une flamme industrielle, celle-ci ne permet pas de contrôler le taux d'étirement indépendamment de la concentration en précurseurs, et de la vitesse locale.

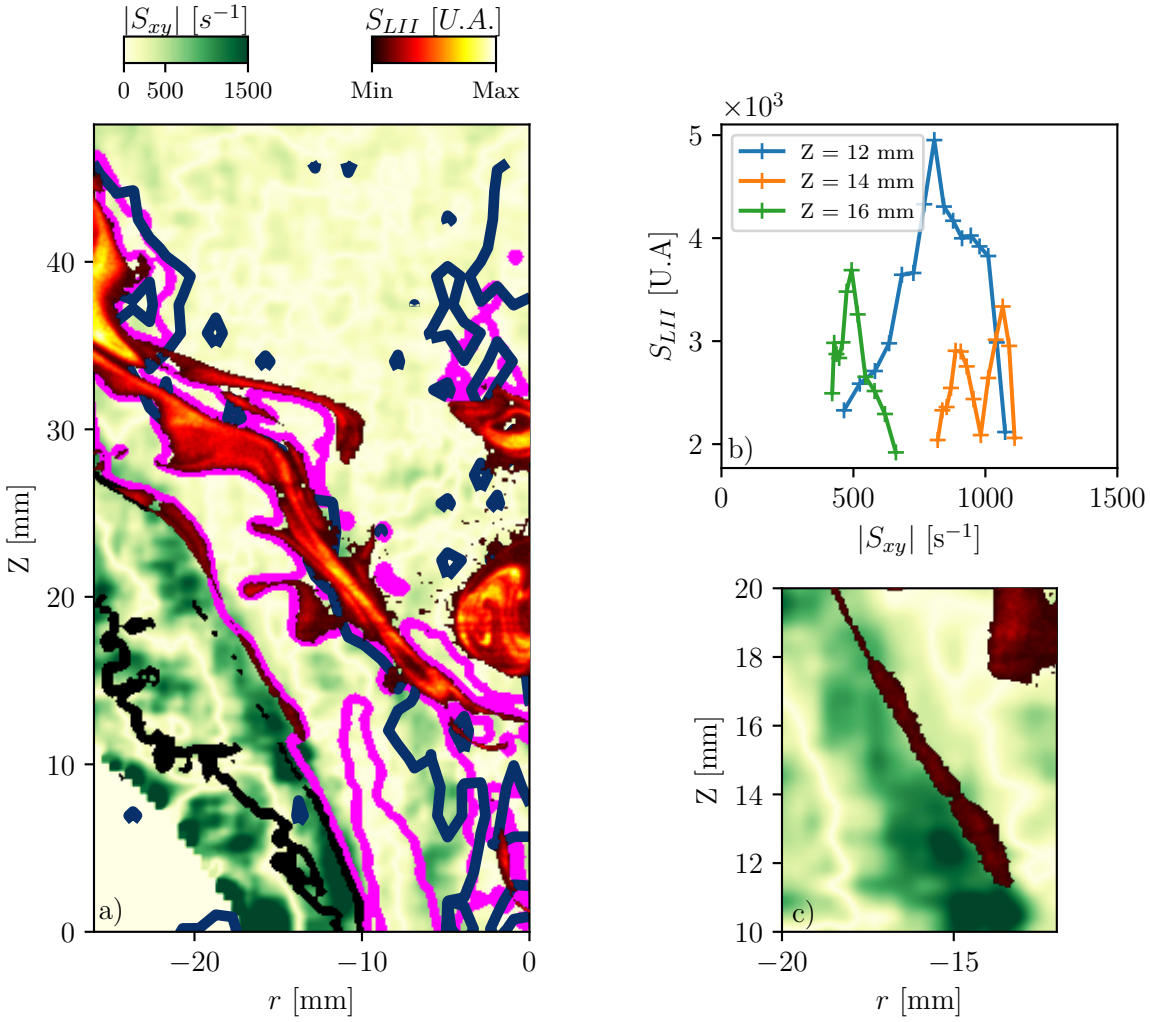

FIGURE 6.10 – Exemple de corrélation a) entre taux d'étirement S_{xy} (couleurs vertes) et agrégats de suie (couleurs chaudes) à 4 bars. Lignes roses : zone de répartition de précurseurs de suie. Ligne bleue : isocontour de vitesse verticale $V = 0\,\mathrm{m/s}$. Ligne noire : zone de délimitation du front de flamme. b) Valeurs de Sxy conditionnées par la présence de suie naissante c) Zone d'intérêt de la figure b)

6.2.3 Scénario de formation de particules de suie

Les flammes produites à pression élevée ont une structure caractéristique d'une flamme swirlée et stratifiée, comprenant notamment une zone de recirculation interne servant à sa stabilisation. Elle est composée de deux jets d'injection de mélange air/combustible : une couronne interne, injectant un mélange air/combustible riche, et une couronne d'injection externe, pauvre. Le front de flamme se produit majoritairement au voisinage du jet annulaire externe, et est accroché sur le bord du tube d'injection intermédiaire, qui sépare les jets prémélangés interne et externe. En revanche, aucune combustion ne se produit au voisinage du jet annulaire interne. L'analyse des signaux de PLIF-HAP montre que distribution des HAP se concentre autour du jet d'injection interne, laissant supposer que les HAP formés dans cette zone sont issus de la décomposition thermique de l'éthylène. *A contrario*, aucune trace de HAP n'est observée le long du jet de combustible externe, où le mélange air/carburant est bien plus pauvre. Si d'infimes traces de HAP sont formées au sein

du jet prémélangé externe, celui-ci est immédiatement consommé par les mécanismes de combustion.

À pression atmosphérique, les particules de suies sont principalement localisées dans deux régions spécifiques. Une première zone est localisée le long de la couche de cisaillement située entre le jet d'injection de combustible/air interne et la zone IRZ, où les agrégats sont disposés en fins filaments. La deuxième région correspond à la zone de recirculation interne elle-même, où les agrégats sont agencés sous la forme de poches de suies épaisses et tourbillonnantes. Les champs de vitesse obtenus par PIV montrent que les agrégats localisés dans ces deux zones sont de différentes nature. Plus précisement, les filaments de suie sont composés de suies naissantes, alors que les poches de suies de la zone de recirculation interne proviennent de suies matures situées initialement plus en aval de la flamme. Les analyses couplées de PLIF, LII et PIV montrent que la zone de production des suies naissantes se caractérise par :

- La présence de HAP, précurseurs de suie
- Des valeurs de vitesses locales quasi-nulles
- Des valeurs de taux d'étirement modérés à élevés

De surcroît, les corrélations établies entre les différentes grandeurs scalaires révèlent que cette zone de fins filaments correspond à l'unique région de la flamme où ces trois critères sont réunis. En conséquence, une réunion de ces trois conditions représente une condition nécessaire pour que les particules de suie commencent à être produites en quantité.
A pression plus élevée, les flammes produites montrent des modifications substantielles de leur topologie. Le blocage partiel de l'éjection des gaz brûlés de la chambre de combustion conduit à un évasement progressif de la flamme au fur et à mesure que la pression augmente. De la même manière, la zone de présence de HAP ainsi que le front de flamme s'ouvrent radialement. Lorsque la pression augmente, la concentration en HAP croît, intensifiant de fait le taux de production des suies naissantes. Les filaments de suie naissante identifiés à 1 bar s'épaississent progressivement lorsque la pression augmente de 2 à 4 bar, et les poches de suie convectées vers l'IRZ deviennent de plus en plus épaisses. Parallèlement à ce processus, la diffusion des HAP dans la zone inférieure de l'IRZ, zone où la température est élevée, fait apparaître de fins filaments de suie naissantes. De même, de nouveaux filaments commencent même à apparaître à 4 bar, à la frontière entre la zone supérieure des HAP et la zone de OH représentant la zone de réactivité avec le jet de combustible externe, bien que cette région ait été identifiée à pression atmosphérique comme étant non propice à la production de suie (vitesses locales élevées).
Toutefois, l'augmentation des niveaux de production de suie est atténuée par l'augmentation des zones de réaction d'oxydation se produisant dans le cœur de la flamme. De plus, une plus grande ouverture de flamme à pression élevée conduit à une recirculation plus intense de gaz brûlés à haute température. Ceci conduit à une consommation par combustion des produits imbrûlés issus de la décomposition chimique du combustible interne, comme le souligne la production de fronts de flamme intenses situés au cœur de l'IRZ et à la frontière avec la zone de présence des HAP. De même, la production d'espèces chimiques fortement oxydantes au sein de l'IRZ réagissent également avec les poches de suie, ce qui les consomme plus efficacement.
Les corrélations établies entre les distributions de suie, précurseurs de suie, vitesses et taux d'étirement, montrent que la formation de suie est toujours maximisée pour les conditions suivantes : présence de HAP, vitesse quasi-nulle et taux d'étirement élevés. Cependant, l'observation nouvelle de filaments de suie, situés entre la zone des HAP et la zone de OH, eux-mêmes issus de la zone de combustion avec l'éthylène de la couronne externe, révèle que la condition de vitesse nulle n'est plus forcément un critère à respecter totalement à pression élevée, mais seulement une grandeur scalaire facilitant la formation de suie, contrairement à ce que suggérait les résultats observés à

pression atmosphérique. Bien que la production de suie se produise à des endroits particuliers où les vitesses locales sont plus élevées, celle-ci reste toutefois modérée comparée aux autres zones de production des suies naissantes.

6.3 Conclusions globales

Une étude phénoménologique des mécanismes de formation et d'oxydation des suies a été réalisée sur des flammes éthylène/air prémélangées, swirlées et stratifiées, à des pressions absolues couvrant le domaine 1 - 4 bar. Au cours de cette étude, une combinaison de quatre diagnostics laser avancés a été utilisée pour analyser la structure de flamme, l'aérodynamique ainsi que les distributions spatiales de suie et de HAP, ces derniers étant connus pour leur rôle de précurseurs de suie. Le couplage des données issues de ces mesures a permis d'obtenir une analyse détaillée du comportement global de ce type de flamme, et surtout de mettre en lumière des corrélations entre la zone de production des particules de suie et plusieurs grandeurs scalaires clés. Ce travail vient s'ajouter aux autres campagnes de mesure par diagnostics optiques couplés de PLIF-OH, de PLIF-HAP et de LII réalisés sur des flammes laminaires [5], des flammes turbulentes à pression atmosphérique [1, 6, 7] et à haute pression [8]. D'un point de vue académique, cette étude se démarque par son caractère hautement innovant. En effet, l'application d'autant de diagnostics laser avancés couplés dans des flammes à pression élevée au caractère complexe représente, à notre connaissance, une première.

Dans une plus large mesure, ces mesures ont constitué une étape indispensable à la mise en œuvre d'une grande diversité de diagnostics laser avancés sur des flammes à haut niveau d'émissivité. *In fine*, ce travail a représenté un gain d'expérience considérable, qui a été ensuite mis en œuvre sur les expériences réalisées sur le banc de combustion haute-pression HERON, équipé de systèmes d'injection RQL fonctionnant au kérosène liquide.

6.4 Références

[1] Maxime Bouvier, Gilles Cabot, Jérôme Yon et Frédéric Grisch. « On the use of PIV, LII, PAH-PLIF and OH-PLIF for the study of soot formation and flame structure in a swirl stratified premixed ethylene/air flame ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 38.1 (2021), p. 1851-1858. doi : 10.1016/j.proci.2020.10.002.

[2] Yu Wang et Suk Ho Chung. « Strain rate effect on sooting characteristics in laminar counterflow diffusion flames ». In : *Combustion and Flame* 165 (mars 2016), p. 433-444. doi : http://dx.doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.12.028.

[3] V. Narayanaswamy et N.T. Clemens. « Simultaneous LII and PIV measurements in the soot formation region of turbulent non-premixed jet flames ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 34.1 (jan. 2013), p. 1455-1463. doi : 10.1016/j.proci.2012.06.018.

[4] H. Shariatmadar et R.P. Lindstedt. « Soot particle size distributions in turbulent opposed jet flames with premixed propene–air reactants ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* (sept. 2022). doi : https://doi.org/10.1016/j.proci.2022.07.201.

[5] Christopher R. Shaddix, Timothy C. Williams, Linda G. Blevins et Robert W. Schefer. « Flame structure of steady and pulsed sooting inverse jet diffusion flames ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* 30.1 (jan. 2005), p. 1501-1508. doi : http://dx.doi.org/10.1016%2Fj.proci.2004.08.244.

[6] Irfan A. Mulla et Bruno Renou. « Simultaneous imaging of soot volume fraction, PAH, and OH in a turbulent n-heptane spray flame ». In : *Combustion and Flame* 209 (nov. 2019), p. 452-466. doi : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2019.08.012.

[7] Yejun Wang, Ayush Jain, Christian Schweizer et Waruna D. Kulatilaka. « OH, PAH, and sooting imaging in piloted liquid-spray flames of diesel and diesel surrogate ». In : *Combustion and Flame* 231 (sept. 2021), p. 111479. doi : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2021.111479.

[8] Klaus Peter Geigle, William O'Loughlin, Redjem Hadef et Wolfgang Meier. « Visualization of soot inception in turbulent pressurized flames by simultaneous measurement of laser-induced fluorescence of polycyclic aromatic hydrocarbons and laser-induced incandescence, and correlation to OH distributions ». In : *Applied Physics B* 119.4 (mars 2015), p. 717-730. doi : 10.1007/s00340-015-6075-3.

Chapitre 7

Caractérisation de systèmes d'injection aéronautiques de type RQL

Sommaire

7.1 Présentation du programme d'essais . . . 116
7.2 Dispositifs expérimentaux . . . 118
7.2.1 Chaînes de prélèvement de gaz et de suie . . . 118
7.2.2 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et PLIF-NO couplées . . . 123
7.2.3 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et LII couplées . . . 126
7.2.4 PIV haute cadence . . . 128
7.3 Correction des signaux de fluorescence . . . 130
7.3.1 Distorsion . . . 131
7.3.2 Signal parasite d'arrière-plan . . . 131
7.3.3 Signaux de PLIF parasites . . . 132
7.3.4 Inhomogénéité de nappe laser . . . 133
7.3.5 Variation d'énergie laser tir à tir . . . 134
7.4 Quantification des signaux de fluorescence et d'incandescence . . . 135
7.4.1 PLIF-NO . . . 135
7.4.2 LII . . . 136
7.5 Résultats globaux . . . 138
7.5.1 Polluants gazeux prélevés en sortie de chambre de combustion . . . 138
7.5.2 Particules de suie prélevées depuis la chambre de combustion . . . 142
7.6 Résultats : point de référence . . . 145
7.6.1 Aérodynamique de flamme . . . 145
7.6.2 Distribution spatiale de kérosène . . . 145
7.6.3 Structure de flamme . . . 146
7.6.4 Distribution spatiale de monoxyde d'azote . . . 148
7.6.5 Distribution spatiale de particules de suie . . . 150
7.7 Résultats : effet du système d'injection . . . 151
7.8 Résultats : effet de la richesse injectée . . . 158
7.9 Comparaison LII/prélèvement . . . 164
7.10 Conclusions globales . . . 165
7.11 Références . . . 166

Dans ce dernier chapitre, les écoulements réactifs réalisés avec deux systèmes d'injection industriels de type RQL sont étudiés. Les objectifs de cette étude sont multiples. Ils consistent entre autres à évaluer les performances de ces systèmes d'injection en matière d'émission de polluants gazeux et particulaires ainsi qu'au niveau de leurs performances énergétiques. L'étude expérimentale des deux systèmes d'injection RQL a nécessité notamment l'utilisation de métrologies laser non-intrusives.

L'accent s'est principalement focalisé sur la compréhension des mécanismes de formation de particules de suie opérant au sein de ces écoulements réactifs. À ce titre, des mesures de fractions de volume de suie par le diagnostic laser de LII sont associées à des analyses granulométriques de suie obtenues avec la sonde de prélèvement, développée spécialement pour ce projet et installée à l'intérieur de la chambre de combustion. Les essais sont réalisés sur le banc de combustion haute pression HERON, capable de reproduire les conditions de pression et de température d'un fonctionnement de ces systèmes d'injection RQL. L'analyse expérimentale des écoulements réactifs s'est concentrée sur les mécanismes de formation et d'oxydation de suie opérant dans la zone primaire de réaction, qui fonctionne dans un régime en excès de combustible.

7.1 Présentation du programme d'essais

L'étude expérimentale porte sur l'analyse de deux systèmes d'injection aéronautiques RQL, fournis par Safran Aircraft Engines et alimentés en kérosène Jet-A1. Pour des raisons de confidentialité, l'architecture mécanique détaillée des systèmes d'injection ne sera pas divulguée et seule une information générale sera donnée. Ceux-ci sont constitués d'un système d'injection, et d'un bol par lequel est injecté de l'air swirlé. Ces systèmes d'injection sont semblables au prototype RQL TALON (*Technology for Advanced Low NOx*), dont le schéma de principe est reporté sur la figure 7.1.

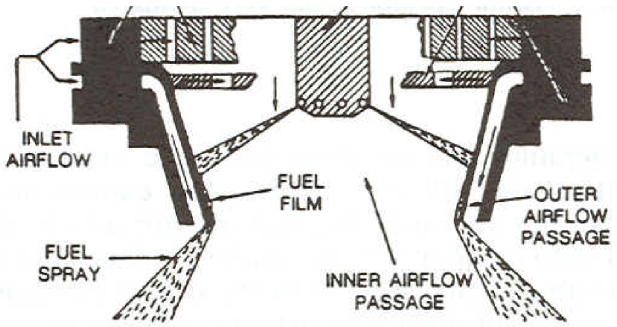

FIGURE 7.1 – Schéma de principe du systèmes d'injection RQL TALON [1]

Dans ce chapitre, le système d'injection de référence est intitulé S10. Le second est référencé S05. Le bol de ce dernier diffère de celui du S10 par une plus grande ouverture, et un angle des vrilles d'air conduisant à un écoulement moins swirlé. Au cours de cette étude, une grande variété de techniques de mesure intrusives ainsi que des diagnostics optiques avancés a été utilisée. Ceux-ci sont :

- La Fluorescence Induite par Laser sur le radical OH (PLIF-OH), dont les signaux de fluorescence nous renseignent sur la structure de flamme.
- La Fluorescence Induite par Laser sur le radical NO (PLIF-NO), utilisée pour mesurer la distribution spatiale du monoxyde d'azote produite au sein de l'écoulement réactif.
- La Fluorescence Induite par Laser sur le kérosène (PLIF-kérosène). Le kérosène de type Jet-A1 est constitué d'environ 25% d'espèces aromatiques, qui sont connues pour être de très bons traceurs fluorescents, mais également pour leur rôle de précurseurs dans la formation des particules de suie.
- La Vélocimétrie par Imagerie de Particules (PIV), utilisée ici pour mesurer les champs de vitesse et nous renseigner sur l'aérodynamique de la flamme.

- L'Incandescence Induite par Laser (LII), permettant d'obtenir la fraction de volume occupée par les agrégats de suie au sein de la flamme.
- L'analyse de la composition des gaz (NO, CO, HC, CO_2, O_2) par prélèvement en sortie de chambre de combustion.
- La mesure de la concentration et de la distribution en taille de particules de suie par analyse SMPS et par prélèvement dans la chambre de combustion.

Les diagnostics optiques ne seront pas mis en œuvre l'un après l'autre de manière séquentielle. Bien au contraire, le couplage d'un grand nombre de diagnostics laser a été préféré. Il vise à obtenir, au même instant dans la flamme, la distribution combinée des signaux de fluorescence des espèces chimiques à sonder. De cette manière, ce couplage de mesures offre la possibilité d'établir des corrélations entre les différents signaux obtenus et ainsi, de mieux comprendre l'impact de la flamme générée par ces systèmes d'injection RQL sur les émissions de polluants.

Cependant, il a été impossible de combiner simultanément toutes les mesures détaillées préalablement. Alors que les diagnostics optiques de PLIF et de LII sont réalisés avec des sources laser à basse cadence, les mesures par PIV ne peuvent être réalisées à basse cadence sur le banc de combustion HERON, en raison de la rapide pollution des hublots optiques par les particules de ZrO_2 ensemencées, nécessaires à la mesure de PIV. En effet, contrairement au brûleur SIRIUS et son architecture permettant d'injecter un écoulement par l'écoulement issu du poreux et isolant la flamme des hublots de visualisation, les particules ensemencées dans la chambre de combustion HERON, une fois injectées dans l'écoulement vont avoir tendance à se déposer très rapidement sur les parois de la chambre de combustion et notamment sur les hublots optiques du boitier de visualisation, rendant toute mesure impossible à effectuer après quelques secondes d'ensemencement. Ce phénomène a notamment été observé dans les thèses antérieures de Salaün et de Malbois [2, 3]. C'est pourquoi la mesure de PIV a nécessité le recours à une source laser à haute cadence. Ce constat fait, rien semble n'empêcher, sur le papier, de combiner tous les diagnostics laser à basse cadence, à savoir la PLIF-OH, PLIF-kérosène, PLIF-NO, et LII. Cependant, le couplage de ces techniques de mesure n'est pas envisagé dans les faits, car ceci nécessiterait un dispositif optique bien trop complexe utilisant une très grande quantité de matériel. Par exemple, utiliser ces diagnostics laser simultanément nécessiterait l'utilisation de trois sources laser indépendantes, ce qui impliquerait trois nappes laser à superposer. La synchronisation des sources laser et des nombreuses caméras de détection associées ainsi que leurs mises en place autour de l'installation de combustion s'en retrouverait également compliquée. Dans le cadre de cette thèse, la combinaison des techniques optiques a donc été limitée à la superposition de deux nappes laser. Pour toutes ces raisons, l'étude des systèmes d'injection RQL a été divisée en trois campagnes de mesures réalisées l'une après l'autre (tableau 7.1). Une campagne de mesures couplées de PLIF-OH/PLIF-kerosène/PLIF-NO, une seconde campagne de PLIF-OH/PLIF-kerosène/LII et pour finir une campagne de PIV haute cadence.

TABLE 7.1 – Programme des essais réalisés sur les systèmes d'injection RQL

	Campagne de mesure / Section n°	I	II	III
Technique de mesure	PLIF-OH	■	■	
	PLIF-kerosène	■	■	
	PLIF-NO	■		
	PIV			■
	LII		■	
	Analyse de suie (SMPS)	■	■	
	Analyse de gaz	■	■	

Fort de ce constat, un plan d'expérience a été ensuite établi pour étudier le rôle de plusieurs paramètres de fonctionnement sur la production de particules de suie émises par les deux systèmes d'injection RQL. Les conditions opératoires à étudier sont résumées dans le tableau 7.2. Le point de référence pour ces essais est le point PF2. Les autres points de fonctionnement diffèrent de PF2 par une variation de pression (PF4 & PF5), de température d'injection d'air (PF6 & PF7), de richesse à l'injection (PF1 & PF3), de perte de charge (PF8 & PF9), et enfin de recirculation (PF10).

TABLE 7.2 – Matrice des conditions opératoires étudiées. La colonne surlignée en jaune représente le point de référence (PF2). Les cases coloriées en rouge correspondent au paramètre modifié. Les régimes de fonctionnement accompagnés d'un astérisque (*) sont analysés par diagnostics optiques

Point d'opération	PF1	PF2*	PF3*	PF4	PF5	PF6	PF7	PF9	PF8	PF10
P3 [bar]	4,5	4,5	4,5	6,0	3,0	4,5	4,5	4,5	4,5	4,5
T3 [K]	700	700	700	700	700	600	650	700	700	700
$\Delta P/P$ [%]	3,61	3,61	3,61	3,61	3,61	3,61	3,61	4,11	3,10	3,61
FAR_{SI} [-]	213	169	119	169	169	169	169	169	169	169
Φ_{SI} [-]	3,2	2,6	1,8	2,6	2,6	2,6	2,6	2,6	2,6	2,6
$\lambda_{SI}/\lambda_{tot}$ [-]	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125	0,125	0,157
$W_{a,p}$ [g/s]	43,60	43,60	43,60	58,10	29,10	47,10	45,20	46,50	40,40	43,60
$W_{a,s}$ [g/s]	127,4	127,4	127,4	169,9	84,9	137,9	131,8	135,5	118,6	92,40
$W_{a,tot}$ [g/s]	171,0	171,0	171,0	228,0	114,0	185,0	177,0	182,0	159,0	136,00
W_f [g/s]	4,55	3,62	2,54	4,82	2,41	3,91	3,76	3,86	3,35	3,62

7.2 Dispositifs expérimentaux

7.2.1 Chaînes de prélèvement de gaz et de suie

Les campagnes de mesure par diagnostics laser avancés (hormis la PIV à haute cadence) ont été combinées à une analyse granulométrique, et à une mesure des polluants gazeux en sortie de la chambre de combustion. Le schéma des deux dispositifs de prélèvement est représenté sur la figure 7.2.

Le prélèvement des gaz brûlés est réalisé en entrée de la conduite d'échappement reliée à la sortie de la chambre de combustion. La sonde de prélèvement prévue à cet effet consiste en un tube percé de quatre trous, assurant une analyse sur toute la largeur de la conduite. Les gaz brûlés sont transportés jusqu'à la baie d'analyse par le biais d'une ligne chauffée à 200°C servant à éviter toute

condensation des gaz de combustion. L'analyse granulométrique en particules de suie est effectuée au moyen d'un système de prélèvement des suies composé de la sonde de prélèvement détaillée au chapitre 4. Dès son entrée, les gaz brûlés sont dilués et refroidis par une injection d'azote. Les particules de suie sont ensuite acheminées dans un volume tampon relié à la sortie de la sonde. Un appareil de dilution à air commercial, le Dekati FPS-4000, est connecté à ce volume tampon. Celui-ci prélève une proportion du gaz à analyser pour le diluer une seconde fois. L'aérosol dilué est ensuite prélevé, puis analysé avec un système SMPS TSI 3938.

Contrairement au gaz de combustion, le prélèvement des particules de suie requiert une attention particulière dans le mode de fonctionnement de la sonde de prélèvement. Il est ainsi nécessaire de s'assurer que le prélèvement ne modifie en rien la population de particules le long de la ligne de prélèvement. Comme aucun dispositif de prélèvement n'est idéal, il convient d'évaluer ses performances en termes de proportion de particules arrivant réellement au système d'analyse. La détermination de ce rendement de prélèvement est généralement réalisée avec un aérosol de référence, dont la concentration et la distribution en taille sont connues. Idéalement, le prélèvement des particules doit être réalisé dans les mêmes conditions de pression et de température, avec des particules de même distribution. Malheureusement, il est impossible de reproduire les conditions de prélèvement à l'identique. En effet, il n'existe pas de générateur de particules fonctionnant à une température de flamme, et encore moins à pression élevée. De plus, l'aspiration du fluide dans la sonde de prélèvement est rendue possible grâce à la grande différence de pression entre la chambre de combustion et la sortie de la sonde. En conséquence, il est tout simplement impossible de déterminer le rendement de prélèvement de la sonde de prélèvement nouvellement installée dans la chambre de combustion.

Néanmoins, la conception de cette sonde a été réalisée de manière à impacter le moins possible la distribution des particules de suie à la fois en taille comme en nombre (cf. chapitre 4). De plus, l'étude réalisée sur le banc de combustion SIRIUS (cf. chapitre 6) a permis de valider le principe de prélèvement d'agrégats de suie par une sonde fonctionnant avec une dilution à l'azote, et ce sur une flamme turbulente. Un dernier point reste toutefois à vérifier : s'assurer que l'aérosol est suffisamment dilué pour éviter tout phénomène d'agrégation le long de la ligne de prélèvement. Une validation de ce principe a été réalisée en effectuant une analyse de la convergence en taille en faisant varier le taux de dilution de l'aérosol analysé. Les mesures sont réalisées avec l'injecteur S05, pour deux conditions opératoires : le point de référence à 4,5 bar (PF2), et le point le plus critique, à 6 bar (PF4). Les résultats sont affichés sur les figures 7.3 et 7.4. Les courbes présentées sur la figure 7.3 sont les distributions brutes en taille des particules de suie obtenues sur un même point de fonctionnement, mais avec des taux de dilution différents. La variation du taux de dilution appliqué dans la sonde de prélèvement est représentée par un marqueur, soit triangulaire, carré ou circulaire. La dilution appliquée au niveau du second étage est quant à elle, représentée par une couleur rouge, jaune, ou bleue. On observe que les distributions en taille suivent une loi de type log-normale. Il s'agit d'un résultat fréquemment reporté dans la littérature et également observé sur la flamme du brûleur SIRIUS (chapitre 6). Sans surprise, la norme des distributions en taille de suie augmente lorsque le taux de dilution diminue. Parallèlement, le mode des distributions tend à se décaler vers de plus grands diamètres, signe d'un phénomène d'agrégation des particules opérant le long de la ligne de prélèvement. Pour plus de lisibilité, le diamètre médian des distributions en taille de suie est calculé en supposant une distribution de type log-normale, et reporté sur la figure 7.3. On observe que ce diamètre médian tend à se réduire dès lors que le taux de dilution global augmente, jusqu'à atteindre une valeur limite autour de 66 nm. Cette valeur est atteinte à partir d'un taux de dilution intermédiaire, représenté par un marqueur circulaire jaune (forte dilution sonde et dilution FPS moyenne). En d'autres termes, l'agrégation des particules est arrêtée à partir d'un taux équivalent supérieur ou égal à ce taux de dilution. Ce même test de convergence est appliqué sur le point de fonctionnement à 6 bar, où la convergence est atteinte dans des conditions de dilution similaires.

Lors des mesures réellement effectuées dans la chambre de combustion HERON, le taux de dilution appliqué à l'aérosol sera très élevé (forte dilution sonde et forte dilution FPS). Représenté par un cercle bleu sur les figures 7.3 et 7.4, ce niveau de dilution sera considéré comme suffisamment grand pour éviter toute agrégation de particules de suie sur les points de fonctionnement considérés tout en offrant une marge de sécurité au cas où l'un des points de fonctionnement présenterait des niveaux de production de suie très élevé.

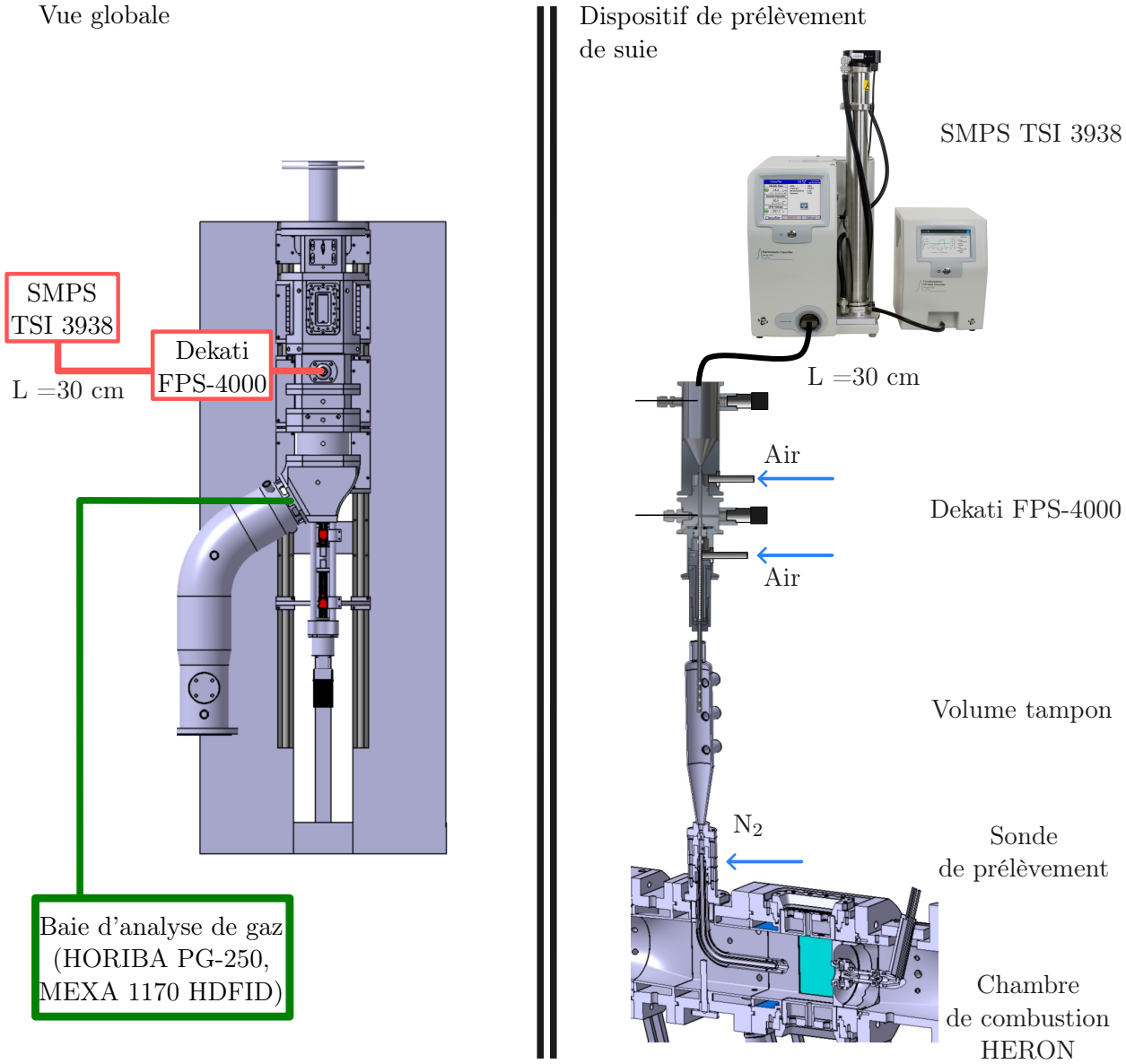

FIGURE 7.2 – Schéma du montage pour le prélèvement de gaz en sortie chambre et des particules de suie

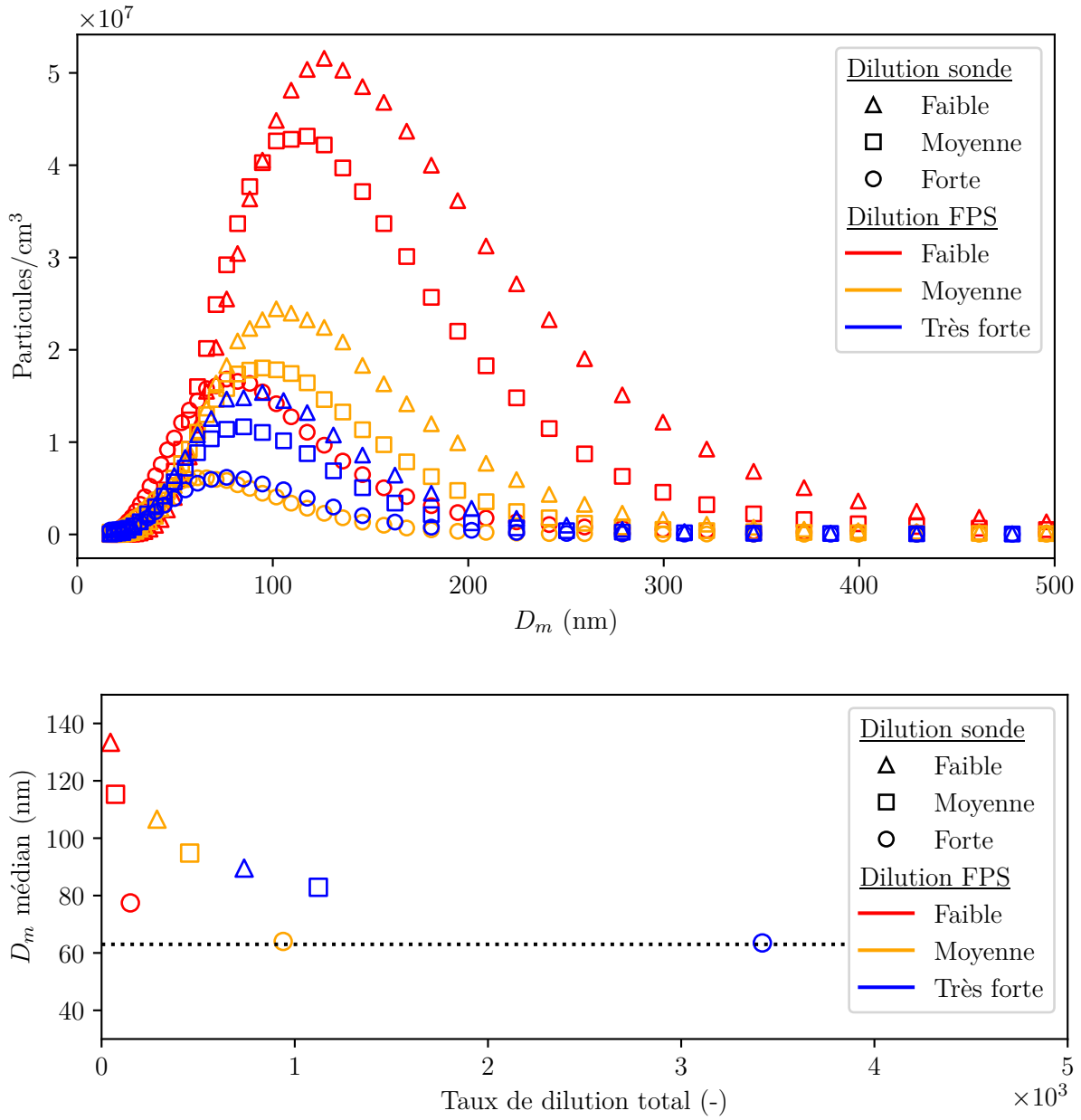

FIGURE 7.3 – Validation de la procédure de prélèvement à une pression chambre de 4,5 bar. En haut : distributions brutes obtenues. En bas : évolution du diamètre médian mesuré en fonction du taux de dilution global appliqué lors du prélèvement

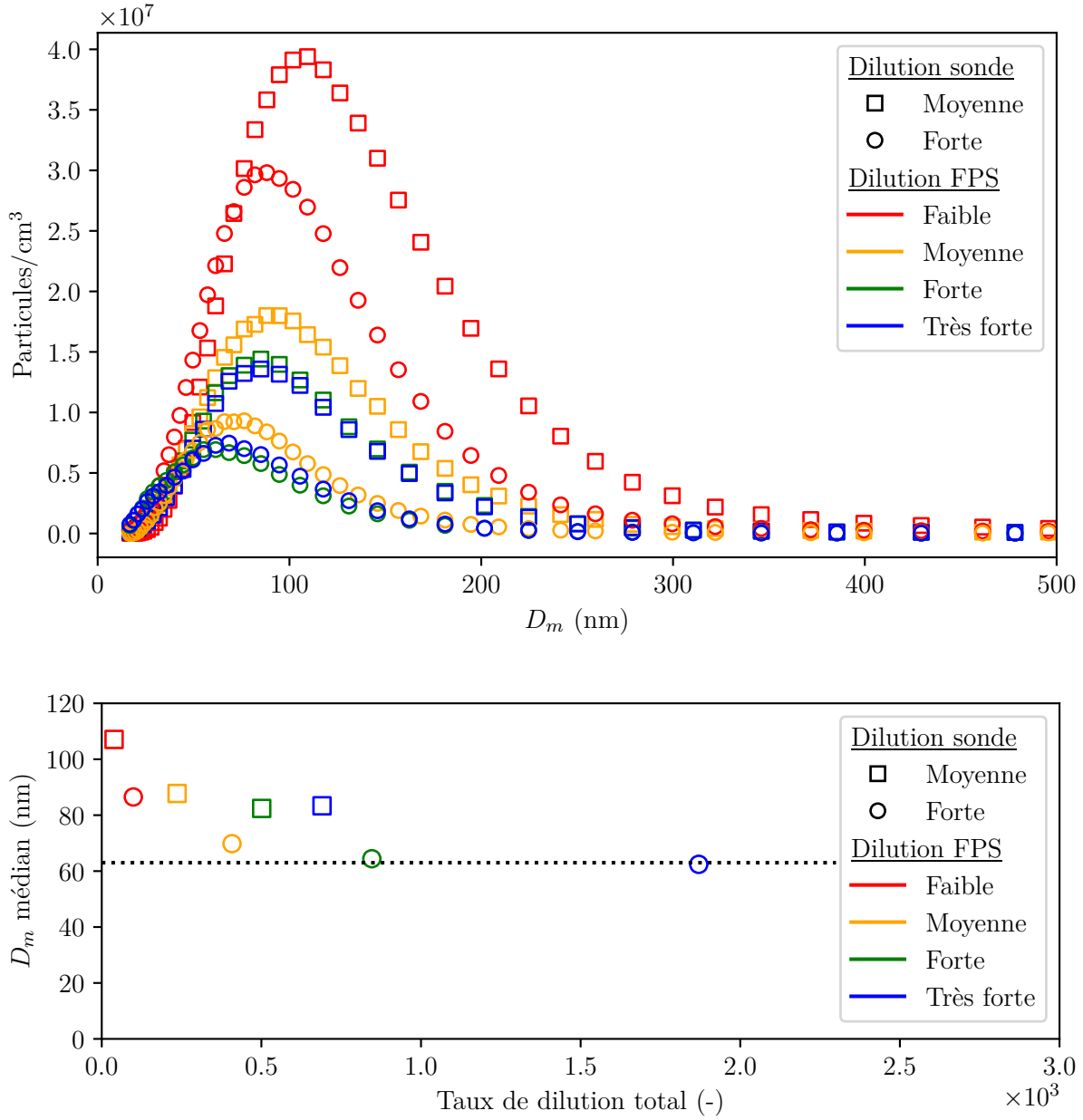

FIGURE 7.4 – Validation de la procédure de prélèvement à une pression chambre de 6 bar. En haut : distributions brutes obtenues. En bas : évolution du diamètre médian mesuré en fonction du taux de dilution global appliqué lors du prélèvement

7.2.2 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et PLIF-NO couplées

Dans cette première campagne de mesure, trois diagnostics laser ont été combinés pour mesurer simultanément les distributions spatiales du monoxyde d'azote (Imagerie de fluorescence sur la molécule de NO - PLIF-NO), du kérosène en phase vapeur et liquide (Imagerie de fluorescence des mono- et diaromatiques rentrant naturellement dans la composition chimique du kérosène - PLIF-kérosène), et la structure de flamme (Imagerie de fluorescence sur le radical OH - PLIF-OH). Le schéma expérimental est présenté sur la figure 7.5.

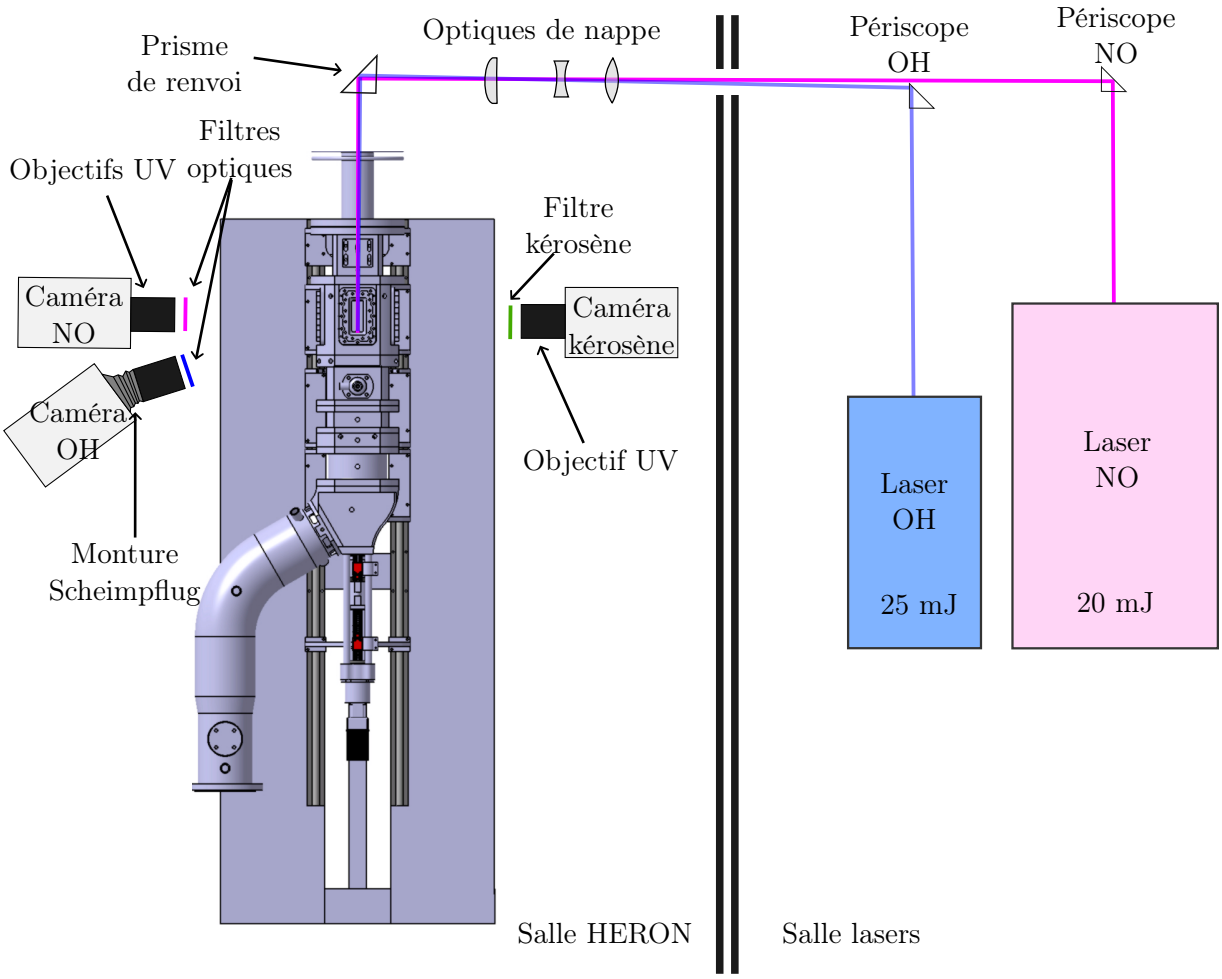

FIGURE 7.5 – Schéma du montage pour la mesure couplée de PLIF-OH/PLIF-NO/PLIF-kérosène

7.2.2.1 Lasers

La source laser utilisée pour les mesures de PLIF-OH et de PLIF-kérosène est un laser à colorant (Sirah Precision Scan), générant des impulsions laser d'une durée de 6 ns à 282,75 nm, à une cadence de 10 Hz. L'énergie par impulsion est de 25 mJ.

Le laser à colorant requiert une source laser dit « de pompe ». Il s'agit ici d'une source laser Nd :YAG (Quanta-Ray Pro Series), de longueur d'onde fondamentale égale à 1064 nm. Celui-ci est doublé en fréquence pour obtenir un faisceau laser de 532 nm avec une énergie de 500 mJ par impulsion. Le colorant utilisé pour la génération du faisceau laser est de la Rhodamine 590 diluée dans de l'éthanol. Au travers d'un oscillateur et d'un amplificateur, la solution de Rhodamine 950

est excitée par le faisceau laser à 532 nm, générant un signal de fluorescence de large bande spectrale, centré autour de 565 nm. Le faisceau laser obtenu est ensuite doublé en fréquence avec un cristal BBO (bêta-borate de baryum) associé à un compensateur de trajectoire. Un réseau constitué de prismes de Pellin-Broca permet de ne sélectionner qu'une bande spectrale très étroite. La longueur d'onde de la raie ainsi sélectionnée est ajustée de manière à exciter les transitions électroniques du radical OH.

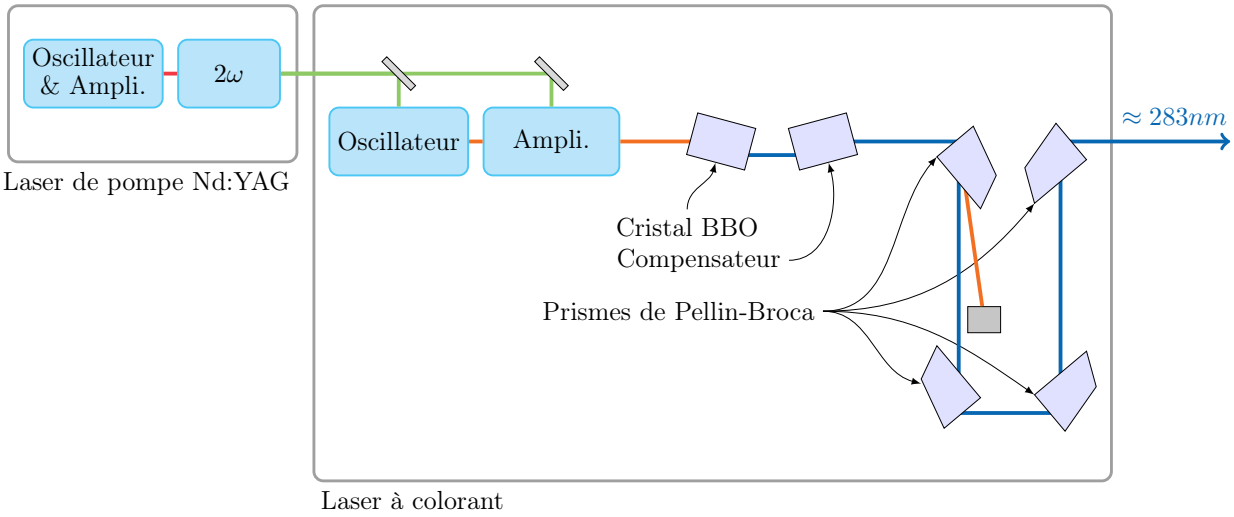

FIGURE 7.6 – Schéma du laser OH

La source laser utilisée pour les mesures de PLIF-NO est un laser à colorant Sirah PrecisionScan, générant des impulsions laser d'une durée de 6 ns à 224 nm, à une cadence de 10 Hz. L'énergie par impulsion est de 20 mJ. Son principe de fonctionnement diffère légèrement du laser utilisé pour la PLIF-OH (figure 7.7). Le laser de pompe est une source laser Nd :YAG (Quanta-Ray Pro Series), de longueur d'onde fondamentale égale à 1064 nm. Ce dernier est doublé en fréquence pour obtenir un faisceau laser de 532 nm avec une énergie de 600 mJ par impulsion. Ensuite, les faisceaux de 1064 et de 532 nm sont mélangés pour générer un troisième faisceau à 355 nm, avec une énergie de 400 mJ par impulsion.

$$\frac{1}{\lambda_{335\ nm}} = \frac{1}{\lambda_{1064\ nm}} + \frac{1}{\lambda_{532\ nm}} \tag{7.1}$$

Le faisceau laser à 532 nm est également utilisé pour exciter le colorant du laser Sirah PrecisionScan, à savoir une solution de Rhodamine 640 et de Rhodamine B diluée dans de l'éthanol. Au travers d'un oscillateur et de deux étages d'amplification, un faisceau laser énergétique à 614 nm est produit. En sortie du laser à colorant, un second système de mixage entre les faisceaux à 614 et 355 nm constitué d'un cristal BBO, sert à produire un troisième faisceau laser situé au voisinage de 225 nm.

$$\frac{1}{\lambda_{225\ nm}} = \frac{1}{\lambda_{614\ nm}} + \frac{1}{\lambda_{355\ nm}} \tag{7.2}$$

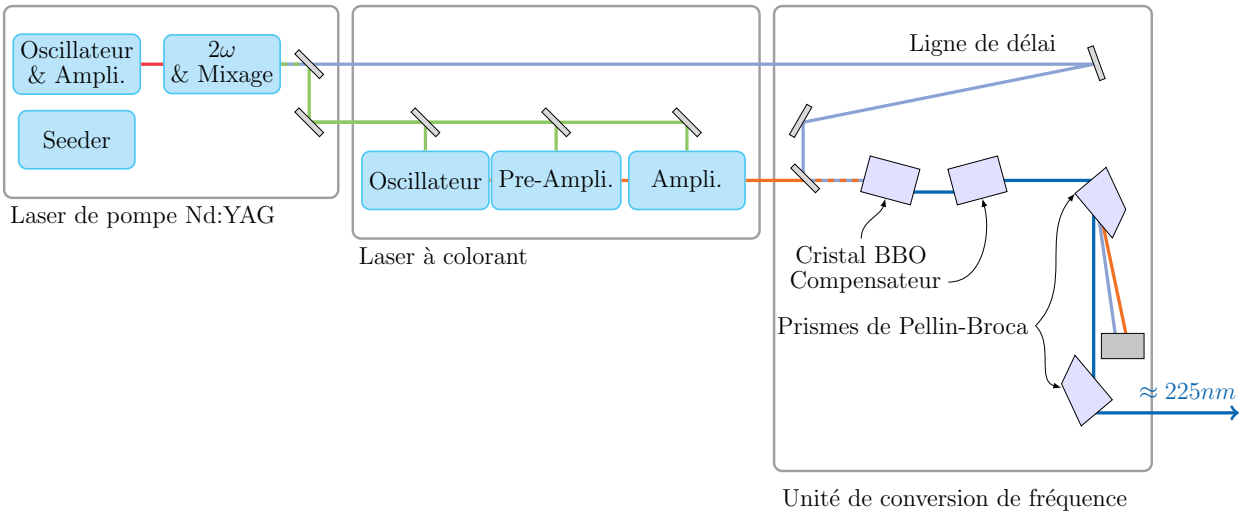

FIGURE 7.7 – Schéma du laser NO

7.2.2.2 Chemins optiques et nappes laser

Les deux sources laser utilisées pour les diagnostics de PLIF sont installées dans une pièce juxtaposée à la salle dans laquelle se trouve le banc de combustion haute pression HERON. Les faisceaux laser produits par ces deux sources laser sont redirigés vers la salle d'essai au moyen de deux périscopes constitués de prismes de Pellin-Broca. L'une des difficultés principales de ce type de dispositif de mesure consiste à faire coïncider les deux nappes laser (et donc les deux faisceaux laser) dans la chambre de combustion. Généralement, la superposition de deux faisceaux laser est effectué avec une lame dichroïque, qui réfléchit une gamme de longueurs d'onde donnée et qui transmet les autres longueurs d'onde. Cependant, il n'existe pas à ce jour de lame dichroïque suffisamment performante avec un taux de transmission/réflexion satisfaisant, à 225 nm et à 282,75 nm. Ceci provient notamment de la proximité des deux longueurs d'ondes. La solution trouvée pendant le déroulement de la thèse consiste non pas à confondre les deux faisceaux laser, mais à les faire se croiser uniquement dans la zone d'intérêt. La procédure de réglage consiste à envoyer horizontalement le faisceau à 282,75 nm au-dessus de la chambre de combustion. Le faisceau à 225 nm provenant de la source laser la plus éloignée, est dirigée juste au-dessus du prisme supérieur du périscope du laser de PLIF-OH, en le faisant raser avec une trajectoire très légèrement descendante. L'orientation du faisceau à 225 nm est ensuite réglée de manière à faire coïncider les deux faisceaux laser au cœur de la chambre de combustion. En dépit de l'angle appliqué au faisceau laser à 225 nm, dont la valeur est estimée inférieure à 0,15 mrad, l'écart du croisement des faisceaux est inférieur à 3,5 µm sur une distance de ±25 mm. Les faisceaux laser à 225 et 282,75 nm sont ensuite transformés en deux nappes laser en utilisant trois lentilles optiques : une lentille sphérique convergente ($f = 2500mm$), puis une cylindrique divergente ($f = -40mm$) suivie d'une cylindrique convergente ($f = +300mm$). Les nappes ainsi formées, sont renvoyées sur l'axe traversant la chambre de combustion au moyen d'un prisme optique de largeur égale à 60 mm. Les nappes laser sont dirigées dans la chambre de combustion par le hublot supérieur du bloc de visualisation. Les hublots latéraux, de grandes dimensions, sont réservés à la collection des signaux de fluorescence.

7.2.2.3 Collection et filtrage des signaux de fluorescence

Les émissions de fluorescence du radical OH, des aromatiques du kérosène et du monoxyde d'azote NO sont collectées au moyen de trois caméras PI-MAX 4 dotées d'un intensificateur de lumière emICCD et présentant une dynamique de 16 bit (Princeton Instruments, 1024 × 1024 pixels). Les

caméras utilisées pour la mesure de PLIF-NO et PLIF-OH sont équipées d'un objectif Cerco (f = 100 mm, $f/2.8$). La caméra d'acquisition des signaux de PLIF-kérosène est dotée d'un objectif Nikkor (f = 105 mm, $f/4{,}5$). La fréquence d'acquisition des caméras est fixée à 3,33 Hz, ce qui correspond à une acquisition tous les trois impulsions laser. La durée d'ouverture de chaque caméra est fixée à 10 ns. La caméra pour la PLIF-NO et la caméra pour la PLIF-kérosène sont situées orthogonalement aux deux hublots de visualisation, et se font face de part et d'autre du banc de combustion HERON. La caméra pour la PLIF-OH est placée à côté de la caméra de PLIF-NO, avec un léger angle de rotation de manière à conserver le même champ de visualisation. Elle est par ailleurs équipée d'une monture Scheimpflug pour redresser le plan de focalisation de la caméra.

Le filtrage du signal OH est effectué au moyen d'un filtre passe-bande Semrock Brightline 315/15-50D. La caméra de collection de la PLIF-kérosène est équipée d'un filtre passe-bande SAGEM, dont la bande de transmission (entre 300 et 430 nm), permet de collecter la fluorescence des diaromatiques issus du kérosène Jet-A1, et dans une moindre mesure ses monoaromatiques. Le filtre utilisé pour la mesure de PLIF-NO est un filtre passe-bande avec une bande de coupure à 276 nm. Malgré son faible taux de transmission (au maximum 40%), ce filtre coupe efficacement la fluorescence du kérosène induite par une excitation à 225 nm. Pour éviter que les signaux de fluorescence induits par le laser OH (kérosène ou OH) ne viennent polluer les mesures de PLIF-NO, l'émission du faisceau laser à 225 nm ainsi que la collection du signal de PLIF-NO sont retardés de 100 ns par rapport aux mesures de PLIF-OH/PLIF-kérosène. Il s'agit d'une durée inférieure au temps caractéristique chimique de la combustion (la flamme est « figée » durant ce laps de temps), mais suffisamment importante pour éviter toute superposition temporelle des signaux de fluorescence.

7.2.3 Montage de PLIF-OH, PLIF-kérosène et LII couplées

Dans une seconde campagne de mesure, trois diagnostics optiques ont été combinés pour mesurer simultanément les distributions spatiales des suies (Laser-induced Incandescence - LII), du kérosène (liquide +vapeur) (Imagerie de fluorescence des mono- et diaromatiques - PLIF-kérosène), et la structure de flamme (Imagerie de fluorescence du radical OH - PLIF-OH). Le schéma du montage expérimental est décrit figure 7.8.

7.2.3.1 Lasers

La source laser utilisée pour les mesures de PLIF-OH et de PLIF-kérosène est le laser à colorant Sirah PrecisionScan, le même que celui utilisé pour la campagne de mesures de PLIF précédente. Pour ce dispositif optique, le laser de PLIF-NO est remplacé par une source laser destinée à générer les signaux d'incandescence des particules de suie. Il s'agit d'une source laser Nd :YAG de longueur d'onde 1064 nm fonctionnant à une cadence de répétition de 10 Hz. Couplé à un atténuateur, l'énergie en sortie de laser est fixée à 215 mJ par impulsion. À ce niveau d'irradiance, les mesures par LII sont alors en régime dit « saturé », c'est-à-dire que l'énergie délivrée par les impulsions laser est suffisamment élevée pour que les particules de suie chauffées par le faisceau laser atteignent leur température de sublimation. Le régime saturé est parfois évité [4, 5] dans la littérature, car le phénomène de sublimation a pour effet d'accélérer la décroissance du signal LII. Cette décroissance de signal induit donc un biais de mesure qui a pour effet de sous-estimer la fraction de volume mesurée. Le régime saturé peut toutefois être recherché [6], car il permet d'éviter les effets d'absorption de la nappe laser IR au travers de la chambre de combustion. En contrepartie, la durée de détection des signaux de LII doit être le plus faible possible de manière à garder un signal LII le plus constant possible. Dans le cadre de cette campagne de mesure, la durée d'ouverture de la caméra LII est fixée à 10 ns. Il s'agit d'un délai extrêmement court, pendant lequel le signal de LII n'a quasiment pas le temps de décroître, mais qui ne permet pas de collecter beaucoup de signal

d'incandescence. En l'occurrence, les niveaux d'émission LII particulièrement élevés sur les deux systèmes d'injection RQL garantissent une mesure avec un rapport signal à bruit satisfaisant.

7.2.3.2 Chemins optiques et nappes laser

La localisation des sources laser par rapport au brûleur est illustrée sur la figure ci-dessous. Les faisceaux laser pour les diagnostics de PLIF et de LII ont été transformés en sortie des sources laser en des nappes laser planaires de 60 mm de largeur puis focalisés au volume de mesure sur une épaisseur de 200 µm, avec une seule combinaison de lentilles optiques : une sphérique convergente (f = 2000 m) servant à focaliser les nappes laser au volume de mesure et deux lentilles cylindriques, une convergente (f = 300 mm) et une divergente (f = 40 mm), faisant office de télescope. Le recouvrement des faisceaux laser est optimisé pour assurer une superposition parfaite de ces nappes laser dans la zone d'investigation.

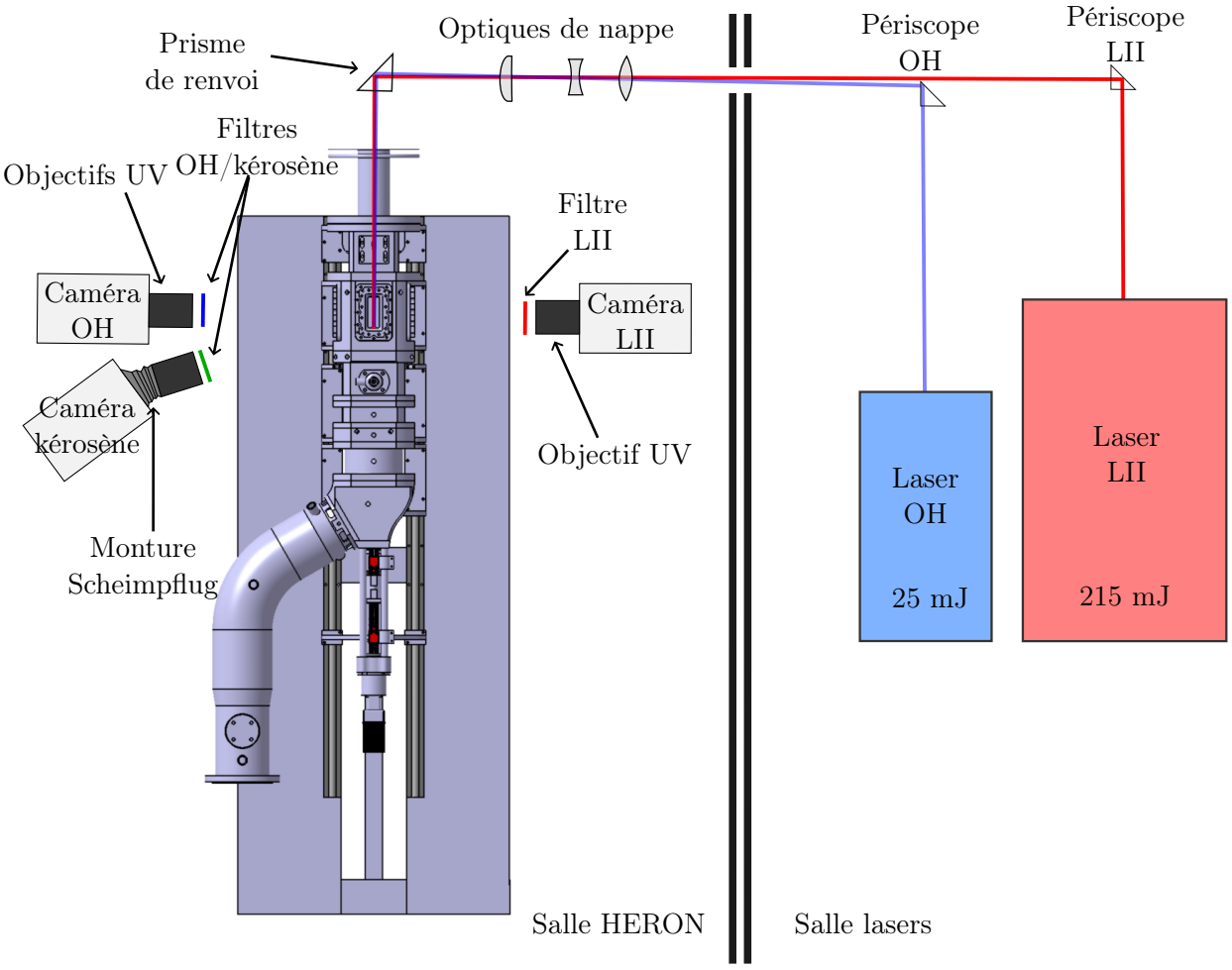

FIGURE 7.8 – Schéma du montage pour la mesure couplée de PLIF-OH/PLIF-kérosène/LII

7.2.3.3 Collection et filtrage des signaux de fluorescence et d'incandescence

La détection et l'acquisition des signaux de fluorescence et d'incandescence est assurée par trois caméras PI-MAX 4 dotées d'un intensificateur 16-bit emICCD (Princeton Instruments, 1024 × 1024 pixels). Les caméras sont équipées d'un objectif Cerco (f = 100 mm, $f/2.8$). La fréquence d'acquisition des caméras est fixée à 3,33 Hz, correspondant à une acquisition d'images tous les

trois impulsions laser. La durée d'exposition de chaque caméra est fixée à 10 ns. La caméra de LII et la caméra de PLIF-OH sont situées orthogonalement aux deux hublots de visualisation, et se font face de part et d'autre du banc de combustion HERON. La caméra de PLIF-kérosène est placée à côté de la caméra de PLIF-OH, avec un léger angle de rotation de manière à conserver le même champ de visualisation. Elle est par ailleurs équipée d'une monture Scheimpflug pour redresser le plan de focalisation de la caméra.
Le filtrage du signal OH est effectué au moyen d'un filtre passe-bande Semrock Brightline 315/15-50D. La caméra de collection de la PLIF-kérosène est équipée d'un filtre passe-bande SAGEM (300-430 nm). Le filtre optique utilisé pour la mesure de LII est un filtre passe-bande 350-400 (Edmund Optics). L'émission du faisceau laser à 1064 nm ainsi que la collection du signal de LII sont retardées de 100 ns par rapport aux mesures de PLIF-OH/PLIF-kérosène. Il s'agit d'une durée inférieure au temps caractéristique chimique de la combustion (la flamme est « figée » durant ce laps de temps), mais suffisamment importante pour éviter toute superposition temporelle des signaux de fluorescence.

7.2.4 PIV haute cadence

La dernière campagne de mesure mise en place pour étudier les systèmes d'injection RQL consiste en une mesure du champ aérodynamique de l'écoulement réactif par la technique de PIV. Le dispositif optique expérimental est détaillé sur la figure 7.10. La mesure du champ de vitesse par la technique PIV requiert l'ensemencement de l'écoulement d'air. À la différence du brûleur SIRIUS, le banc de combustion HERON ne présente pas de coflow d'air pur pour protéger les hublots de visualisation. Les particules ensemencées se collent alors très facilement aux parois des hublots de visualisation, rendant ces derniers rapidement opaques seulement quelques secondes après le démarrage de l'ensemencement. C'est pourquoi une mesure de PIV à basse-cadence, éventuellement combinée à une technique de PLIF ou de LII, est impossible sur HERON. Dans cette campagne de mesure, le diagnostic de PIV est réalisé à haute cadence.

7.2.4.1 Ensemencement

Les particules à ensemencer pour cette campagne de mesure sont des particules d'oxyde de zirconium ZrO_2, de 5 µm de diamètre. Ce matériau présente l'avantage d'être chimiquement et thermiquement inerte, avec une température de fusion de 2700°C, bien supérieure à la température de flamme produite dans la chambre de combustion. La poudre de particules de ZrO_2 est mélangée avec des particules d'oxyde de silice SiO_2, dosé à hauteur de 1%. Ces dernières particules jouent le rôle de disséquant, en évitant toute formation d'agglomérats de particules de ZrO_2 sous l'effet de l'humidité. L'ensemencement des particules d'oxyde de zirconium est réalisé par un dispositif d'ensemencement réalisé au laboratoire. Il s'agit d'un système d'ensemencement de type cyclonique, dont le principe de fonctionnement est décrit sur la figure 7.9.
Ce dispositif d'ensemencement est constitué de deux circuits d'air injecté dans un réservoir en inox contenant la poudre d'oxyde de zirconium. Le premier circuit consiste en une couronne d'injection dotée de multiples capillaires coudés. L'air injecté au travers de ces buses à grande vitesse impacte les particules, les mettant alors en suspension dans le réservoir. Le circuit d'air secondaire consiste en un tube droit où circule un débit d'air plus faible que dans le circuit principal. L'air en sortie de ce tube est injecté dans une tuyère, générant une dépression locale qui a pour effet d'aspirer les particules en suspension et de les envoyer ensuite dans la chambre de combustion.

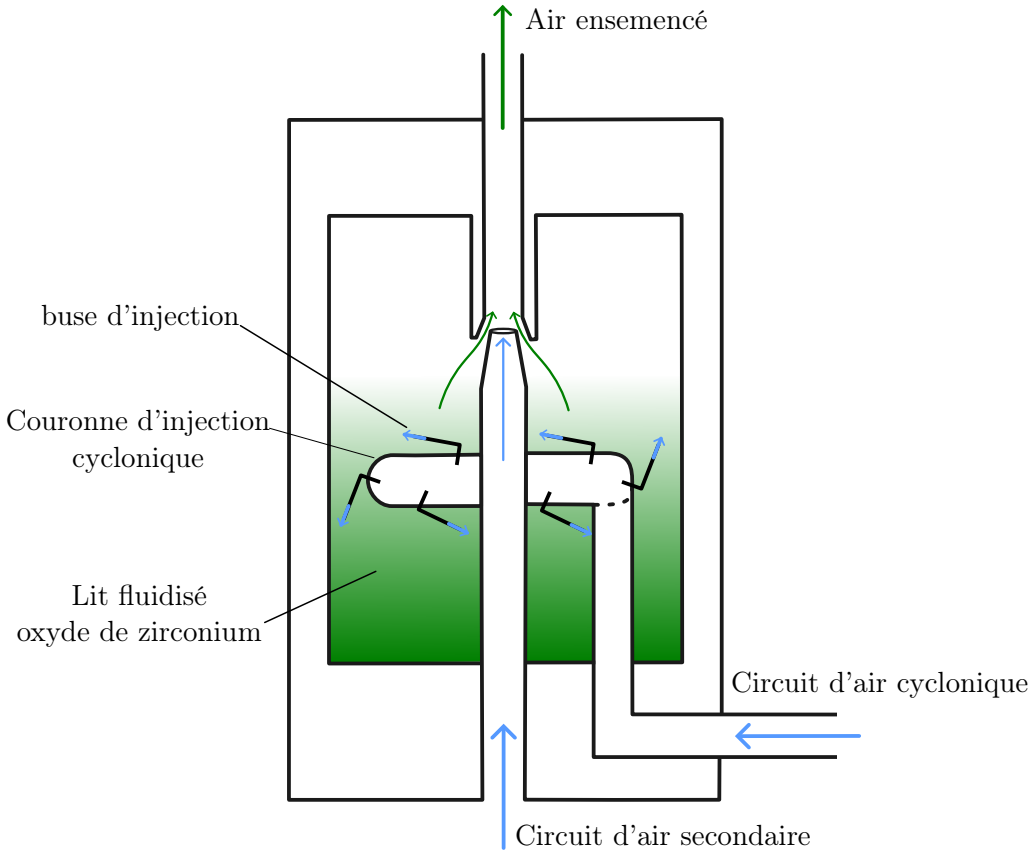

FIGURE 7.9 – Schéma simplifié du dispositif d'ensemencement utilisé sur le banc de combustion HERON

7.2.4.2 Laser

La source lumineuse utilisée est un laser impulsionnel haute cadence à double cavité (Quantronix Dawin Dual Darwin 80), émettant une paire d'impulsions à 10 kHz. La longueur d'onde des faisceaux laser est de 527 nm, et l'énergie par impulsion est de 2,4 mJ. L'aérodynamique de l'écoulement réactif se caractérise par une forte hétérogénéité de vitesse dans la chambre de combustion, entre les zones de jets de kérosène ($\sim$ 30 m/s) et les zones de recirculation externes (5 m/s). Par conséquent, l'intervalle de temps Δt entre les deux impulsions laser doit être optimisé pour permettre des mesures de vitesse sur une large gamme de valeurs. Dans cette campagne de mesure PIV, l'intervalle de temps Δt est fixé à 5 µs.

7.2.4.3 Acquisition et post-traitement des images de PIV

Le couple des faisceaux laser à 527 nm est ensuite transformé en deux nappes laser au passage de trois lentilles : une lentille sphérique convergente (f = 2500 mm), puis une cylindrique divergente (f = 40 mm) suivie d'une cylindrique convergente (f = +300 mm). Les nappes ainsi formées sont renvoyées verticalement en direction de la chambre de combustion au moyen d'un prisme de largeur 60 mm. Les nappes laser sont ensuite introduites dans la chambre de combustion par le hublot optique supérieur du bloc de visualisation. La collection des signaux de diffusion de Mie des particules est effectuée avec une caméra haute cadence (Phantom V2512), au travers d'un des hublots latéraux du banc de combustion HERON. La résolution de la caméra est de 1200 x 800 pixels, et sa fréquence de fonctionnement est de 20 kHz, permettant ainsi une acquisition d'une image pour chaque impulsion laser. La caméra est équipée d'un objectif Zeiss Milvus 2/100M (f =

100mm, $f/2.8$). Afin de filtrer la pollution lumineuse induite par l'émission propre de la flamme, un filtre optique interférentiel centré sur 527 nm est installé sur l'objectif de la caméra.
L'acquisition ainsi que le post-traitement des images brutes de PIV est réalisée au moyen du logiciel commercial Dantec Dynamic Studio. Les champs de vecteurs instantanés sont calculés avec l'algorithme intégré nommé *Adaptative PIV*. Ceux-ci sont constitués de 80 x 50 vecteurs espacés de 1,14 mm.

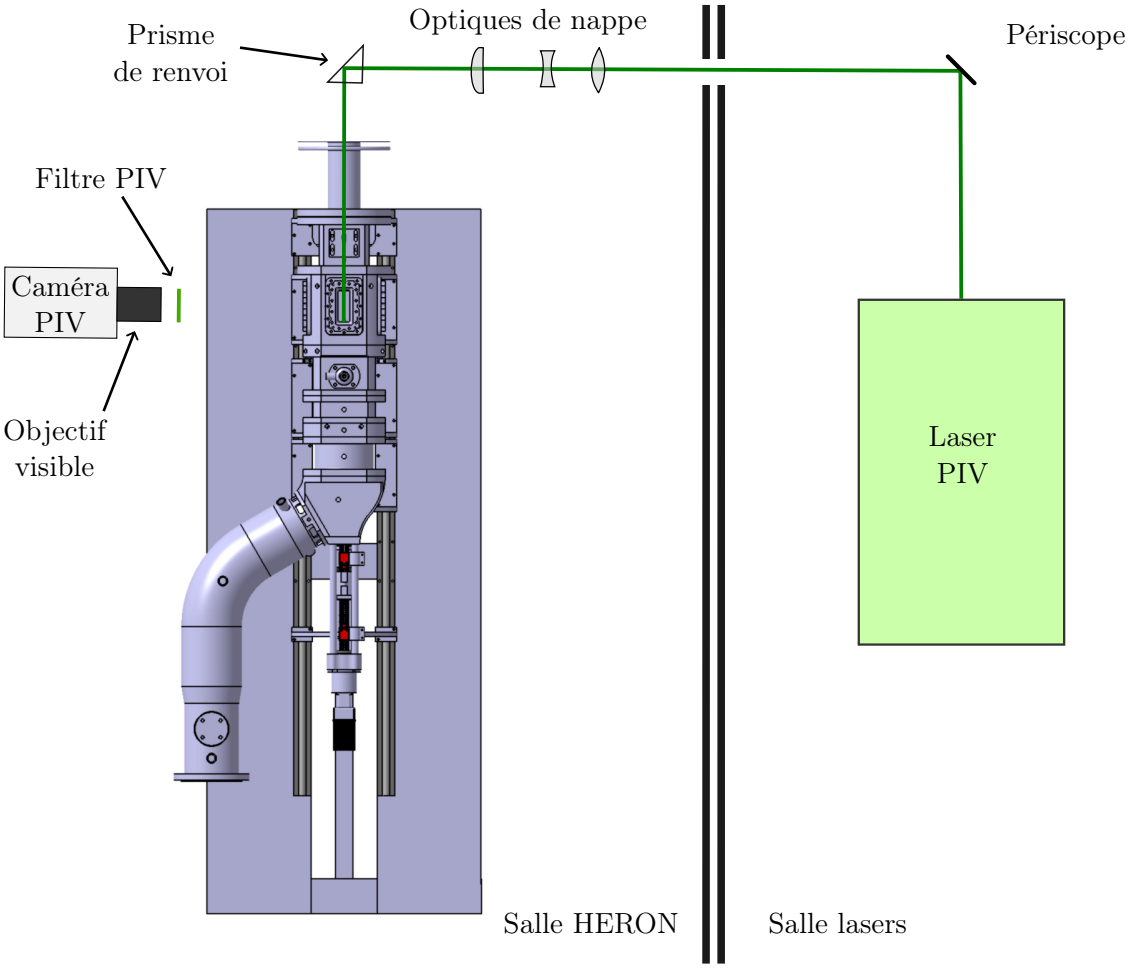

FIGURE 7.10 – Schéma du montage pour la mesure de PIV haute cadence

7.3 Correction des signaux de fluorescence

Les images obtenues à partir des caméras intensifiées ne peuvent être interprétées directement comme correspondant à un niveau de concentration en NO, en kérosène vapeur ou en suie. En effet, de nombreux biais de mesure sont susceptibles d'interférer les mesures. Ces biais de mesure comprennent la collection de lumière parasite, la distorsion des images provenant de l'inclinaison des caméras, ou encore la variation d'énergie laser faussant la quantification des signaux de mesure. Un post-traitement des images rigoureux doit donc être réalisé au préalable. Les étapes de correction et de nettoyage des signaux de PLIF et de LII sont développées ci-dessous.

7.3.1 Distorsion

Pour des raisons d'encombrement, seules deux caméras au maximum peuvent être installées orthogonalement à la direction de la nappe laser. Cependant, une troisième caméra est utilisée pour les montages PLIF-OH/kérosène/NO et PLIF-OH/PLIF-kérosène/LII. Celle-ci est placée au plus proche d'une des caméras perpendiculaires, avec un léger angle pour assurer une conservation du même champ de vision. En raison de la rotation de la caméra, si faible soit-elle, son plan de focalisation n'est plus confondu avec le plan de la nappe laser. L'utilisation d'une monture de Scheimpflug permet alors d'incliner le plan de focalisation de la caméra et de le superposer avec le plan de la nappe laser. Néanmoins, l'image obtenue reste distordue. En d'autres termes, un objet rectangulaire capté par la caméra aurait une forme légèrement trapézoïdale. La correction en distorsion est effectuée au moyen d'une plaque transparente sur laquelle sont imprimés des points séparés de 2,5 mm les uns avec les autres (figure 7.11). La plaque transparente est disposée dans le plan de focalisation des caméras, grâce à l'utilisation d'un support spécialement conçu pour le banc de combustion HERON. L'image de gauche de la figure 7.11 correspond à la caméra inclinée dont l'image est à corriger. Les points de la plaque situés sur la droite de l'image présentent une légère divergence. Une matrice de transformation affine est alors calculée entre l'image de gauche et l'image de référence. Celle-ci est réalisée en se basant sur quatre points communs aux deux images, situés à leurs extrémités. Cette même matrice est ensuite appliquée pour redresser les images brutes issues des caméras inclinées.

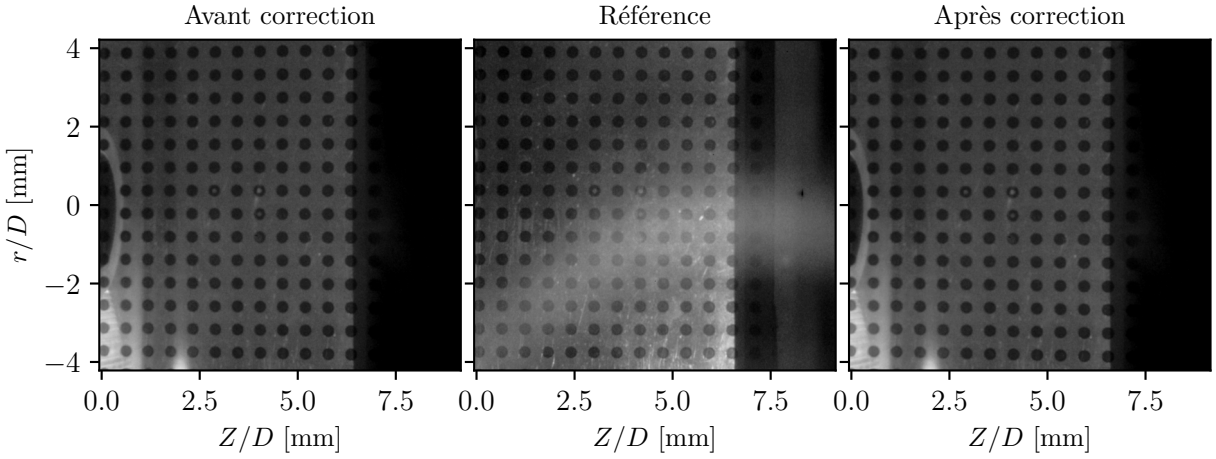

FIGURE 7.11 – Processus de correction en distorsion basé sur une mire de calibration

7.3.2 Signal parasite d'arrière-plan

Malgré un filtrage optique performant, les signaux lumineux collectés par les caméras ne correspondent pas toujours au signal de fluorescence et d'incandescence recherché. Dans cette étude, l'ouverture des flammes issues des systèmes d'injection RQL et leur impact sur les hublots optiques a pour effet de chauffer les hublots de visualisation à très haute température. De ce fait, ces derniers émettent un rayonnement dans le visible et dans l'infrarouge. Cette incandescence des hublots joue alors fortement sur les signaux de PLIF, en particulier ceux de PLIF-OH. En effet, la solution de filtrage optique employée pour la mesure de PLIF-OH ne permet pas d'éliminer efficacement les signaux lumineux situés au-delà de 600 nm. Un exemple d'élimination du signal d'arrière-plan est illustré sur la figure 7.12.
Afin de s'affranchir de cette source de lumière parasite, la mesure est réalisée en deux étapes. La série d'images de PLIF est suivie d'une seconde prise de mesures, effectuée en supprimant le

passage des faisceaux laser. Le signal lumineux ainsi capté par les caméras ne résulte alors que de l'émission propre de la flamme, de l'incandescence des hublots et du bruit numérique des caméras. Une soustraction de ce signal moyen avec les signaux de PLIF permet alors de s'en affranchir en grande partie.

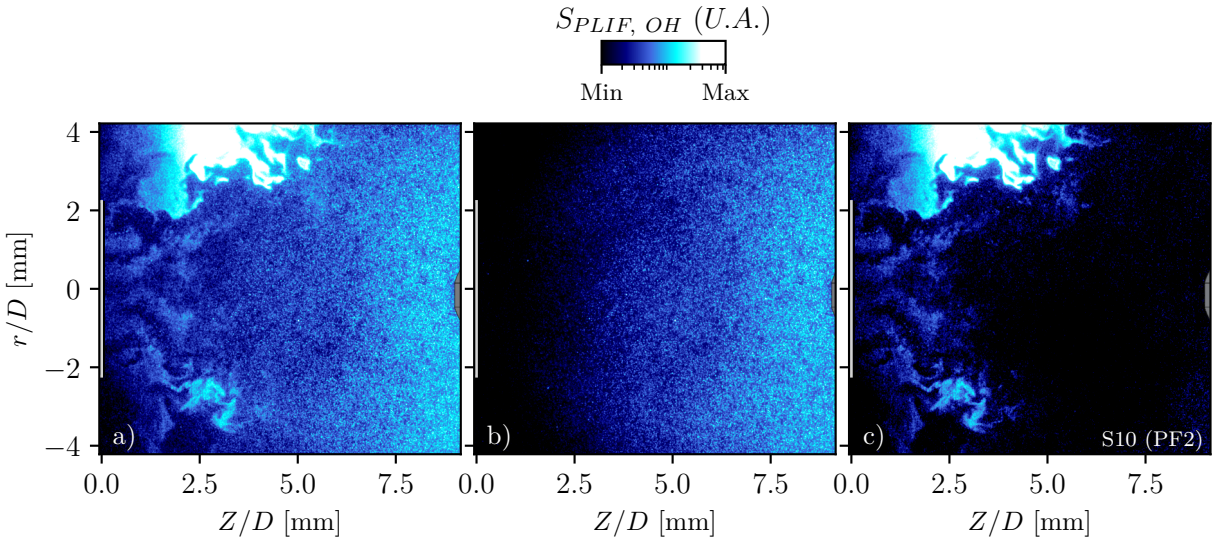

FIGURE 7.12 – Élimination du signal parasite en arrière-plan : a) signal de PLIF-OH brut, b) signal d'arrière-plan mesuré laser éteint, c) signal de PLIF-OH corrigé

7.3.3 Signaux de PLIF parasites

Outre le signal parasite émis par l'émission propre de la flamme et des hublots incandescents, les photons collectés par la caméra peuvent également provenir d'un signal de fluorescence qui ne correspond pas à l'espèce sondée. Dans le cas présent, les signaux de PLIF-OH peuvent être altérés par ce phénomène. En effet, le rayonnement UV émis à 282,75 nm par le laser OH a pour effet d'exciter non seulement le radical OH, mais également les composés aromatiques contenus dans le kérosène (c'est d'ailleurs de cette manière qu'est réalisée la mesure de PLIF-kérosène). La bande d'émission de fluorescence du kérosène s'étend sur un large domaine spectral allant de 280 à 420 nm, se superposant fatalement avec le signal de fluorescence du OH excité par la transition $Q_1(5)$. Même avec une solution de filtrage optique idéale, le signal de PLIF-OH ainsi collecté comprend systématiquement un signal résiduel plus ou moins important provenant des signaux de fluorescence du kérosène. Un exemple d'interférence du signal de LIF-OH par le kérosène est représenté sur la figure ci-dessous. À première vue, rien ne permet d'affirmer que le signal collecté par la caméra provient bien de la fluorescence du radical OH. Grâce à la combinaison des mesures PLIF-OH/PLIF-kérosène, une comparaison des images collectées par les deux caméras montre que le signal visualisé sur l'image de PLIF-OH au niveau de l'axe de sortie de l'injecteur provient du signal de fluorescence du kérosène vapeur.

De la même manière, la source laser pour les mesures de PLIF-NO peut également exciter les espèces aromatiques contenues dans le kérosène. Ce problème avait d'ailleurs été identifié par Salaün et al. [3]. Toutefois, son effet est relativement limité grâce au filtre passe-bande utilisé, dont la bande de coupure est située à 276 nm. En effet, une majeure partie du chevauchement des signaux de PLIF-NO et de PLIF-kérosène étant évitée, le signal de PLIF-NO est de fait relativement peu impacté (cf. p. 44 pour de plus amples informations).

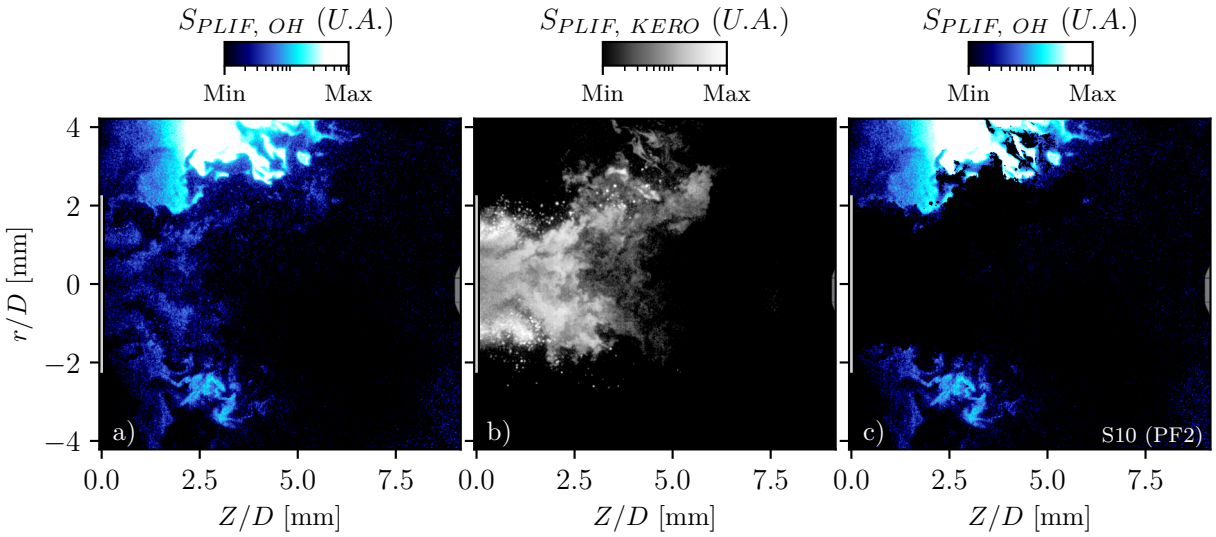

FIGURE 7.13 – Élimination du signal de fluorescence du kérosène parasite : a) signal de PLIF-OH avant correction, b) signal de PLIF-kérosène, c) signal de PLIF-OH après élimination du signal de kérosène parasite

7.3.4 Inhomogénéité de nappe laser

En raison de la nature gaussienne du profil d'énergie des faisceaux émis par les sources laser, l'intensité des nappes laser entrant dans la chambre de combustion n'est pas homogène sur toute leur longueur, et décroît en leurs extrémités. Les mesures de PLIF étant réalisées en régime linéaire, les signaux de PLIF collectés aux bords des nappes laser sont moindres, et ne peuvent donc être quantifiés directement. Une manière de garantir un profil d'intensité homogène consiste à éliminer les contours du faisceau laser, et ne conserver que la partie centrale, où l'intensité est maximale. Malheureusement, cette méthode revient à n'exploiter que 20 à 30% de l'énergie du faisceau. Avec les puissances à disposition, cette option n'est pas envisageable car l'intensité du rayonnement serait trop faible pour permettre une mesure de PLIF avec un bon rapport signal sur bruit. La solution choisie consiste à exploiter tout le faisceau laser, et à redresser numériquement les domaines où les signaux d'intensité de signal sont amoindris. La procédure utilisée pour évaluer la distribution d'intensité de la nappe laser est décrite sur la figure 7.14.

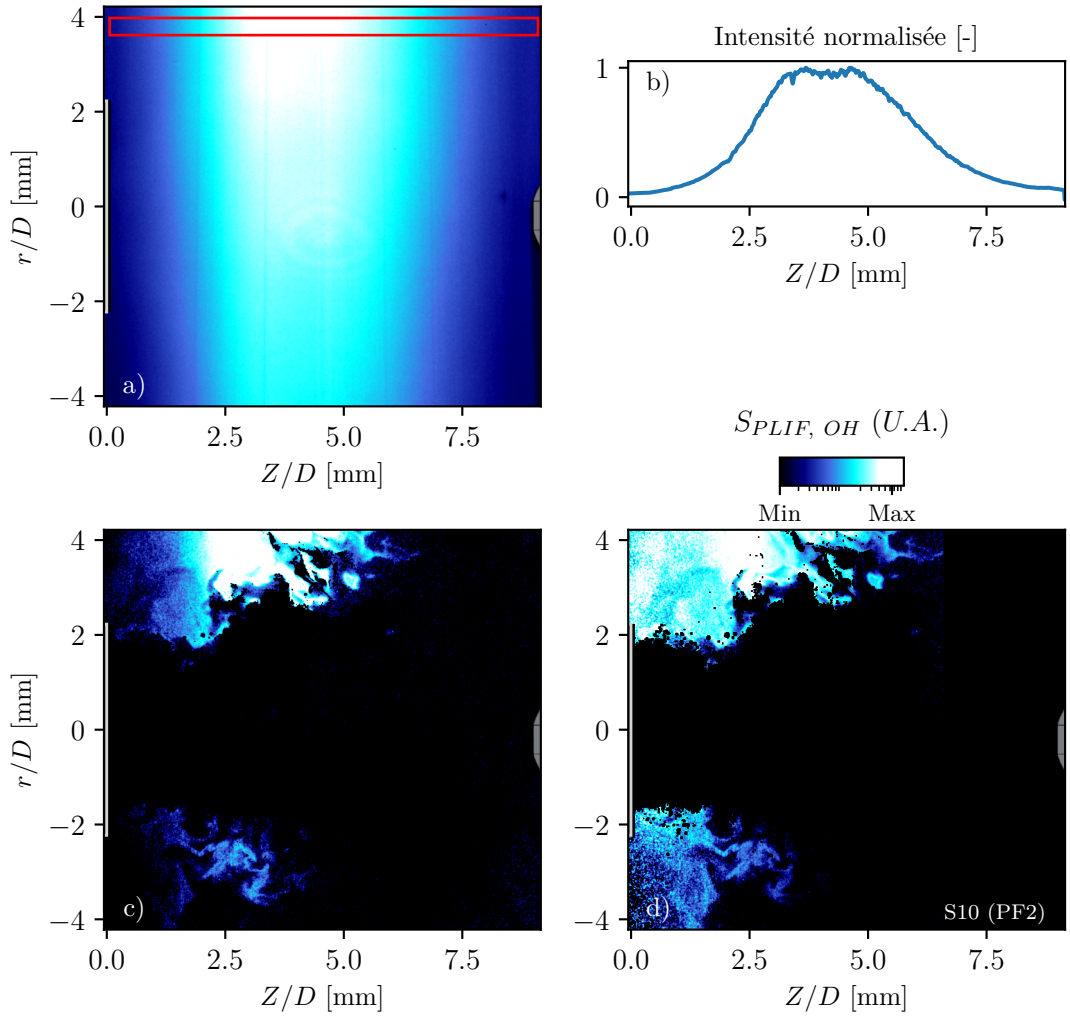

FIGURE 7.14 – Correction de l'inhomogénéité de la nappe laser : a) signal de PLIF-acétone, b) Profil d'intensité extrait de la figure a), c) signal de PLIF-OH avant correction, d) signal de PLIF-OH après correction

7.3.5 Variation d'énergie laser tir à tir

Les deux sources laser impulsionnelles utilisées sont réglées de manière à ce que la puissance émise par les faisceaux laser soit maximale. Cette optimisation est la résultante de l'alignement des composants optiques, associée aux conditions de pression et de température de la salle dans laquelle sont installées les sources laser. La température de la pièce n'étant pas régulée par un système d'air conditionné, la puissance émise par les deux laser peut légèrement décroître durant les expériences de PLIF. Par ailleurs, une légère variation d'énergie tir-à-tir de 0,5 mJ peut être observée sur les deux sources laser, ce qui se traduit par une variation potentielle de 2,5% sur le signal LIF collecté par les caméras. Pour s'affranchir de ce biais potentiel de mesure, l'énergie émise par chaque impulsion laser est mesurée à chaque tir par une photodiode et intégrée sur étage électronique intégrateur (aussi communément appelé Boxcar). La variation tir-à-tir des signaux de mesure est ensuite corrigée numériquement au moment de la quantification des signaux.

7.4 Quantification des signaux de fluorescence et d'incandescence

Les mesures de PLIF et de LII ne sont pas directes en termes d'acquisition de paramètres physiques, car le système de collection des signaux de fluorescence ou d'incandescence dépend de nombreux facteurs, à l'instar de l'angle solide de collection, de l'énergie du faisceau laser, ou encore des performances des différents prismes, lentilles, et autres composants optiques. Par conséquent, il convient d'étalonner les signaux de PLIF et de LII obtenus à partir d'une expérience de référence, dont la valeur de concentration de l'espèce sondée ou de fraction de volume est précisément connue. Les procédures de quantification des différents diagnostics laser est détaillée ci-dessous.

7.4.1 PLIF-NO

La quantification des signaux de PLIF-NO est réalisée suivant la procédure présentée dans l'article de Salaün et al. [7]. Le signal de fluorescence S_F du monoxyde d'azote NO est lié à la concentration de NO χ_{NO} par l'équation suivante :

$$S_F = \varepsilon.\chi_{NO}.E_{laser}.\int S_F^+ T(\lambda)d\lambda \tag{7.3}$$

ε est une constante d'étalonnage qui dépend des conditions expérimentales (angle de collection, gain caméra, etc.), E_{laser} est l'énergie du laser et $\int S_F^+ T(\lambda)d\lambda$ décrit la fluorescence normalisée de NO par mole, moyennée spectralement sur la transmissivité $T(\lambda)$ des filtres optiques utilisés. Dans l'étude de Salaün et al., S_F^+ est modélisé par modèle LIF à cinq niveaux [8, 9], développé selon des principes similaires à ceux proposés par Naik et Laurendeau [10]. Ce modèle de fluorescence tient notamment compte de facteurs tels que la pression, la température, ou encore la raie d'excitation exploitée. Le choix de la raie de transition rotationnelle $Q_1(29.5)$, employée dans cette thèse et dans l'article de Salaün et al., se justifie notamment pour sa très faible dépendance en température, sur une large gamme comprise entre 1500 et 2500 K environ (voir chapitre 2). Cette caractéristique permet ainsi de s'affranchir de l'effet de la température sur le signal LIF mesuré, facilitant la quantification des signaux de PLIF-NO. La constante d'étalonnage ε est déterminée en effectuant des mesures de PLIF-NO sur une flamme de référence H_2/air. Dans le cadre de cette étude, il s'agit d'une flamme plate laminaire, produite par un brûleur de type McKenna. Une coupe du brûleur est représentée sur la figure 7.15. Celui-ci est notamment constitué d'un poreux cylindrique en cuivre, refroidi par eau, et par lequel passe le mélange H_2/air. Ce poreux est entouré d'une couronne (également poreuse) alimentée en azote, destinée à stabiliser et à isoler la flamme de son environnement extérieur. L'étalonnage est réalisé dans les conditions expérimentales les plus fidèles possibles à celles des mesures de PLIF-NO. L'alignement des optiques générant les nappes reste inchangé, et les conditions d'acquisition caméra (gain, durée d'ouverture, etc.) sont conservées. Le brûleur McKenna est placé à l'endroit même de la flamme produite par les systèmes RQL. Les hublots de nappe et de visualisation sont également installés de manière à reproduire l'atténuation de la nappe laser et celle du signal de fluorescence en conditions de mesure sur la chambre de combustion HERON. Le brûleur de référence est alimenté avec un mélange H_2/air ensemencé avec un second mélange NO/N_2, de concentration 900 ppm. La richesse du mélange est fixée à 0,7. La flamme ainsi générée a une température de 1500 K [11]. À cette température, la flamme ne génère pas de NO par voie thermique. En d'autres termes, la valeur de concentration en NO présent dans la flamme correspond à celle du mélange NO/N_2 à 900 ppm, dilué par l'apport du mélange H_2/air. La constante d'étalonnage est ensuite réinjectée dans l'équation 7.3 en considérant cette fois un modèle de fluorescence S_F^+ à haute pression (3, 4,5 & 6 bar).

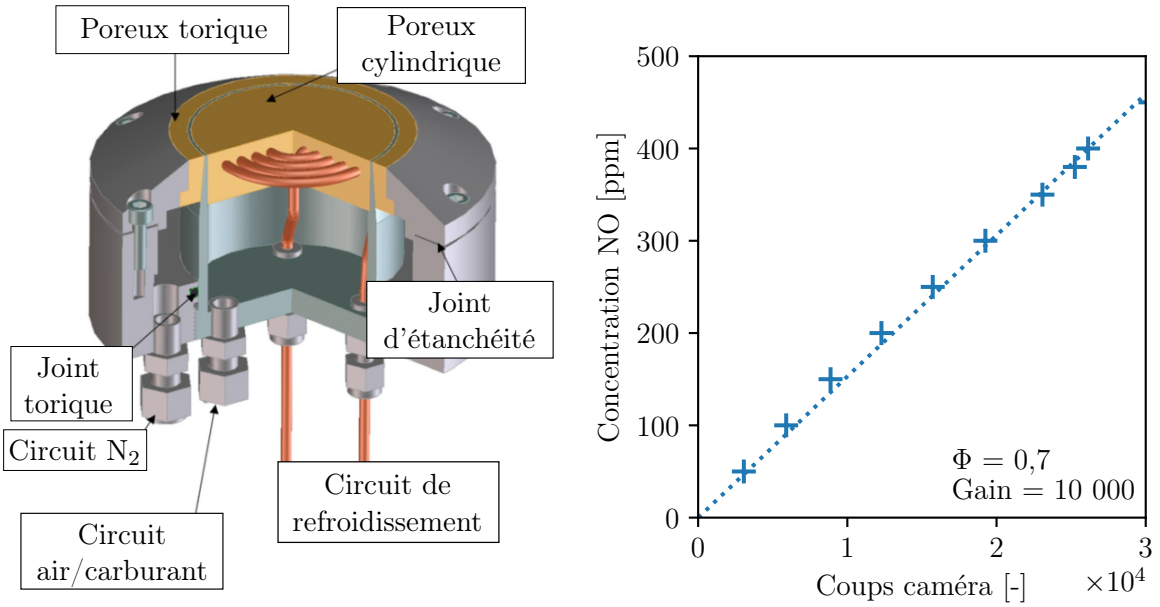

FIGURE 7.15 – Étalonnage du signal de PLIF-NO. À gauche : représentation du brûleur laminaire de référence McKenna. À droite : résultats obtenus pour un gain caméra de 10 000

7.4.2 LII

L'étalonnage des signaux de LII est réalisé au moyen d'une flamme de référence générée par le même brûleur McKenna utilisé lors de l'étalonnage des signaux de PLIF-NO. Une flamme H_2/air ne produisant pas de suie, le brûleur est cette fois ci alimenté avec un mélange gazeux éthylène/air. La richesse du mélange est fixée à 2,3. Avec un tel rapport de mélange, la flamme produit de fortes fluctuations. Cette flamme est alors stabilisée au moyen d'une plaque circulaire de 80 mm, placée à une hauteur de 20 mm au-dessus du poreux. Afin de permettre la mesure de LII, cette plaque dispose une fine fente de longueur 50 mm, par laquelle passe la nappe LII. L'étalonnage est réalisé dans les conditions expérimentales les plus fidèles possibles à celles des mesures de LII. La puissance laser est identique (215 mJ) et l'alignement des optiques générant la nappe laser reste inchangé. Le brûleur McKenna est disposé à l'endroit même de la flamme produite par les systèmes RQL. Les hublots optiques servant à introduire la nappe et à visualisation la flamme sont également installés de manière à simuler l'atténuation de la nappe laser et celle du signal de fluorescence par rapport à celles rencontrées dans les conditions de mesure effectué sur le banc de combustion HERON. L'étalonnage est réalisé en deux étapes. Tout d'abord, la fraction de volume de suie dans la flamme laminaire 1D est préalablement déterminée au moyen d'une mesure par extinction, en utilisant un faisceau laser à 1064 nm continu et un système de collection (i.e. un spectroscope). Le principe consiste à mesurer l'atténuation d'un faisceau laser continu au travers de la flamme éthylène/air. La mesure de l'atténuation du faisceau laser permet de remonter au coefficient d'extinction K_{ext} :

$$\frac{I_t}{I_0} = \exp\left(-\int_0^L K_{ext} dl\right) \tag{7.4}$$

I_0 et I_t représentent respectivement les intensités incidente et transmise par le laser continu, et L est la longueur d'interaction avec le milieu. Le coefficient d'extinction est constant et homogène pour une hauteur au-dessus du brûleur Mckenna donnée. Ainsi, l'expression 7.4 et simplifie et devient :

$$K_{ext} = -\frac{1}{L}\ln\left(\frac{I_t}{I_0}\right) \tag{7.5}$$

Ce même K_{ext} est lié à la fraction de volume f_v par la relation suivante :

$$f_v = \frac{K_{ext}\lambda}{6\pi E(m)} \tag{7.6}$$

avec λ la longueur d'onde du laser et $E(m)$ le coefficient d'absorption des particules de suie. La valeur de la fonction d'absorption $E(m)$ n'est pas mesurée expérimentalement. Celle-ci dépend notamment des propriétés optiques des particules de suie. Les revues réalisées par Michelsen et al. [12] et Bescond et al. [13] rapportent des valeurs de E(m) comprises entre 0,2 et 0,4. Il s'agit d'une dispersion importante dans la mesure où la fraction de volume est directement proportionnelle à ce paramètre. Dans cette étude, la valeur de la fonction d'absorption E(m) est fixée à 0,3, valeur mesurée sur un brûleur McKenna par Drakon [14] en 2021. La fraction de volume f_v ainsi mesurée est de 116 ppb, valeur proche de celle trouvée sur un brûleur McKenna par Hadef et al. [15] en 2010 dans des conditions de richesse similaires. Dans un second temps, une mesure LII est réalisée de manière à relier le signal d'incandescence S_{LII} à la fraction de volume obtenue par la technique d'extinction.

$$S_{LII} = \varepsilon f_v \tag{7.7}$$

ε est la constante d'étalonnage qui dépend des conditions expérimentales (angle de collection, gain caméra, etc.).

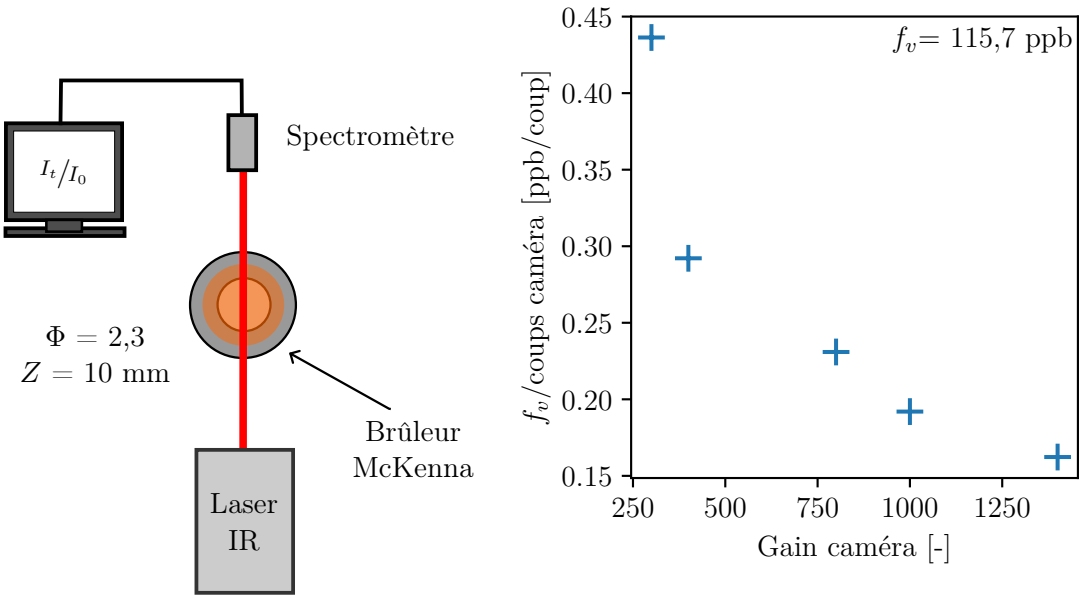

FIGURE 7.16 – Étalonnage du signal de LII. À gauche : principe de mesure de fraction de volume de suie par mesure d'extinction. À droite : résultats obtenus

L'étalonnage ayant été réalisé à pression atmosphérique, le coefficient ε ne tient pas compte de l'effet de la pression sur le signal LII. En effet, l'augmentation de la pression a pour effet d'accroître les pertes thermiques par conduction subies par les particules de suie, conduisant à une décroissance plus importante du signal LII, et faussant alors la quantification en fraction de volume [16]. Néanmoins, cet effet de la pression sur la mesure LII est négligeable si cette dernière est réalisée

rapidement après le pic de signal de LII, avec une durée de collection courte. Dans son article de 2003, Hoffmann et al. [17] effectue des mesures LII résolues en temps sur un brûleur laminaire éthylène/air à pression variable (1-15 bar), et montre que les courbes de signal de LII sont toutes similaires jusqu'à 30 ns à partir de l'impulsion laser. Ainsi, aucune correction en pression n'est effectuée dans cette étude, la mesure LII étant réalisée temporellement à l'endroit du pic de signal LII, avec une durée d'ouverture de la caméra de 10 ns seulement.

7.5 Résultats globaux

7.5.1 Polluants gazeux prélevés en sortie de chambre de combustion

Les résultats des émissions de NO et de CO, de tous les points de fonctionnement étudiés sur les injecteurs S10 et S05, sont reportés sur les figures 7.17 et 7.18. Les deux systèmes d'injection présentent des niveaux d'émission de NO quasiment identiques, avec des valeurs situées autour de 4 grammes de NO par kilogramme de kérosène injecté. Cependant, un régime de fonctionnement se démarque toutefois des autres par des niveaux d'émission de NOx particulièrement élevés. Il s'agit en l'occurrence du PF3 qui en se rapprochant d'un fonctionnement en régime stœchiométrique, favorise la production de NO par voie thermique. Par ailleurs, le régime de fonctionnement présentant le taux de production de NO le plus faible est le PF1, c'est-à-dire le régime avec la plus forte richesse. L'augmentation de la richesse du mélange conduit à une diminution de la température de la flamme associée à une plus faible proportion d'air, d'où une production de NO réduite. Comme l'illustre la figure 7.19, la richesse du mélange injecté est en réalité le seul paramètre d'étude ayant un effet notable sur la concentration de NO relevée en sortie de la chambre de combustion.

Les niveaux d'émission de CO mesurés ont des valeurs comprises entre 2 et 8 grammes par kilogramme de kérosène injectés. Contrairement aux résultats précédents, le système d'injection S05 se démarque cette fois par des niveaux de formation de CO systématiquement plus élevés (figure 7.18), passant parfois du simple au double (ex : PF6). Cette différence peut s'expliquer par la conception des systèmes d'injection. Les autres paramètres d'étude ont un impact de deuxième ordre en cohérence avec les attentes (figure 7.20). Le régime de fonctionnement présentant les niveaux d'émission de CO le plus faible est la condition PF10 à la fois pour les systèmes S10 et S05. Celui-ci se caractérise par un débit d'air secondaire plus élevé, qui favorise de fait la post-combustion du CO.

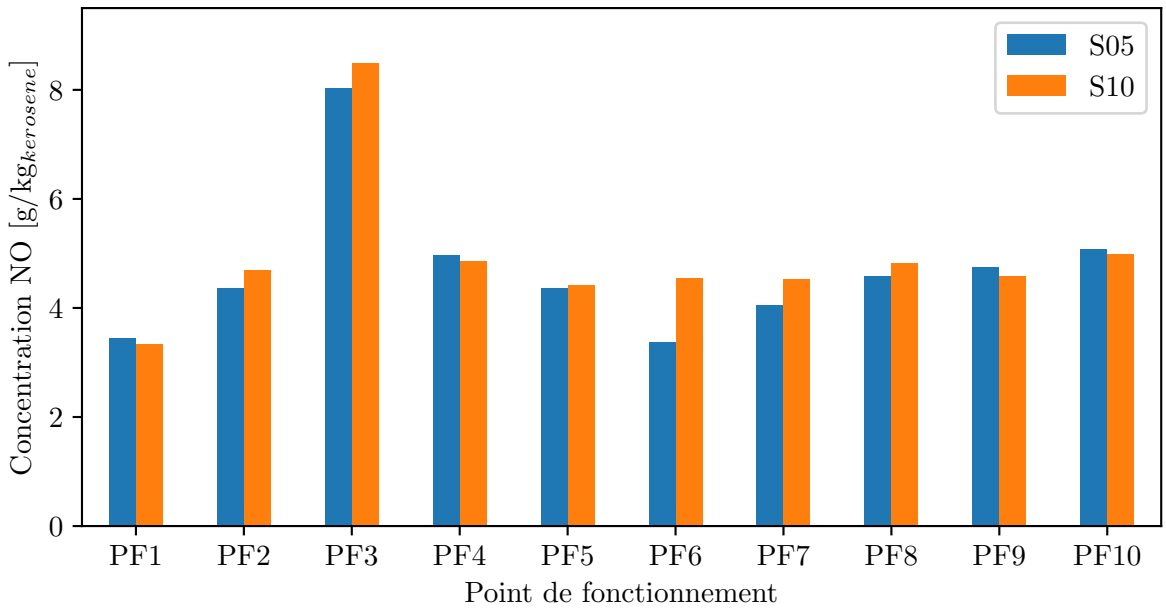

FIGURE 7.17 – Émissions de monoxyde d'azote NO en sortie de chambre - résultats globaux

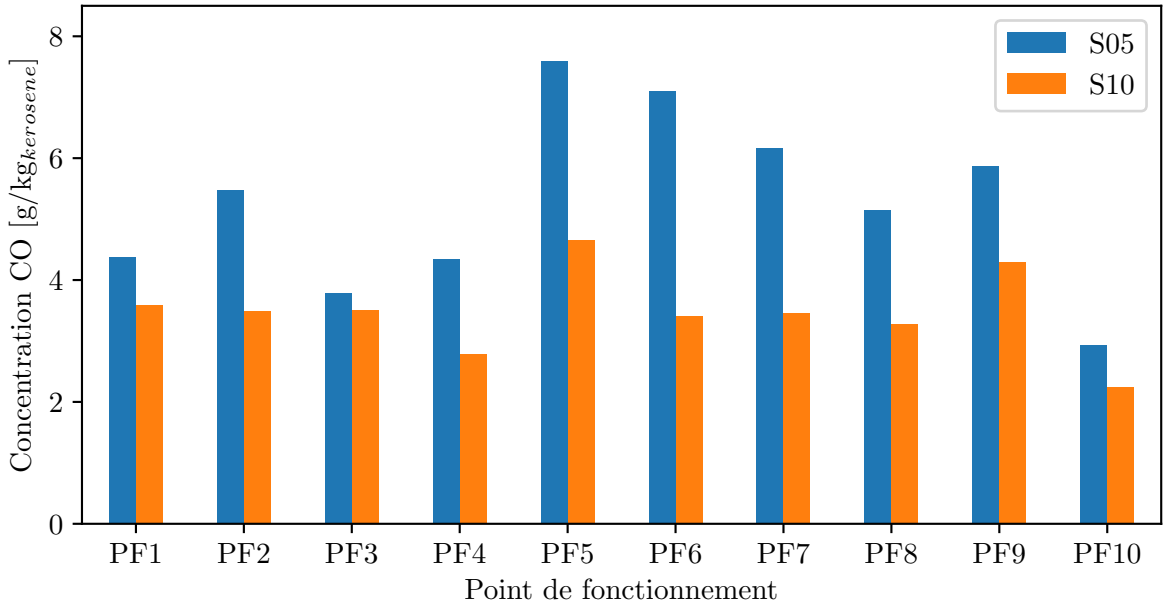

FIGURE 7.18 – Émissions de monoxyde de carbone CO en sortie de chambre - résultats globaux

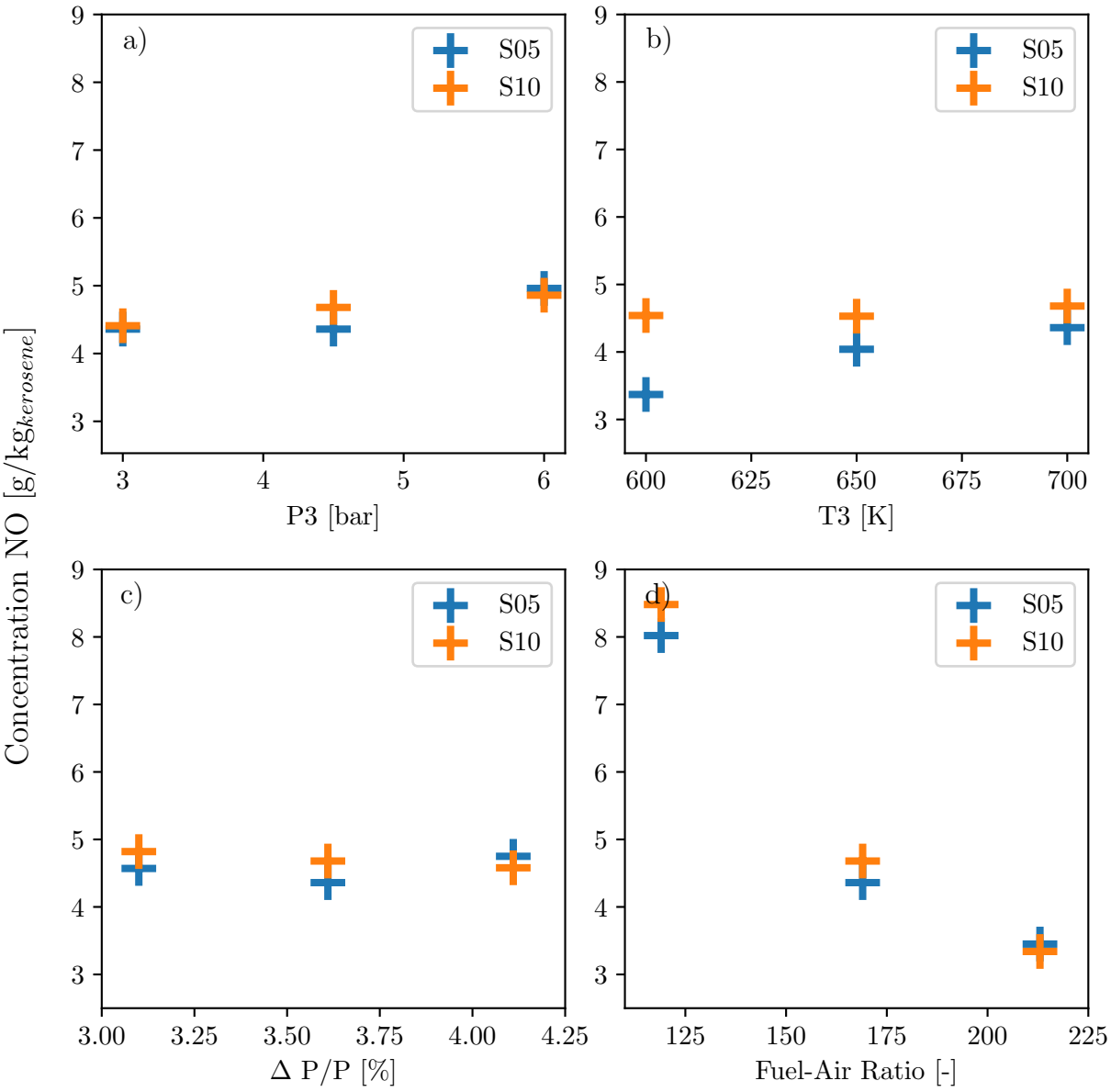

FIGURE 7.19 – Émissions de monoxyde d'azote NO en sortie de chambre en fonction de a) la pression chambre, b) la température d'injection d'air, c) la perte de charge à l'injection, d) la richesse du mélange injecté

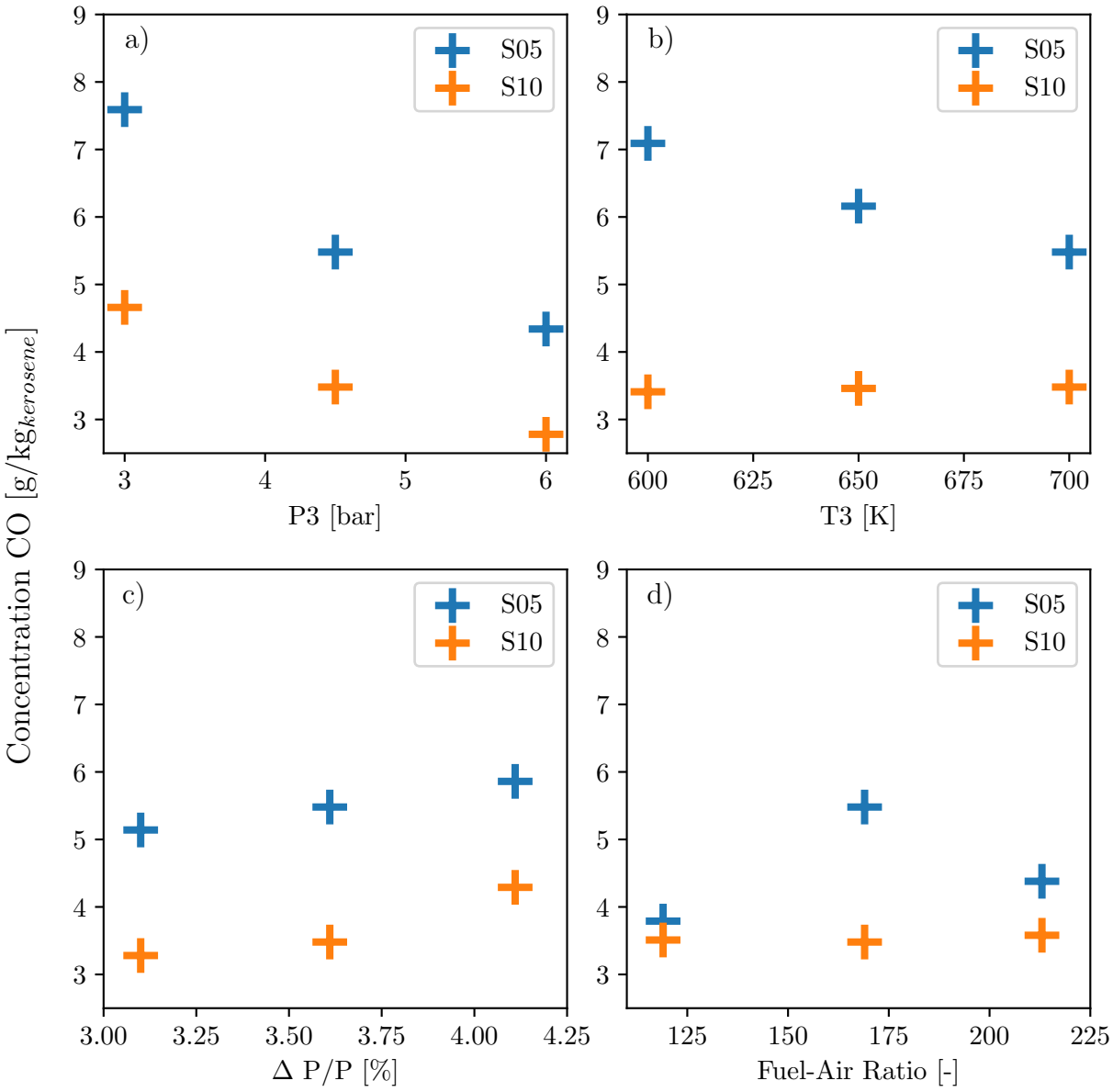

FIGURE 7.20 – Émissions de monoxyde de carbone CO en sortie de chambre en fonction de a) la pression chambre, b) la température d'injection d'air, c) la perte de charge à l'injection, d) la richesse du mélange injecté

7.5.2 Particules de suie prélevées depuis la chambre de combustion

Parallèlement aux prélèvements gazeux en sortie de chambre de combustion, des prélèvements de particules de suie sont réalisés. Les distributions de tailles de suie obtenues sur les dix régimes de fonctionnement sont reportées sur les figures 7.21 et 7.22. Le point de fonctionnement de référence (PF2) est représenté par une ligne orange, plus épaisse et accompagnée de marqueurs circulaires. Globalement, les distributions suivent toutes une loi de type log-normale, propriété fréquemment rencontrée dans la littérature [4, 18, 19, 20], également observée sur le brûleur SIRIUS au chapitre 5. On remarque également que le système d'injection S05 a globalement tendance à produire plus de particules de suie, à la fois en termes de taille et de concentration. Le grand nombre de distributions affichées rend difficile une interprétation des mesures plus poussée. Pour plus de visibilité, les résultats obtenus sont également représentés en termes de diamètres de mobilité électrique médians (figure 7.23) et de densités volumiques de particules (figure 7.24).

Les histogrammes confirment la surproduction de suie observée sur le S05, à la fois en taille et en concentration. Les prélèvements réalisés pour les différents régimes de fonctionnement ne montrent pas de différence significative en matière de taille de suie, avec des diamètres médians compris majoritairement entre 60 et 70 nm. Sans surprise, c'est le régime de fonctionnement à plus faible richesse (PF3) qui produit les plus petites tailles de particules de suie.
Concernant les densités par unité de volume mesurées, les différences entre les régimes de fonctionnement sont plus nettes. Une fois encore, le point de fonctionnement PF3 se démarque avec la plus faible concentration mesurée. Par ailleurs, la richesse est le paramètre qui a le plus d'effet sur la production de suie, comme le souligne l'évolution linéaire des concentrations relevées entre les points PF1 ($\Phi = 3,2$), PF2 et PF3 ($\Phi = 1,8$). Dans une moindre mesure, la pression chambre joue également un rôle sur la concentration mesurée. Cependant, la densité de particules de suie mesurée pour la condition PF4 (6 bar) est inférieure à celle mesurée pour la condition PF5 (3 bar), résultat qui contrevient à l'idée selon laquelle le taux de production de suie augmente avec la pression. Il faut néanmoins souligner que le point de prélèvement se situe le long de l'axe de sortie du système d'injection, à une distance fixe de 75 mm. Or, les analyses réalisées sur le brûleur SIRIUS à haute pression (chapitre 6) avaient révélé que l'augmentation de la pression avait pour effet de renforcer la recirculation de gaz brûlés, favorisant l'oxydation des particules de suie le long de l'axe de sortie du brûleur. On peut donc présumer que les systèmes d'injection RQL suivent la même tendance.

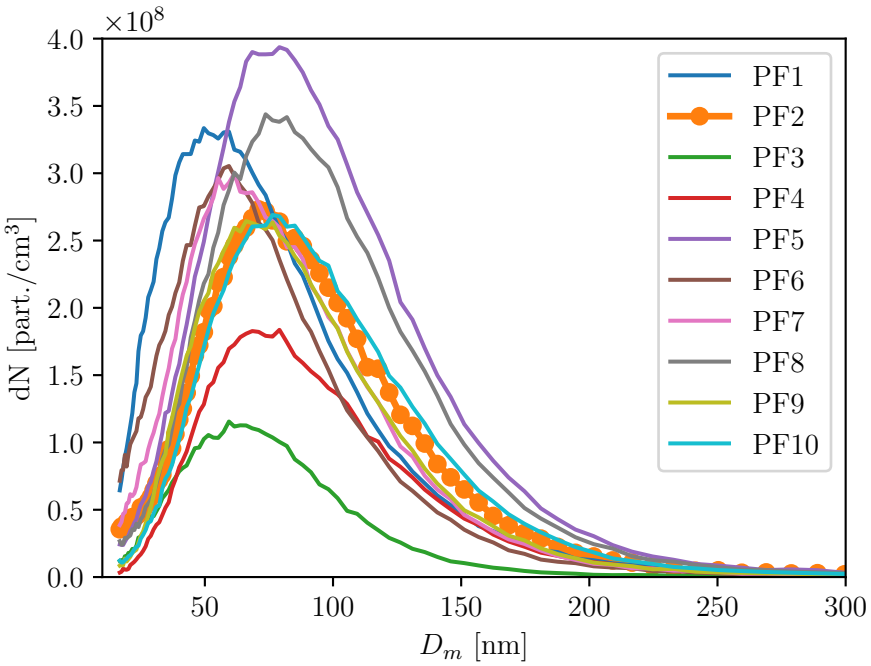

FIGURE 7.21 – Distributions en taille de suie mesurées dans la chambre de combustion sur le système d'injection S05

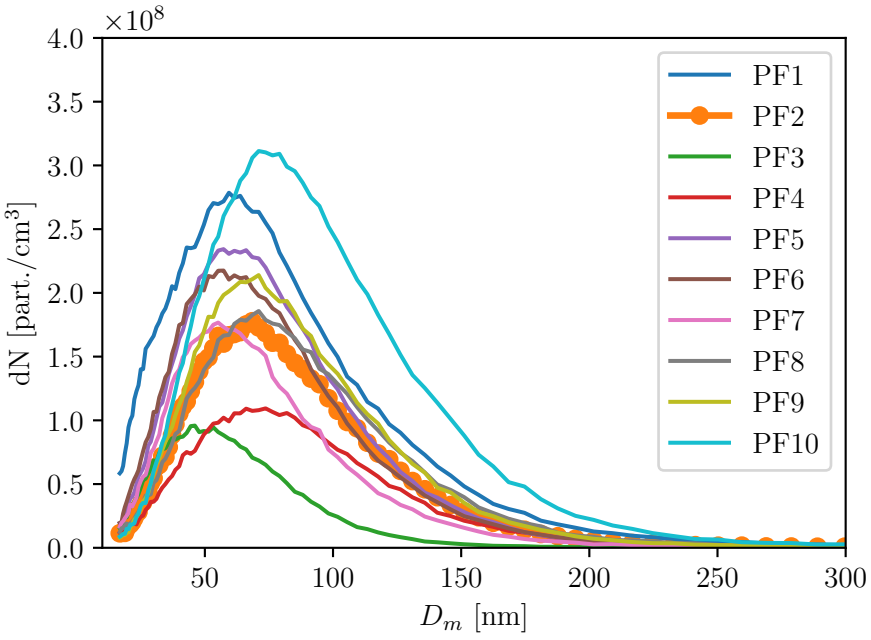

FIGURE 7.22 – Distributions en taille de suie mesurées dans la chambre de combustion sur le système d'injection S10

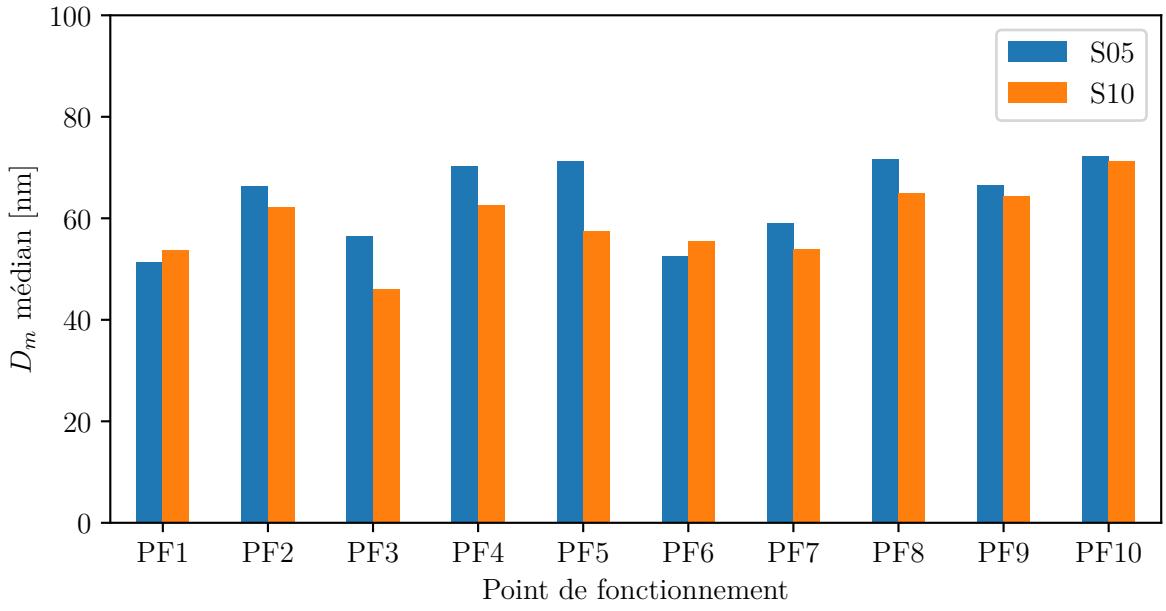

FIGURE 7.23 – Diamètres de mobilité électrique médians mesurés dans la chambre de combustion

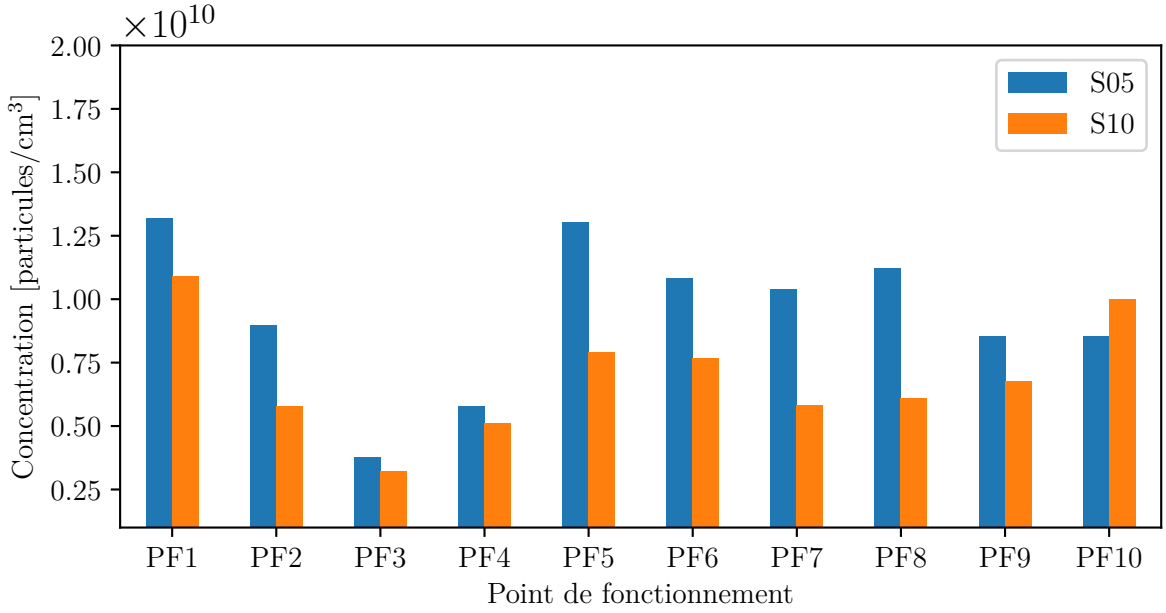

FIGURE 7.24 – Densités de particules par unité de volume mesurées dans la chambre de combustion

7.6 Résultats : point de référence

7.6.1 Aérodynamique de flamme

Le champ aérodynamique moyen mesuré par PIV est illustré sur la figure 7.25 a). La flamme produite par le système d'injection S10 correspond à une flamme swirlée typique, comprenant deux jets de gaz frais séparant les zones de recirculation externes (ORZ) et interne (IRZ). La vitesse des jets de gaz frais mesurée est de l'ordre de 25 m/s, et induisent des zones de cisaillement interne et externe de l'ordre de 2500 s^{-1} (figure 7.25 b.). L'écoulement observé sur ce régime de fonctionnement est principalement axial, avec un angle d'ouverture de la flamme de 30°. En conséquence, l'IRZ observée sur cette flamme est particulièrement compacte, et a pour dimensions $3D$ (D étant le diamètre caractéristique du système d'injection). Contrairement à ce qui a pu être observé sur la flamme SIRIUS à 4 bar, l'écoulement aval ne remonte pas au travers de l'IRZ. Au contraire, l'écoulement situé le long de l'axe de sortie de l'injecteur, et en aval de l'IRZ, évolue axialement à des vitesses très faibles ($\sim$ 1 m/s).

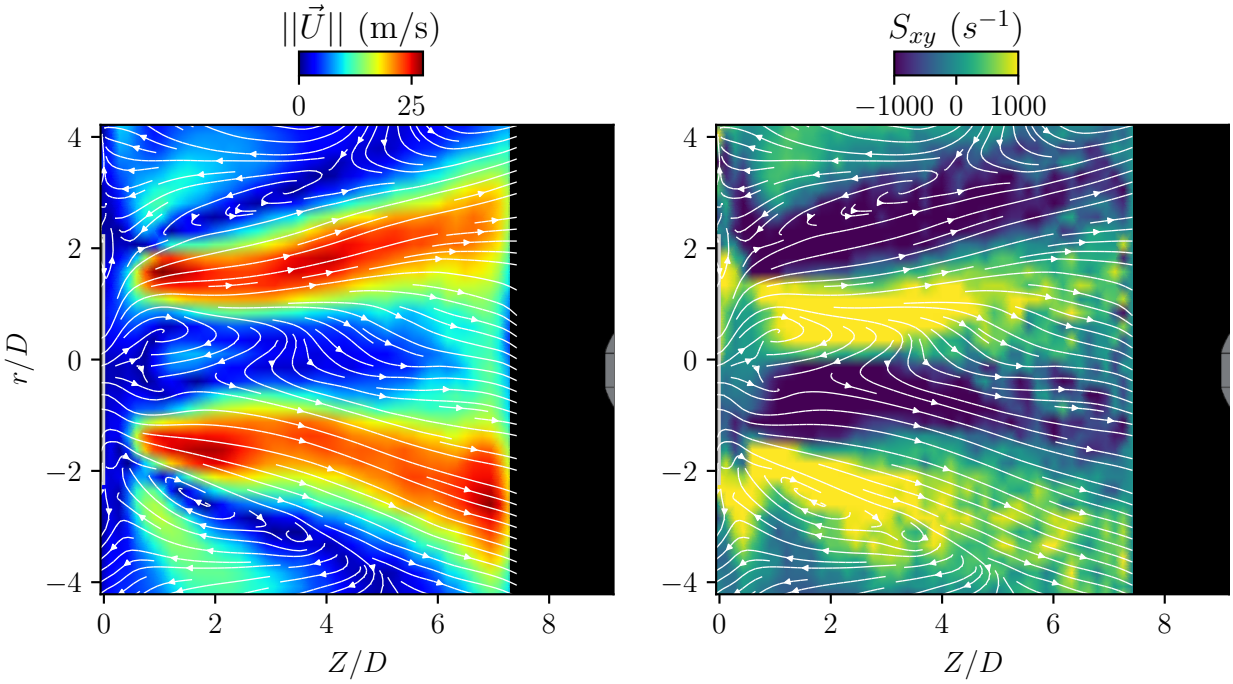

FIGURE 7.25 – Aérodynamique de flamme mesurée par PIV sur l'injecteur S10 au régime de fonctionnement PF2 : a) lignes de courant moyennes, b) Taux de cisaillement moyen

7.6.2 Distribution spatiale de kérosène

Les signaux de fluorescence du kérosène mesurés observent de très fortes disparités d'intensité (figure 7.26 a.). Cette évolution est due à la forte présence de kérosène liquide dans la chambre, dont la densité (et donc le niveau de fluorescence) est supérieure à celle émise par le kérosène en phase gazeuse (de l'ordre de 2 à 3 ordres de grandeur). Le signal reporté sur la figure 7.26 montre alors les zones de présence de kérosène liquide. Les zones de vapeur de kérosène vapeur sont alors délimitées dans les zones sombres réparties entre les signaux de kérosène liquide et les lignes de contours blanches (figure 7.26 a.), révélant les limites spatiales de détection du kérosène en phase vapeur dans la chambre de combustion. À la lumière de ces images, il est alors constaté que la distribution de kérosène de liquide et de vapeur pénètre profondément dans la chambre de combustion. Des

paquets de gouttes macroscopiques atteignent des distances axiales de l'ordre de $6D$, signe d'une mauvaise atomisation et d'évaporation du kérosène liquide dans la chambre de combustion. Comme l'illustre la figure 7.26 b), la distribution moyenne de kérosène suit une configuration en « C », le kérosène subsistant à des grandes valeurs de Z/D étant transporté par les deux jets évoluant à 25 m/s.

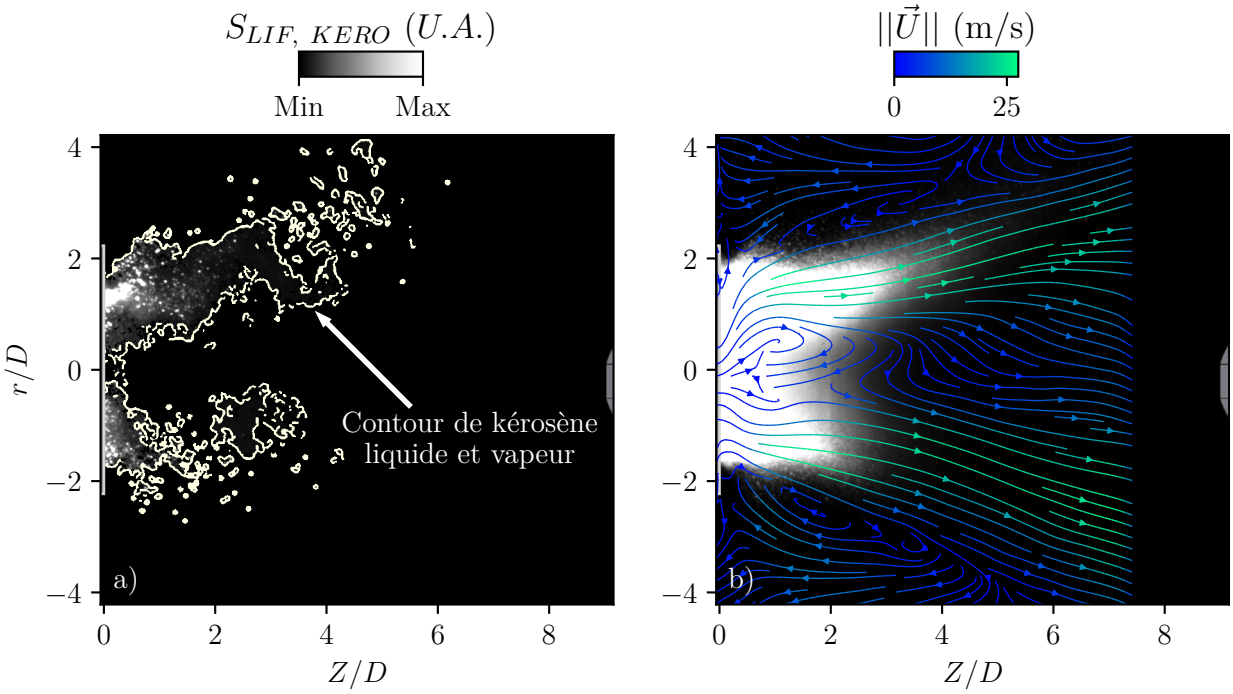

FIGURE 7.26 – Distribution spatiale de kérosène liquide et vapeur mesurée (S10, PF2) : a) distribution instantanée seule, b) distribution moyenne associée au champ aérodynamique moyen

7.6.3 Structure de flamme

La structure de flamme est illustrée sur la figure 7.27 a) par la distribution du signal de fluorescence du radical OH. La distribution décrit une forme en V caractéristique d'une flamme swirlée, et présente un gradient d'intensité situé à la frontière entre le jet de gaz frais et l'ORZ (figure 7.27 b), signe de la présence d'un front de flamme. Cette observation est confirmée par la corrélation des images de PLIF-OH et de PLIF-kérosène (7.27 c.), qui montre que le contour du front de flamme est localisé aux abords de la zone de présence du mélange kérosène/air. Une partie du radical OH fraîchement formé par la réaction de combustion se retrouve piégée dans l'ORZ. Contrairement à la flamme générée par le brûleur SIRIUS à 4 bar (voir chapitre 6), aucune présence de radical OH n'est identifiée le long de l'axe du brûleur. En d'autres termes, aucune réaction de combustion n'a lieu dans cette zone, et aucun gaz brûlé avec présence de OH n'est transporté au centre de l'écoulement (du moins au niveau du boitier de visualisation). Cette observation est à mettre en perspective avec les mesures de PIV, qui montrent que l'écoulement en aval de l'IRZ est orienté vers la sortie de la chambre de combustion (du moins dans le bloc de visualisation). À cette étape de l'analyse, les mesures couplées de PLIF-OH, de PLIF-kérosène et de PIV suggèrent que la zone centrale de l'écoulement correspond à la présence de kérosène vapeur ou de produits imbrûlés provenant de la décomposition thermique du carburant, créant de nouveaux composés chimiques non détectables par le diagnostic de PLIF-OH. Cette conjecture est confirmée par les mesures couplées avec la technique LII présentées sur la figure 7.29.

Il est à noter que la présence de kérosène en phases liquide et vapeur et en grande quantité dans la chambre, ainsi que la production de particules de suie avec une fraction volumique élevée (figure 7.29), a pour effet d'absorber la nappe laser le long de sa traversée dans la chambre de combustion. Ainsi, le signal de fluorescence de OH détecté sur la partie inférieure de la chambre s'en retrouve grandement atténué. C'est pourquoi celui-ci est représenté à l'échelle logarithmique.

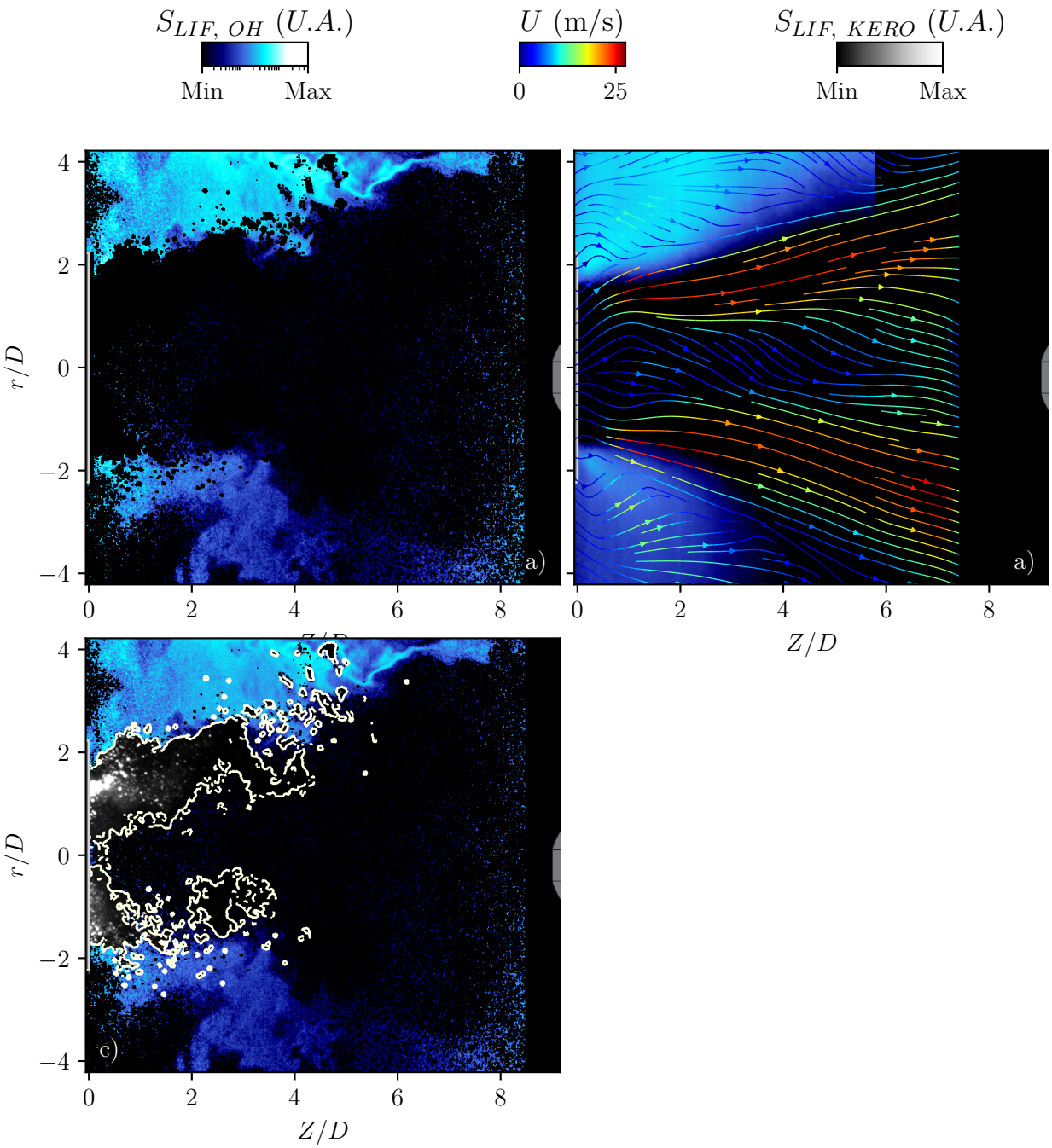

FIGURE 7.27 – Distribution spatiale du radical OH révélant la topologie de flamme (S10, PF2) : a) distribution instantanée, b) distribution moyenne associée au champ aérodynamique, c) distribution instantanée couplée à la distribution spatiale de kérosène

7.6.4 Distribution spatiale de monoxyde d'azote

Le signal de fluorescence de monoxyde d'azote montre une présence de NO dans l'ORZ supérieure. De par la forte richesse de la flamme, les concentrations de NO relevées sont de l'ordre de 100 à 200 ppm. Il s'agit de valeurs extrêmement faibles qui confirment la performance des systèmes d'injection RQL en tant que stratégie de combustion bas-NOx. La corrélation avec les signaux de PLIF-OH révèle qu'il s'agit du NO formé par la voie thermique aux abords du front de flamme, dont une partie se retrouve ensuite piégée dans l'ORZ (figure 7.28 c.).

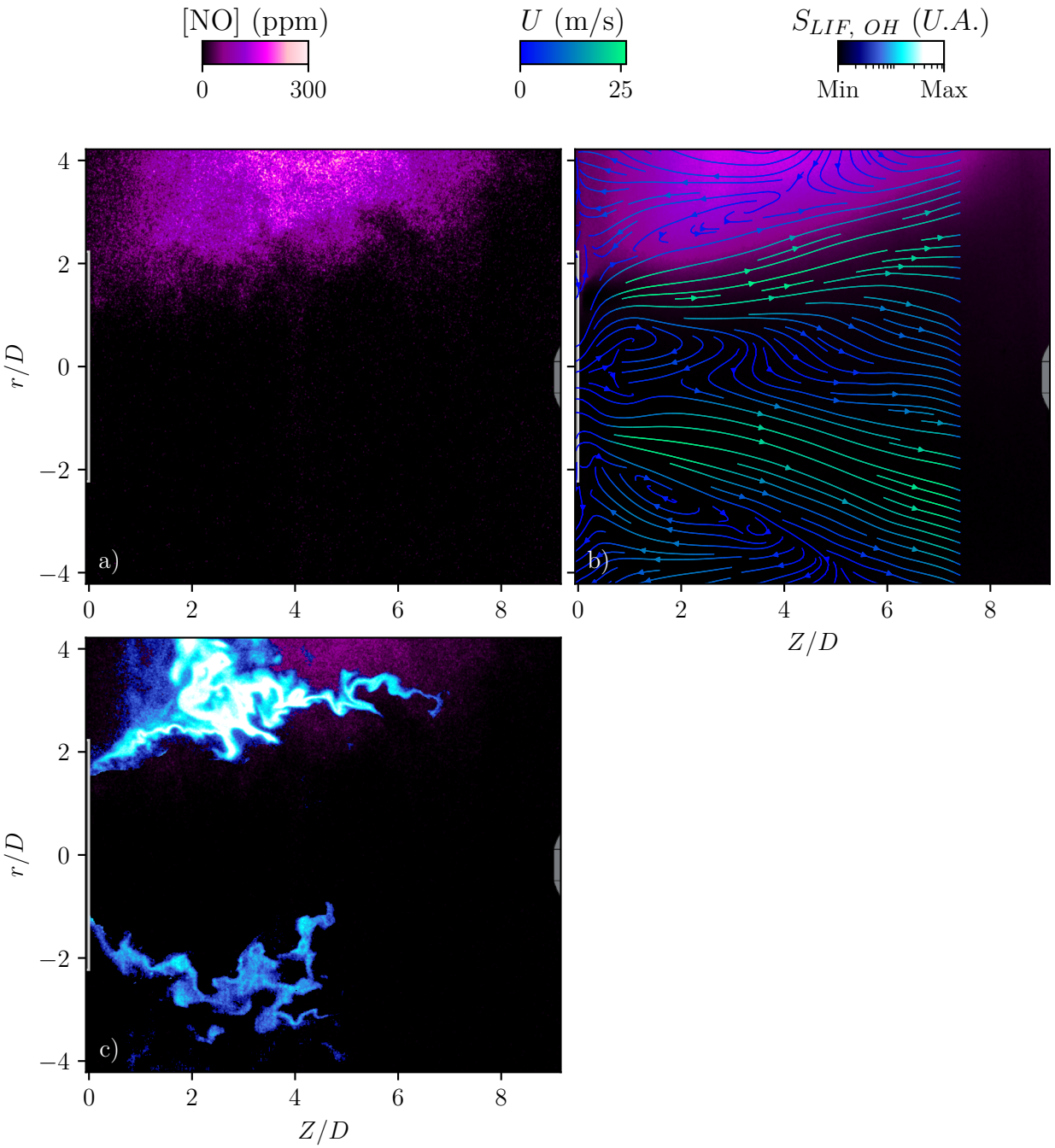

FIGURE 7.28 – Distribution spatiale de NO (S10, PF2) : a) PLIF-NO seule, b) PLIF-NO moyenne + champ aérodynamique moyen, c) PLIF-NO + PLIF-OH

De la même manière, aucun signal de NO n'est détecté le long de l'axe de sortie du brûleur, ce qui confirme les observations précédentes. À ce titre, les résultats obtenus avec les diagnostics optiques de PLIF-OH, de PLIF-NO et de PIV sont concordants. De toute évidence, du NO thermique est également formé dans l'ORZ inférieure. Cependant, celui-ci n'est pas détecté, pour les mêmes raisons qui incombent à la forte atténuation du faisceau laser lors de sa traversée dans la chambre de combustion. La nappe laser est alors fortement absorbée, non seulement par le kérosène à l'état vapeur et liquide à proximité de l'injecteur, mais également par la présence de particules de suie en grande quantité comme le soulignera les images de LII représentées sur la figure 7.29. Finalement, les teneurs de NO provenant de l'étalonnage des signaux de fluorescence de NO s'inscrivent avec une valeur maximale de l'ordre de 300 ppm.

La distribution spatiale de fractions volumiques de suie montre une présence massive de particules de suie dans la chambre de combustion, localisée à partir d'une distance axiale $Z = 2D$. La distribution moyenne de la fraction volumique de suie suit un « M » caractéristique qui entoure les jets de gaz frais injectés dans la chambre de combustion (figure 7.29 b.) Le couplage de la LII avec la PLIF-OH (figure 7.29 c.) et la PLIF-kérosène (figure 7.29 d.) montre que les particules de suie sont localisées en aval de la zone de présence du kérosène, et s'intercalent majoritairement entre les deux fronts de flamme délimitant les zones ORZ. On observe toutefois la présence de quelques poches de suie dans l'ORZ, expliquant la forme en « M » de la distribution spatiale moyenne de LII. Ces zones de présence de suie correspondent vraisemblablement à des bouffées de kérosène liquide macroscopiques éjectées du système d'injection à grande vitesse. De par leur inertie, ces gouttes de grande dimension ou ces amas de gouttes ont une trajectoire balistique, ignorant les lignes de courant et traversant le front de flamme. Exposées au radical OH de l'ORZ, les gouttes de kérosène subissent alors des réactions d'oxydation intenses. Si les gouttes sont suffisamment grosses, les températures élevées des gaz brûlés ont alors pour effet de décomposer thermiquement les poches de kérosène pour former rapidement des particules de suie. Le couplage de la LII, de la PLIF-kérosène et de la PLIF-OH (figure 7.29 e.) révèle également sur les images corrélées des zones « noires » positionnées entre les zones de présence de kérosène vapeur, de OH et de suie. Comme évoqué précédemment, ces régions correspondent vraisemblablement à du kérosène décomposé en produits de décomposition et notamment en HAP plus lourds que ceux détectés par LIF sur le kérosène. Rappelons que le diagnostic optique de PLIF-kérosène détecte essentiellement les aromatiques à deux cycles benzéniques (tels que les naphtalènes) de part la longueur d'onde d'excitation utilisée.

7.6.5 Distribution spatiale de particules de suie

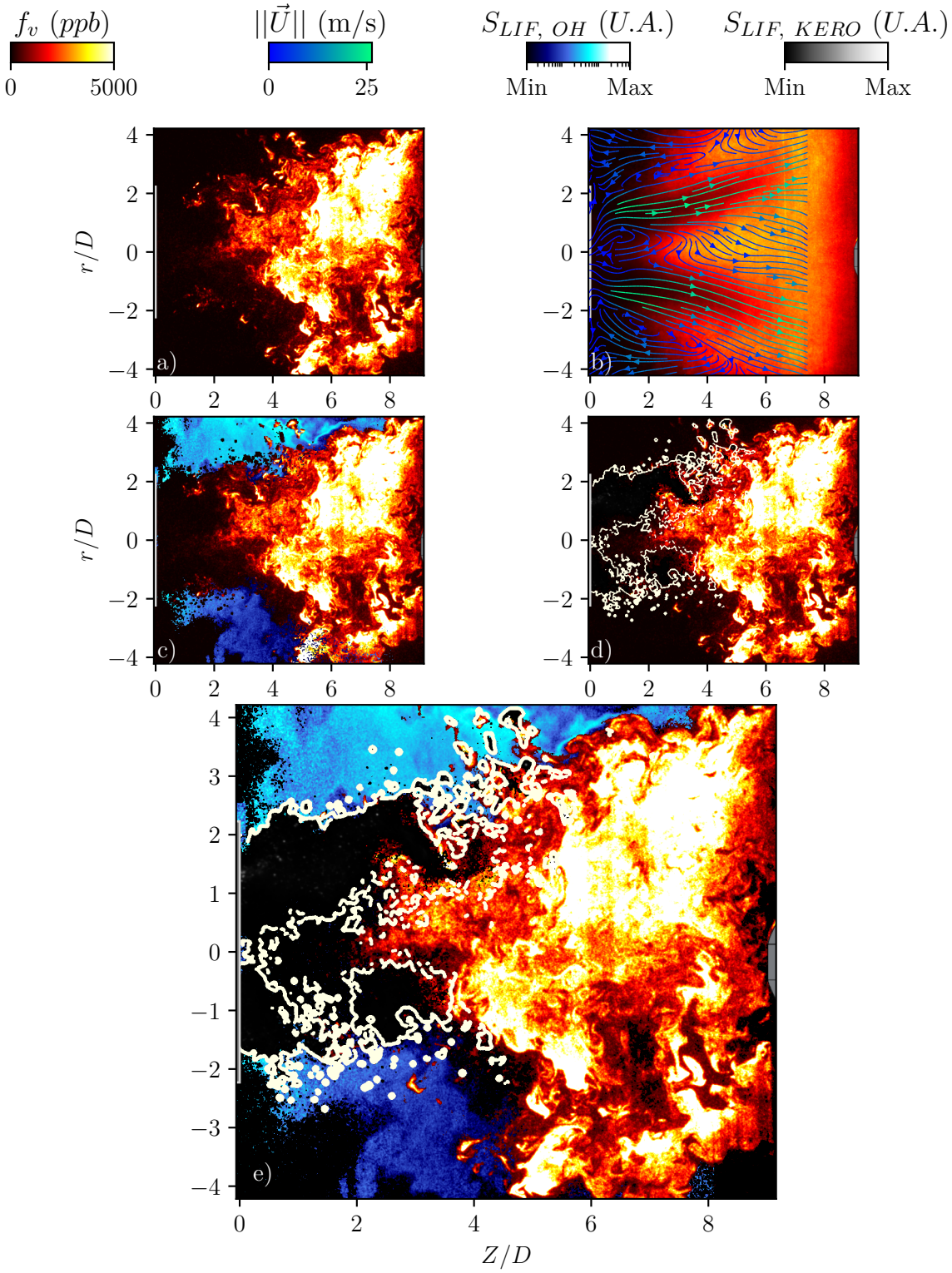

FIGURE 7.29 – Distribution spatiale de fraction de volume mesurée (S10, PF2) a) LII seule, b) LII moyenne + champ aérodynamique moyen, c) LII + PLIF-OH, d) LII + PLIF-kérosène, e) LII + PLIF-OH + PLIF-kérosène

7.7 Résultats : effet du système d'injection

Dans une deuxième partie, le système d'injection de référence S10 est comparé au système d'injection S05, pour le régime de fonctionnement de référence (PF2). Rappelons que l'injecteur S05 se démarque par une ouverture de bol plus grande.

Cette différence de conception se traduit sur le champ aérodynamique de flamme par un écoulement plus ouvert à proximité du système d'injection (figure 7.30 b.). De fait, la dimension de l'IRZ s'en retrouve également augmentée. Alors que les jets de mélange kérosène/air sortent du S10 avec une vitesse quasi-constante de 25 m/s, les jets issus du S05 contournent l'IRZ avec une vitesse légèrement supérieure, de l'ordre de 30 m/s. En revanche, la présence de cette IRZ intense a pour effet de « piéger » une partie du mélange kérosène/air, atténuant l'inertie des jets. La vitesse de ces derniers passe alors de 30 m/s à 15 m/s.

La conception de l'injecteur S10 se différencie également par des vrilles d'air à angle plus élevé, ce qui induit un nombre de swirl de la flamme plus élevée. Bien que le nombre de swirl n'ait pas été mesuré par une mesure de PIV dans le plan radial de l'écoulement, l'augmentation du nombre de swirl sur l'injecteur S10 se traduit par des ORZ de plus grande dimension, et localisées plus proches de la sortie du système d'injection. Celles-ci sont également plus actives, avec des vitesses locales à proximité du système d'injection plus élevées (jusqu'à $\sim$ 5-10 m/s contre $\sim$ 1 m/s). Enfin, le nombre de swirl renforcé du S10 se caractérise par des vitesses plus faibles loin du système d'injection : 1-5 m/s contre 5-10 m/s pour le S05. Par conservation du mouvement cinétique, la rotation de l'écoulement induit une dépression dans cette zone. Celle-ci a pour effet d'atténuer les vitesses axiales des gaz, voire aspirer les gaz provenant de l'aval si la dépression est suffisamment importante, phénomène notamment observé sur la flamme SIRIUS.

La plus grande ouverture de bol caractéristique du système d'injection S05 traduit une distribution spatiale de kérosène plus évasée (figure 7.31 2b.). La distribution de kérosène observé par le diagnostic optique suit les lignes de courants relevées par le diagnostic de PIV. Tout comme pour le système d'injection de référence, la distribution spatiale de kérosène sur l'injecteur S05 se caractérise par de fortes variations d'intensité lumineuse, en raison de la présence de nombreuses gouttes de kérosène dans la chambre de combustion.

La modification de l'aérodynamique et de la distribution spatiale de kérosène modifie légèrement la topologie de flamme, qui s'assimile à un contour de front de flamme moyen longeant le bulbe de kérosène liquide et vapeur de l'IRZ (figure 7.31 2b.). Hormis cette particularité, les systèmes d'injection S10 et S05 observent des distributions de OH équivalentes, réparties spatialement dans les ORZ. Comme observé précédemment sur l'injecteur S10, les niveaux de fluorescence de OH relevés dans l'ORZ inférieure sont grandement atténués en raison de la présence de kérosène (liquide et vapeur) et de suie dans l'écoulement qui absorbent la nappe laser. Miroir de la distribution de OH, les distributions spatiales de monoxyde d'azote mesurés sur les injecteurs S05 et S10 présentent les mêmes caractéristiques : une inflexion plus marquée sur le S05 à proximité de l'IRZ, ainsi que la présence de NO dans l'ORZ supérieure. De la même manière que pour le diagnostic de PLIF-OH, la nappe laser dédiée au dosage de NO subit une forte absorption, rendant impossible la détection de fluorescence dans l'ORZ inférieure. Enfin, on observe que les concentrations de NO mesurées dans l'ORZ sur les injecteurs S05 et S10 sont équivalentes. Ce résultat est cohérent avec les mesures de NO réalisées à la sortie de la chambre de combustion, qui n'avait pas montré de différence significative entre les deux systèmes d'injection.

A l'instar du monoxyde d'azote, les distributions spatiales moyennes de suie observées sur les deux systèmes d'injection présentent des caractéristiques très similaires, tant au niveau des images instantanées que moyennées (figure 7.34). Une fois encore, la distribution spatiale moyenne de suie sur l'injecteur S05 décrit un « M » caractéristique formé par le jet de mélange kérosène/air

frais. Toutefois, la distribution moyenne de suie produite par le S05 se distingue par de subtils détails. D'un point de vue macroscopique, la distribution spatiale présente tout d'abord des arches légèrement plus courtes, et les niveaux de f_v dans les ORZ sont très légèrement inférieurs en comparaison avec la flamme issue de l'injecteur S10.
Ces différences peuvent s'expliquer par analyse de la corrélation des images de suie avec les mesures de PIV, qui montrent que le temps de résidence du mélange air/carburant frais est plus faible avec le système d'injection S05. En conséquence, la distance parcourue par le kérosène est plus importante avant que celui-ci ne commence à se décomposer chimiquement en HAP pour former des particules de suie. Bien que le champ aérodynamique soit visualisé uniquement jusqu'à $Z = 7,5D$, on peut présumer que les gaz brûlés en aval suivent la même tendance. Par ailleurs, on observe que la distribution spatiale de suie sur l'injecteur S05 est globalement décalée axialement vers de plus grandes valeurs de Z en comparaison de celui observé avec l'injecteur S10. En effet, les niveaux de fraction volumique de suie sur S10 (figure 7.34 1b.) commencent à diminuer à partir de $Z = 8D$, ce qui n'est pas observé sur l'injecteur S05 (figure 7.34 2b.). En l'occurrence, il ne s'agit pas d'un biais de mesure (typiquement causée par une atténuation de l'intensité lumineuse aux bords de la nappe laser), mais bien d'une diminution physique de la fraction de volume locale de suie. Cette atténuation du signal de LII semble également indiquer un phénomène d'oxydation des particules de suie opérant dans cette région. Il s'agit d'une hypothèse plausible dans la mesure où le nombre de swirl est plus important sur ce système d'injection, favorisant la recirculation des gaz en aval de l'écoulement. Pour résumer, le système d'injection S10 se caractérise par une production de suie plus élevée dans la zone primaire de réaction. Néanmoins, l'atténuation du signal LII suggère une oxydation des particules de suie intervenant très rapidement dans la zone de réaction. Par l'absence d'informations sur l'oxydation des particules de suie plus en aval dans la chambre de combustion, il reste difficile d'affirmer que le système d'injection S10 est plus ou moins performant que le S05 en matière de production de suie.

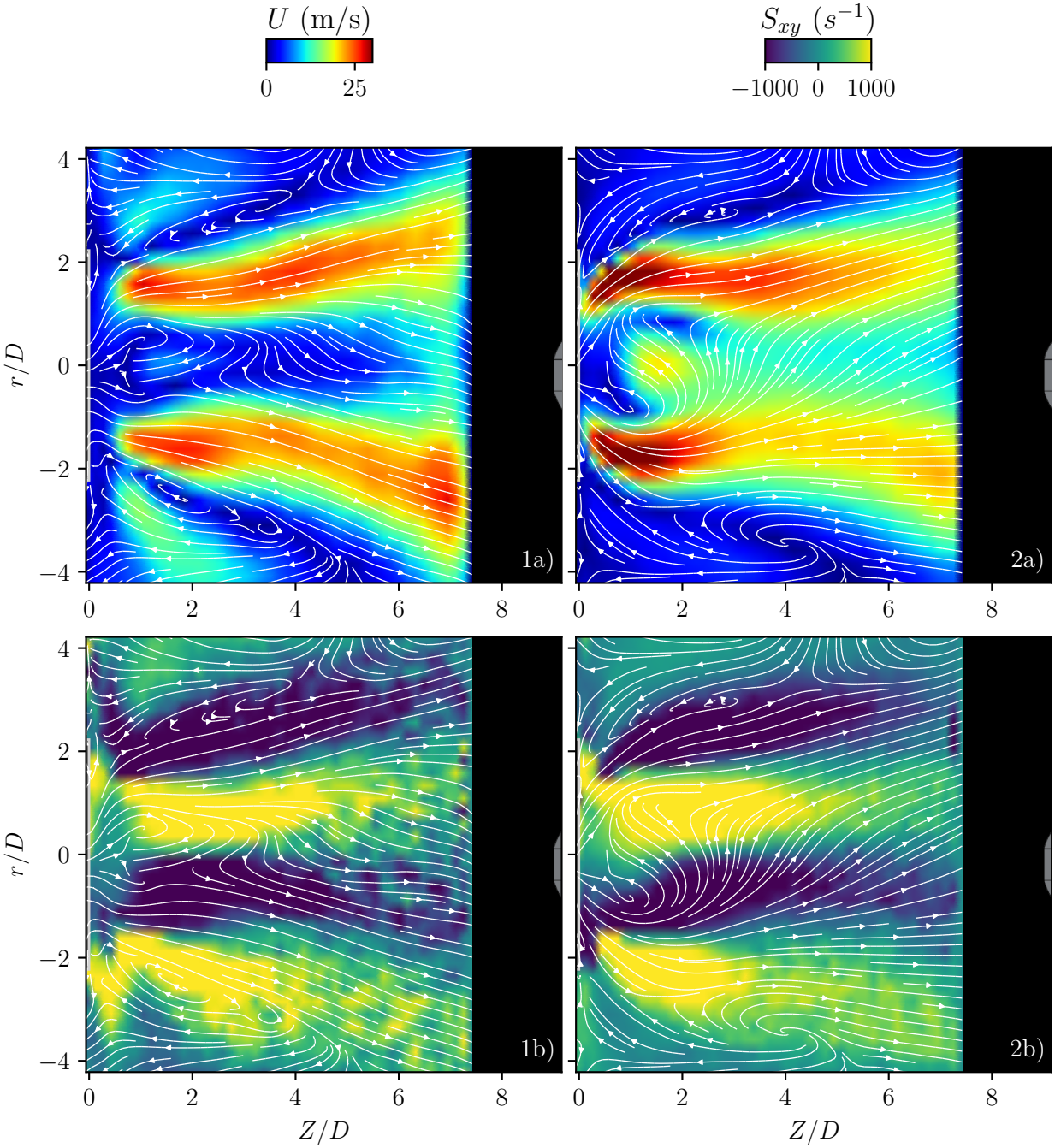

FIGURE 7.30 – Effet du système d'injection sur l'aérodynamique de flamme : 1) S10, 2) S05, a) lignes de courant moyennes, b) Taux de cisaillement moyen

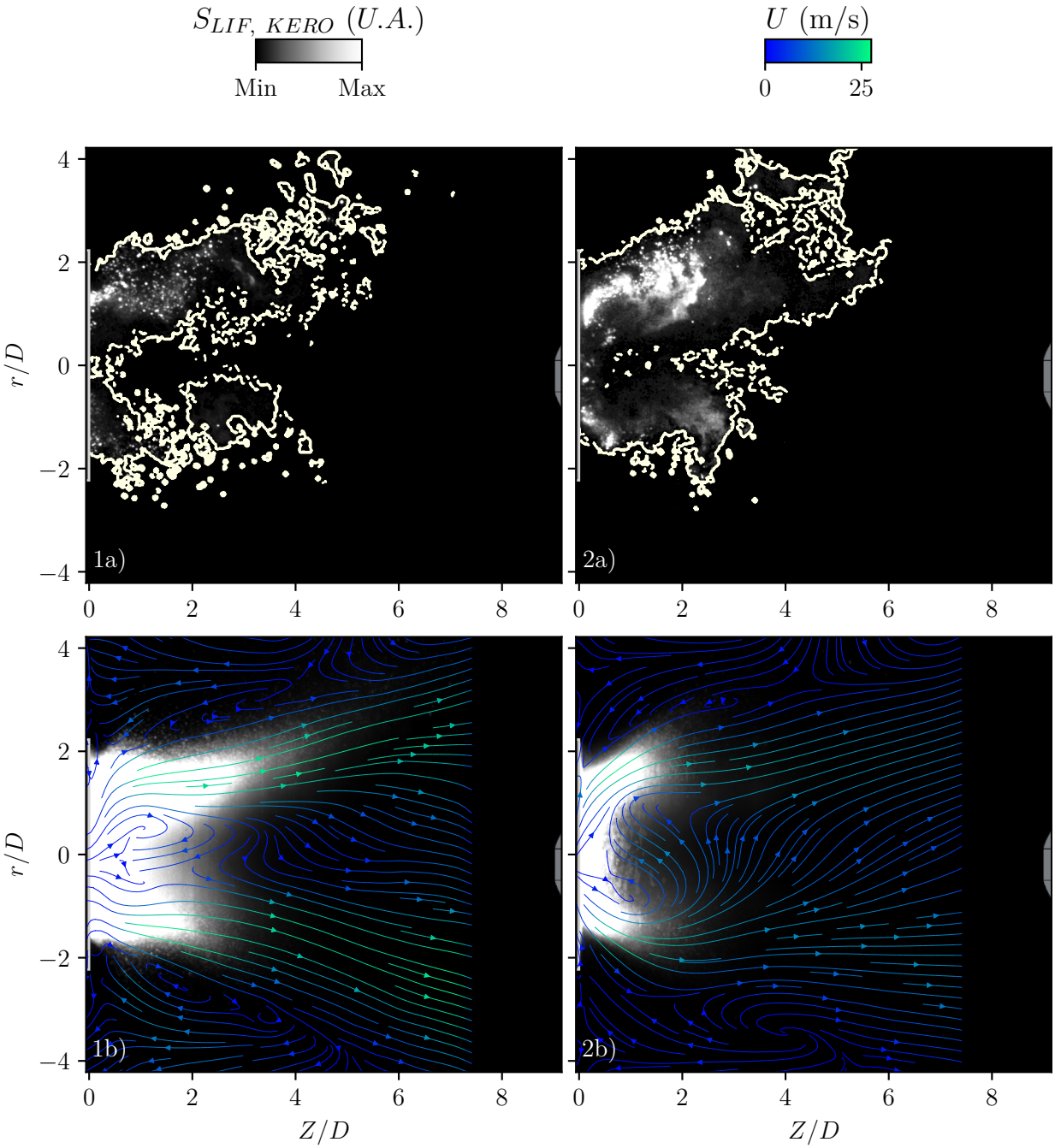

FIGURE 7.31 – Effet du système d'injection sur la distribution de kérosène dans la chambre : 1) S10, 2) S05, a) distribution instantanée de kérosène, b) distribution moyenne associée à l'aérodynamique de flamme

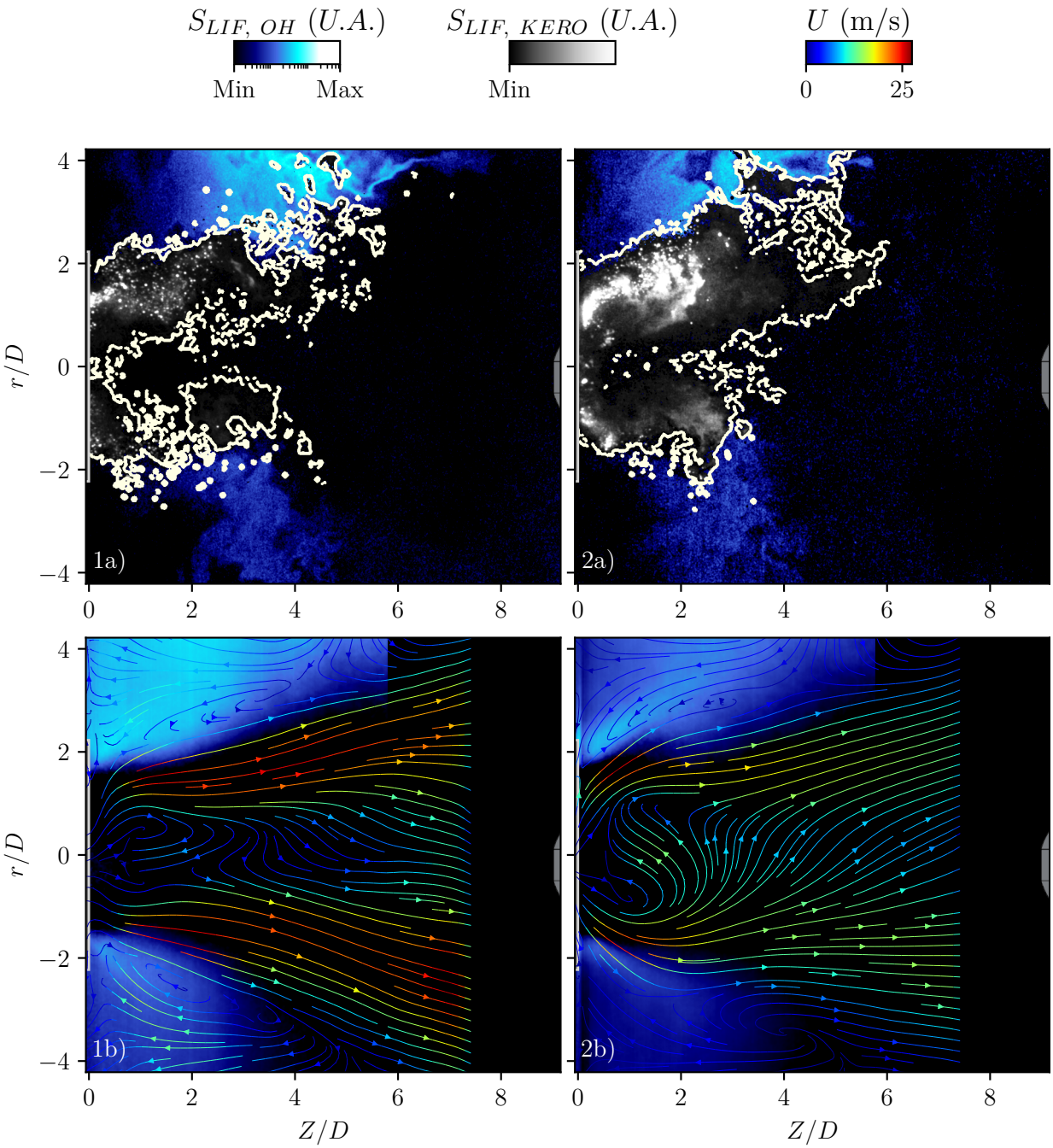

FIGURE 7.32 – Effet du système d'injection sur la topologie de flamme : 1) S10, 2) S05, a) distribution instantanée de OH associée à la distribution spatiale de kérosène, b) Distribution moyenne associée à l'aérodynamique de flamme

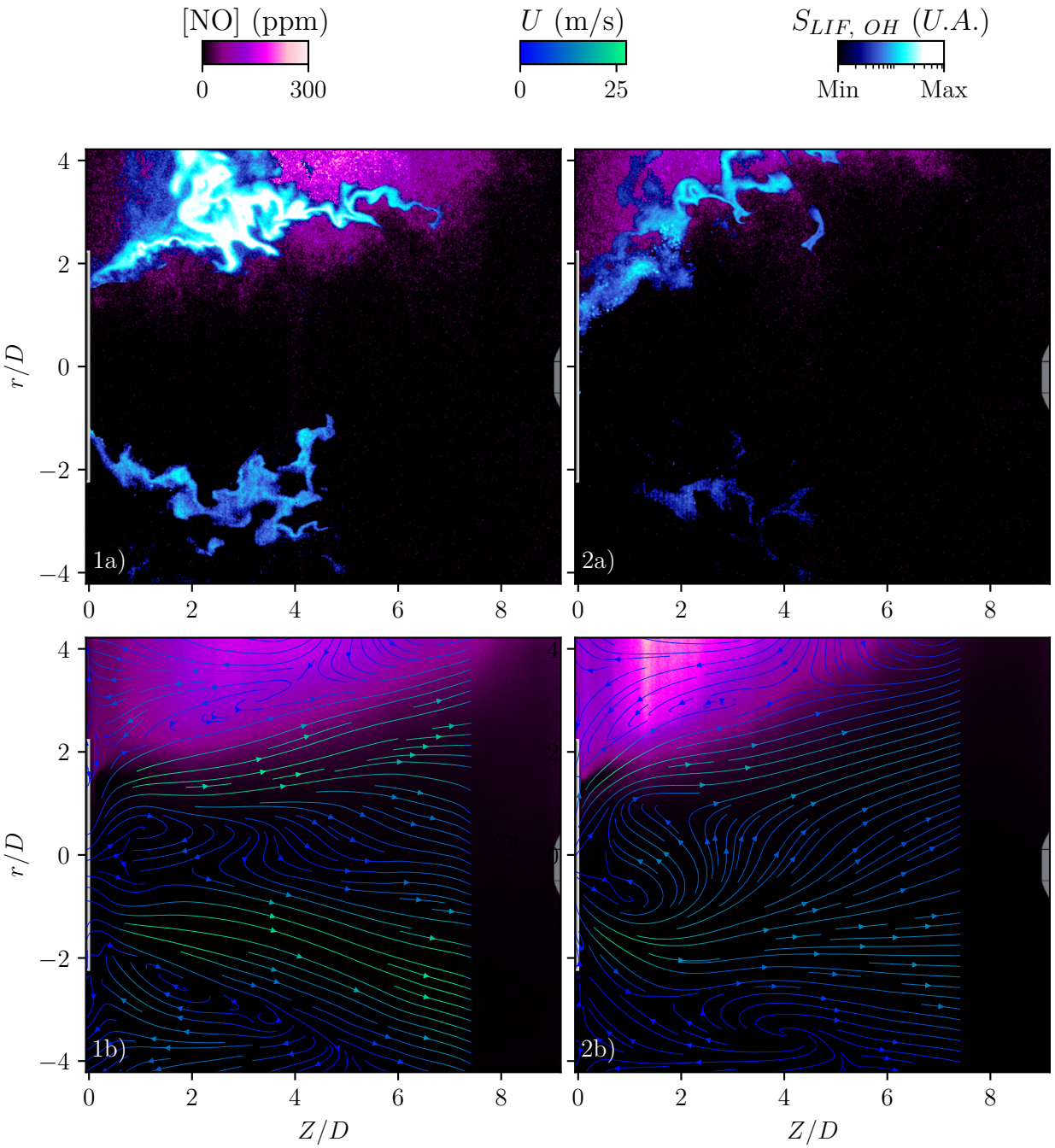

FIGURE 7.33 – Effet du système d'injection sur la production de NO. 1) S10, 2) S05. a) Distribution spatiales instantanées de NO et de OH, b) distribution spatiale de NO moyenne associée au champ aérodynamique moyen

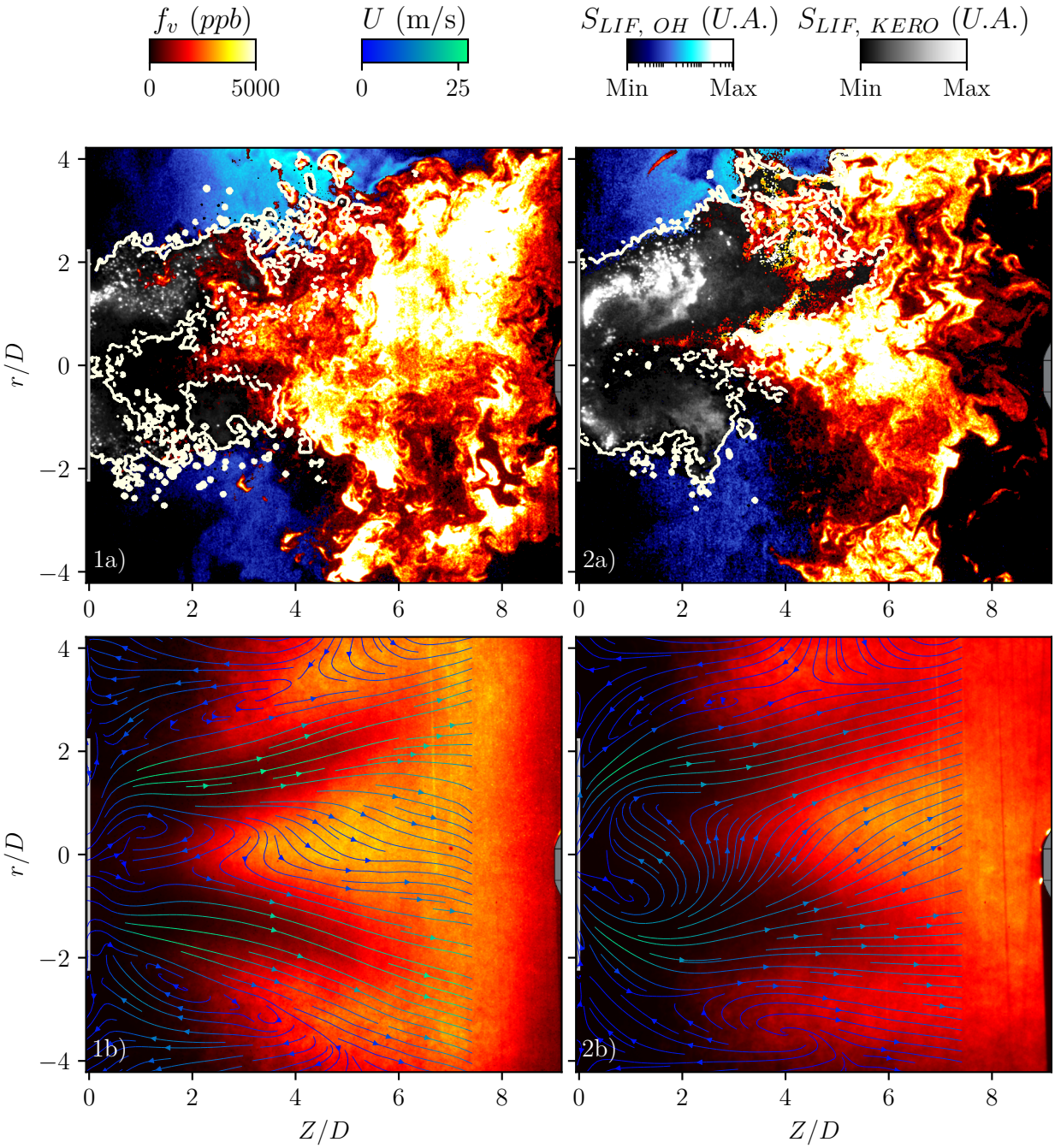

FIGURE 7.34 – Effet du système d'injection sur la production de suie. 1) S10, 2) S05. a) Distribution spatiales instantanées de f_v et de OH, b) distribution spatiale de f_v moyenne associée au champ aérodynamique moyen

7.8 Résultats : effet de la richesse injectée

Dans un second temps, le point d'opération de référence (PF2) est comparé au point PF3. Ce régime de fonctionnement se démarque par un rapport kérosène/air de 119 ($\Phi = 1,8$), contre 169 ($\Phi = 2,56$) pour le PF2.

Les champs de vitesse mesurés par PIV ne présentent pas de différence macroscopique majeure (figure 7.35). L'IRZ et les ORZ ont des dimensions similaires. De même, l'angle et la trajectoire des jets de gaz frais reste identique. On peut néanmoins noter que la vitesse des jets pour la condition PF3 est plus élevée : de l'ordre de 30 m/s, contre 25 m/s environ pour la condition PF2. Cette différence peut s'expliquer par le fait que le mélange kérosène/air à PF3 est plus pauvre. En se rapprochant de la stœchiométrie, la température de combustion devient plus élevée, entrainant de fait une plus forte dilatation des gaz brûlés.

En raison d'une richesse du mélange plus faible, la distribution moyenne en kérosène vapeur pour le régime de fonctionnement PF3 décrit deux régions légèrement plus étroites que pour le PF2 (figures 7.36 1b. et 2b.). De plus, ces zones sont légèrement plus allongées. L'augmentation de la vitesse des jets a pour effet d'entraîner de manière plus efficace les gouttes de kérosène dans la chambre de combustion.

La diminution de la richesse injectée entraîne une modification plus radicale de la topologie de flamme (figure 7.37). Alors que le contour moyen du front de flamme reste stable et localisé autour des jets de mélange kérosène/air débitant à plus de 25 m/s, on commence à voir apparaître des gradients de fluorescence de OH en aval des jets de carburant, signe de la présence de fronts de flamme (figure 7.37 2a.) qui n'avaient pas alors été visualisés pour la condition PF2. Enfin, les images instantanées et moyennées de PLIF-OH révèlent la présence de radical OH non seulement le long de l'axe du système d'injection, mais aussi dans toute l'ORZ inférieure. Cette différence peut s'expliquer par une absorption amoindrie de la nappe laser pour la condition PF3, en raison du plus faible débit de kérosène injecté (de l'ordre de -30%), ainsi que de la plus faible fraction volumique de suie dans la chambre de combustion (figure 7.39).

Le régime de fonctionnement PF3 avait été identifié comme celui où la concentration de NO mesurée en sortie de chambre de combustion était la plus élevée. Cette observation est confirmée par les mesures de distribution spatiale de NO (figure 7.38). De la même manière que pour la condition PF2, les zones de présence de monoxyde d'azote sont fortement corrélées à la présence de radical OH, indiquant la encore que le NO formé dans la chambre de combustion est d'origine thermique. Ainsi, une concentration élevée de NO apparaît dans l'ORZ supérieure, mais également en aval de l'IRZ ($Z = 6D$) zone de présence de fronts de flamme (figure 7.38 2a.). D'ailleurs, la distribution spatiale instantanée de NO dans cette zone forme des structures cohérentes dont la forme est similaire à celles décrites par le radical OH. On remarque également que la distribution moyenne de NO (figure 7.38 2b.) révèle la présence de monoxyde d'azote dans l'ORZ inférieure, laquelle n'était alors pas observée sur le PF2. Cette détection peut s'expliquer de deux manières. Le taux de production de monoxyde d'azote étant supérieur sur le PF3, le rapport signal à bruit de la PLIF-NO commence à devenir suffisamment élevé pour que le seuil de détectivité du signal de LIF-NO soit atteint dans cette région de la chambre de combustion. D'autre part, la plus faible absorption de la nappe laser à 225 nm permet à cette dernière d'interagir avec les molécules de NO avec une plus forte efficacité, favorisant encore une fois la détection de signal de LIF- NO. Néanmoins, il est à noter qu'aucun signal de NO n'est détecté sur une partie de l'ORZ inférieure, à proximité de la sortie du système d'injection ($0 < Z < 2D$). De toute évidence, la présence de kérosène liquide encore en grande quantité perturbe le diagnostic de PLIF-NO en absorbant la majeure partie de la nappe laser.

A l'inverse du monoxyde d'azote, le régime de fonctionnement PF3 avait été identifié comme celui où la densité de particules de suie mesurée par prélèvement et analyse SMPS était la plus faible.

Les mesures de LII viennent confirmer cette tendance. La distribution spatiale de suie au régime de fonctionnement PF3 indique une production de particules de suie nettement diminuée en comparaison avec le point de référence, en particulier au niveau des ORZ inférieure et extérieure. On observe également une atténuation du signal LII à hautes valeurs de Z. Cette diminution est due à la présence de fronts de flamme apparaissant en aval de la zone de production de suie (figure 7.39 2a.). Ce résultat corrobore l'hypothèse émise précédemment sur le PF2, selon laquelle des réactions d'oxydation ont lieu rapidement en aval de la zone de production de suie.

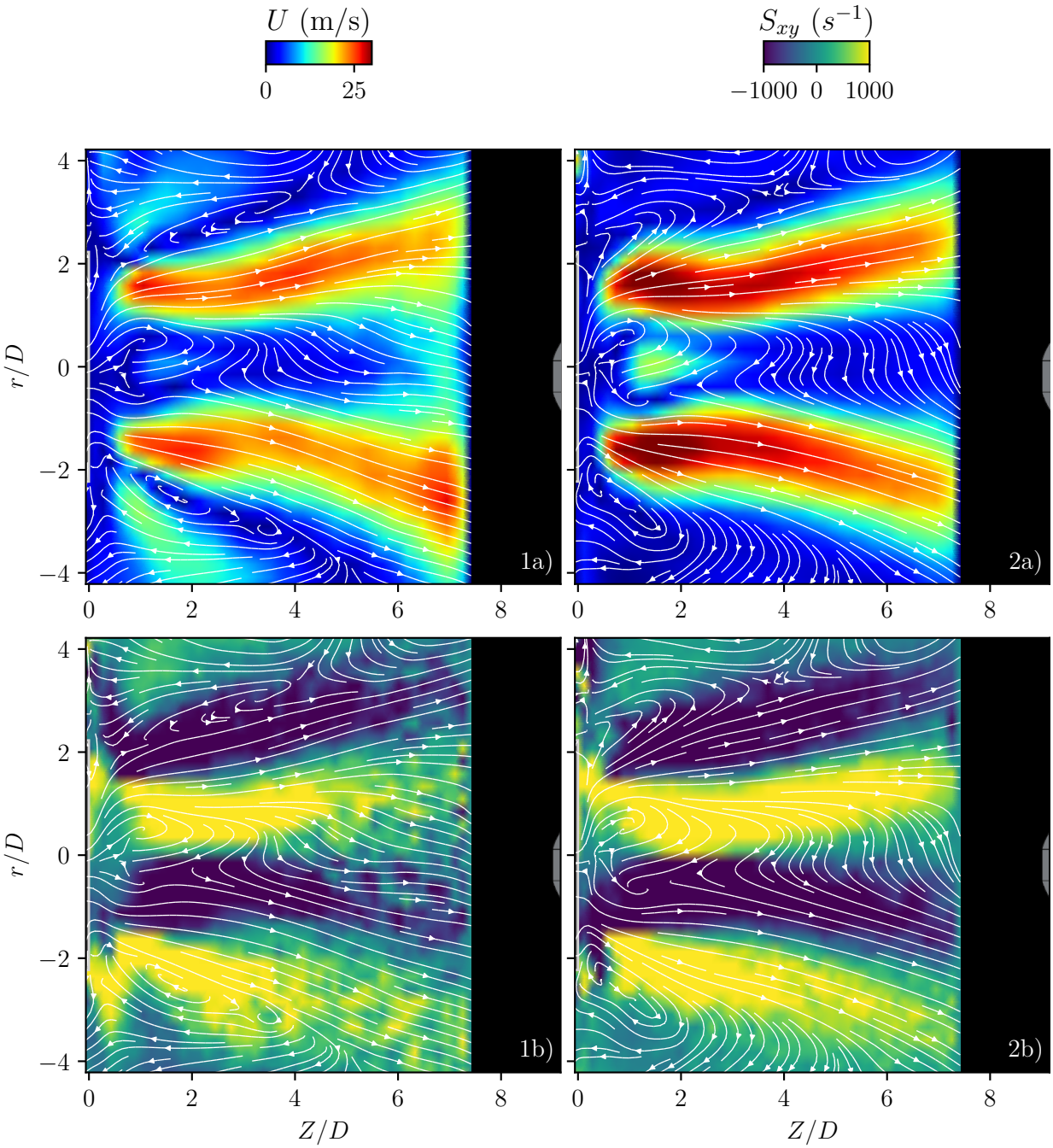

FIGURE 7.35 – Effet de la richesse sur l'aérodynamique de flamme : 1) PF2, 2) PF3, a) lignes de courant moyennes, b) Taux de cisaillement moyen

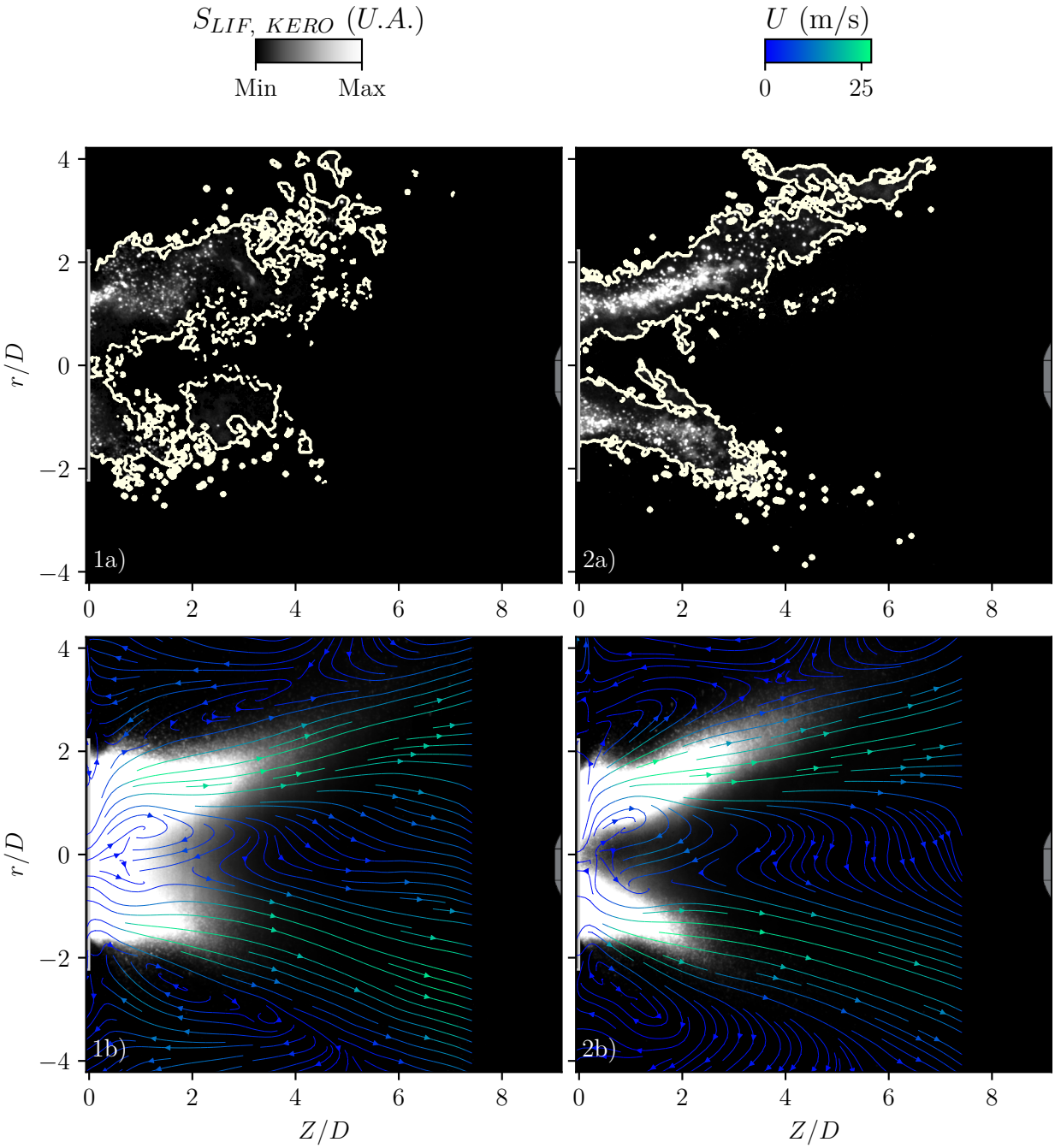

FIGURE 7.36 – Effet de la richesse sur la distribution de kérosène dans la chambre : 1) PF2, 2) PF3, a) distribution instantanée de kérosène. Distribution moyenne associée à l'aérodynamique de flamme

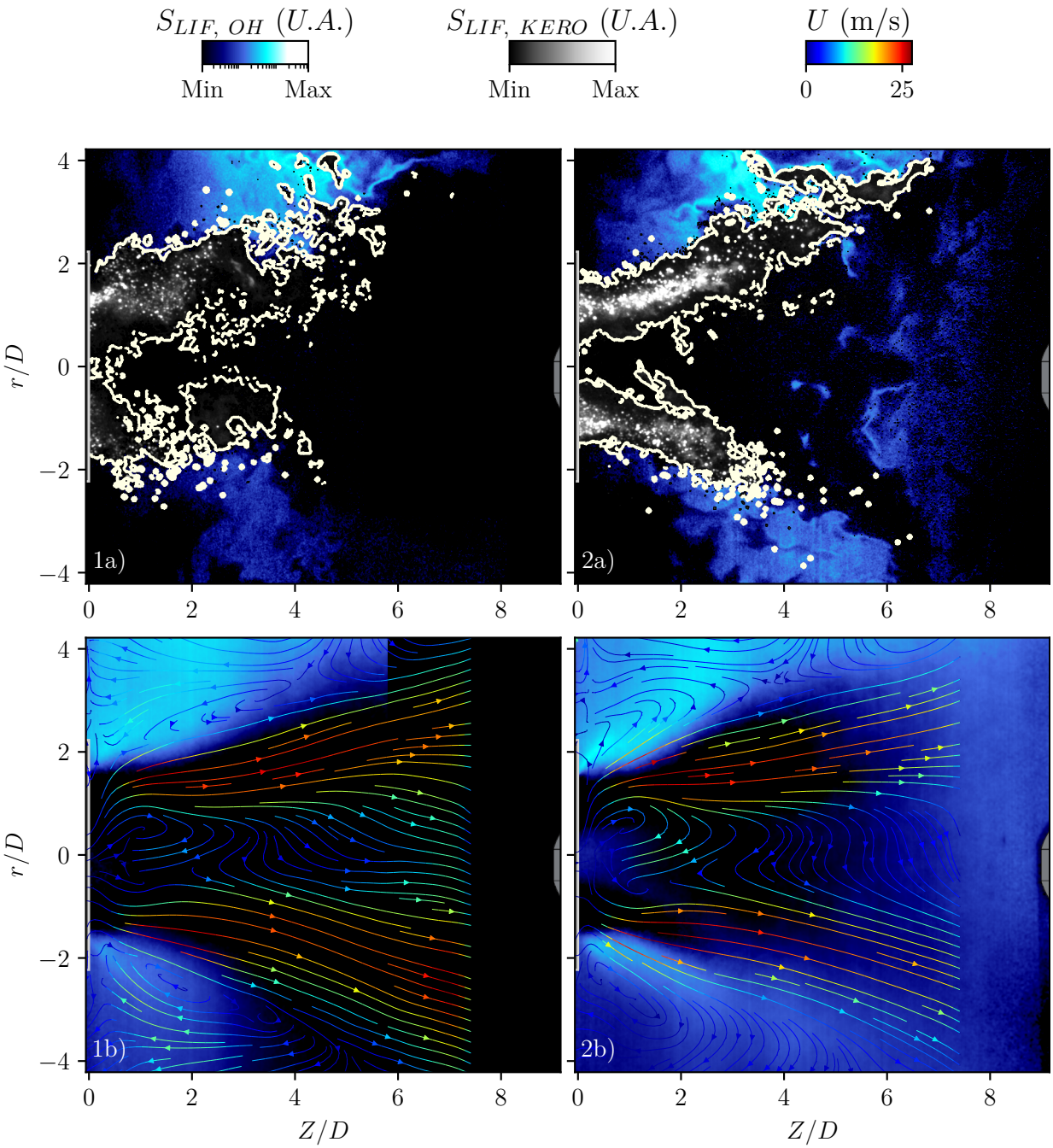

FIGURE 7.37 – Effet de la richesse sur la topologie de flamme : 1) PF2, 2) PF3, a) distribution instantanée de OH associée à la distribution spatiale de kérosène. Distribution moyenne associée à l'aérodynamique de flamme

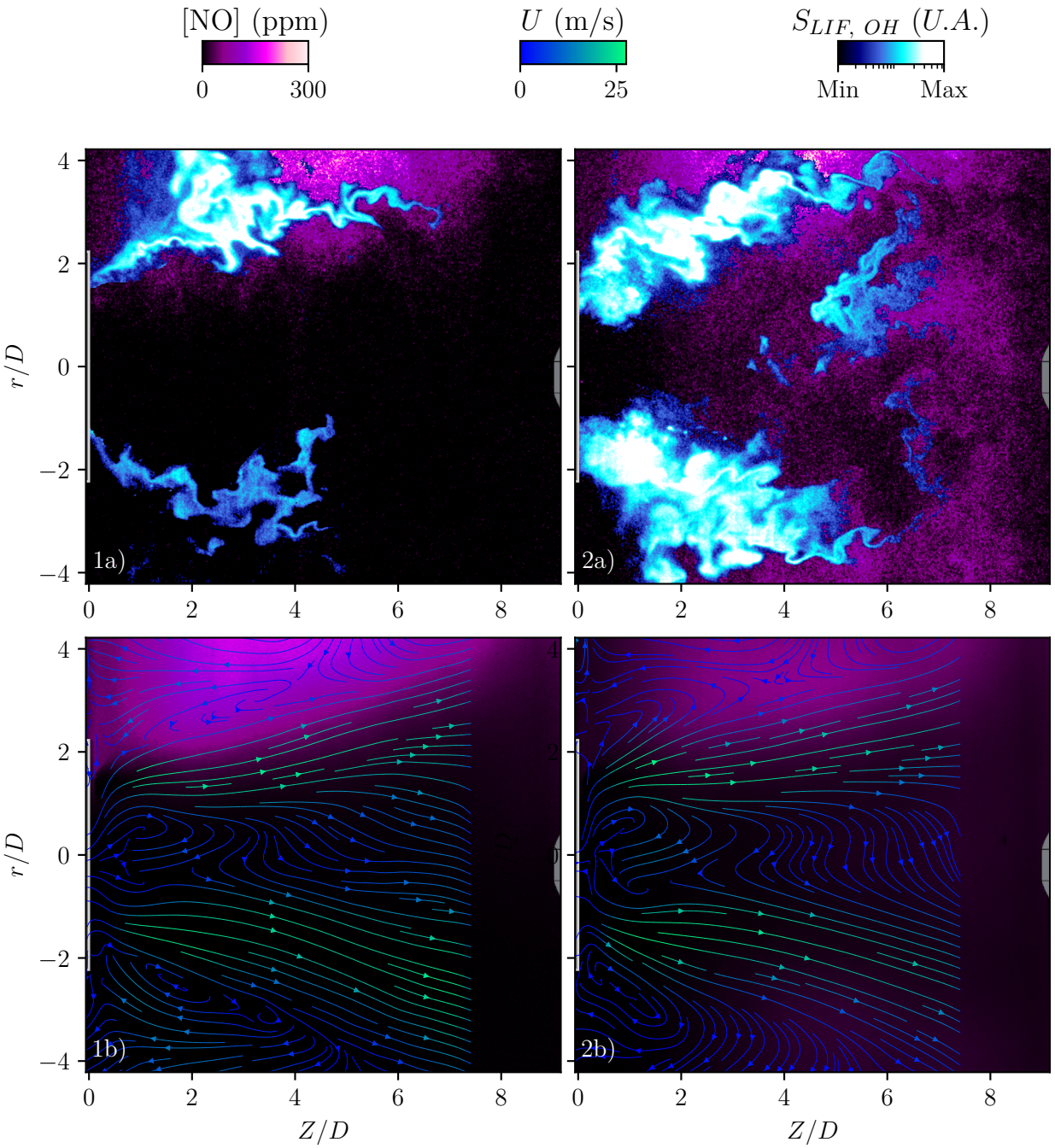

FIGURE 7.38 – Effet de la richesse du mélange injecté sur la production de NO. 1) PF2, 2) PF3. a) Distribution spatiales instantanées de NO et de OH, b) distribution spatiale de NO moyenne associée au champ aérodynamique moyen

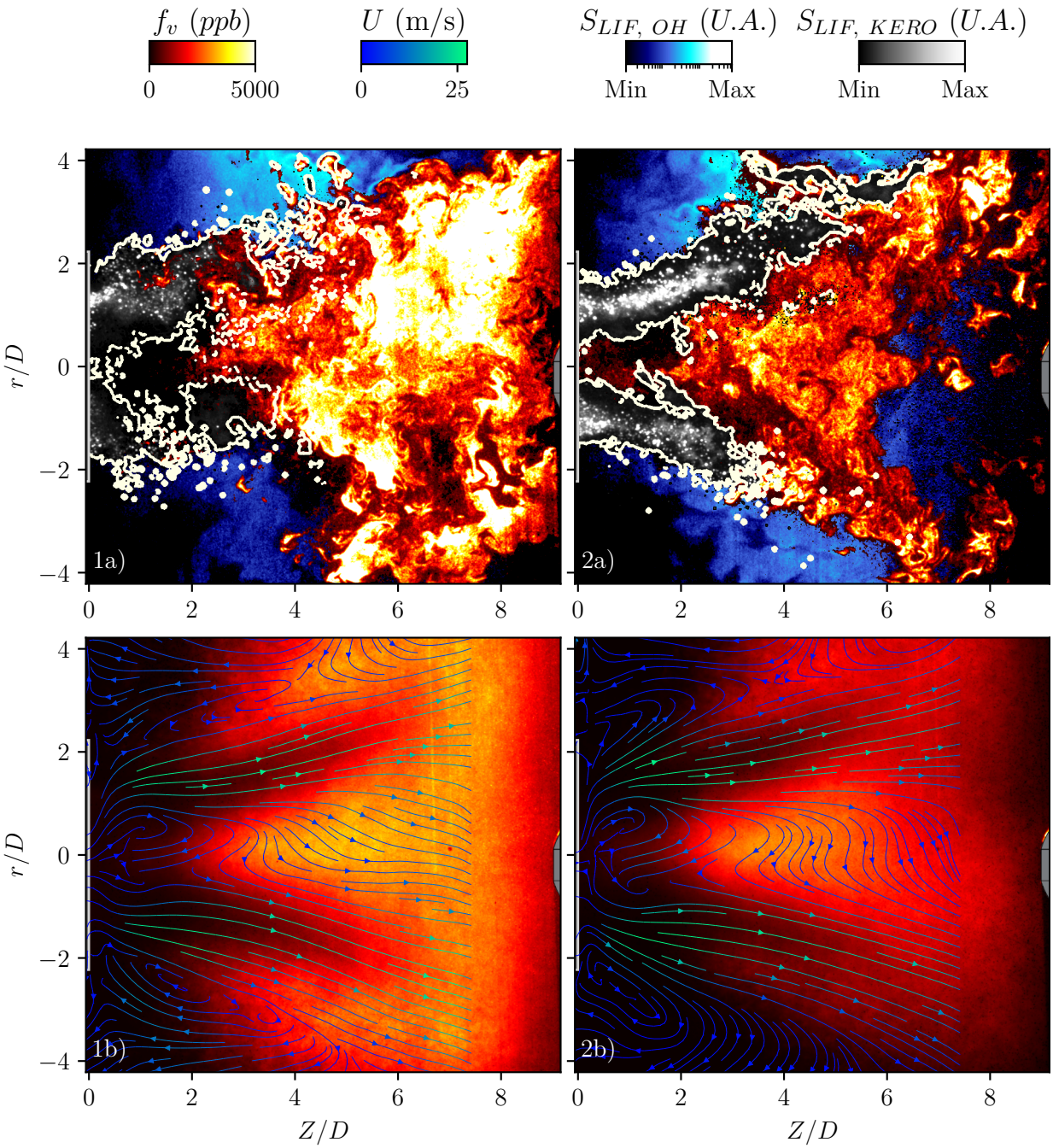

FIGURE 7.39 – Effet de la richesse du mélange injecté sur la production de suie. 1) PF2, 2) PF3. a) Distribution spatiales instantanées de f_v et de OH, b) distribution spatiale de f_v moyenne associée au champ aérodynamique moyen

7.9 Comparaison LII/prélèvement

Le couplage des mesures in- et ex-situ dédiées à l'analyse des particules de suie ouvre la voie à une comparaison entre les différents systèmes de mesure utilisés. Cependant, les deux techniques utilisées dans cette étude (LII et SMPS) ne mesurent pas la même grandeur physique. Néanmoins, la distribution en taille mesurée par le SMPS peut être exploitée pour reconstruire indirectement une fraction volumique totale de la population de suie. Le SMPS TSI 3938 est à même d'estimer cette fraction volumique grâce à un algorithme d'inversion des données reposant sur les travaux de Wang et Flagan [21]. La valeur ainsi obtenue peut alors être comparée à la valeur de fraction volumique moyenne mesurée par LII. Les résultats sont reportés dans la figure 7.40. Les mesures LII et SMPS sont associées aux incertitudes de mesure relatives respectives de 36% et de 20%. La détermination de l'incertitude associée à chaque système de mesure est une tâche ardue, en raison notamment de la complexité des chaînes de mesure. TSI annonce une incertitude relative de 10% sur la concentration mesurée par le SMPS. D'autre part, l'utilisation de deux étages de dilution représentent une source d'incertitude supplémentaire pour l'estimation de la concentration en particules. L'appareil de dilution Dekati FPS 4000 affiche un taux de dilution avec une incertitude de relative 10% (données constructeur). L'estimation de l'incertitude ne tient pas compte du taux de dilution de la sonde de prélèvement, dont le taux de dilution a été déterminé de manière empirique, ni de l'algorithme d'inversion sur lequel repose la mesure de fraction de volume du SMPS.

Les mesures LII s'appuient sur une mesure de fraction de volume effectuée par méthode d'extinction, s'appuyant notamment sur la fonction d'absorption ($\Delta E(m) = 0.05$), la longueur d'interaction avec le milieu ($\Delta L/L = 1\%$), et les mesures d'intensités lumineuses par le spectromètre ($\Delta I/I = 1\%$).

Au regard des incertitudes conséquentes de chaque technique de mesure, une bonne concordance des valeurs de fractions volumiques de suie peut être observée, en particulier pour les mesures au point PF2 réalisées sur les systèmes d'injection S05 et S10. Ces résultats renforcent le degré de confiance accordé à la qualité des mesures obtenues par LII et SMPS.

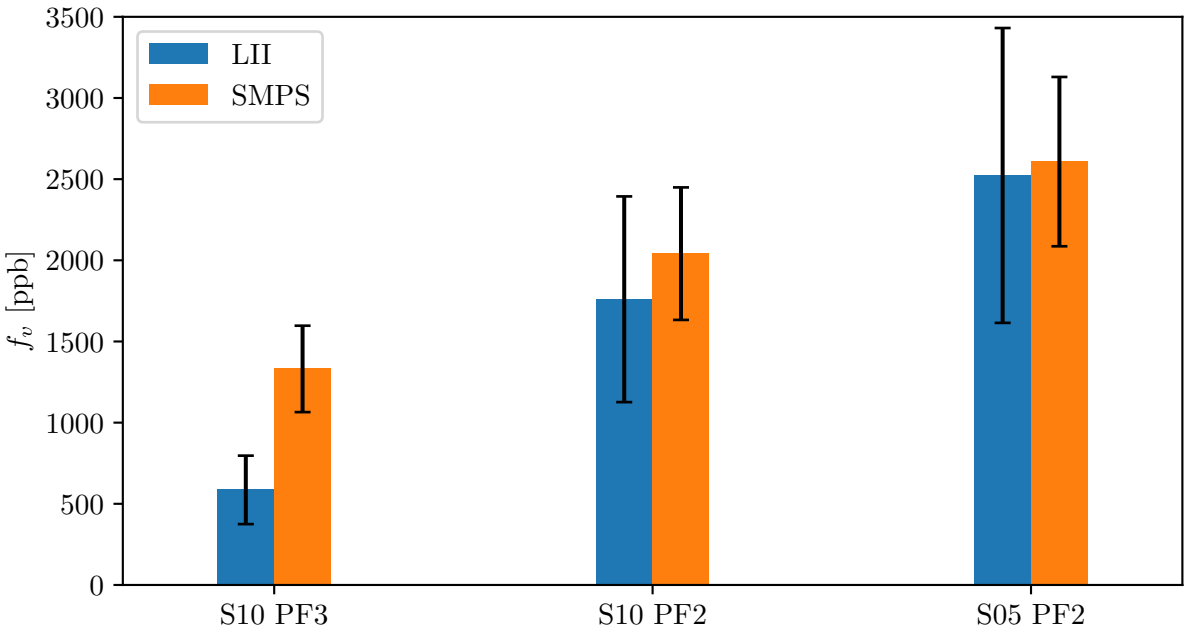

FIGURE 7.40 – Comparaison des mesures de fractions volumiques obtenues par SMPS et par LII

7.10 Conclusions globales

Une étude phénoménologique des mécanismes de formation et d'oxydation des suies a été réalisée sur deux systèmes d'injection aéronautiques alimentés en kérosène. Ces systèmes d'injection, de type RQL, ont été fournis par le motoriste Safran Aircraft Engines. Les essais ont été réalisés sur le banc de combustion haute pression HERON du CORIA, qui comprend un module permettant de visualiser la zone primaire riche des systèmes d'injection RQL. Pour des raisons de confidentialité, l'architecture mécanique de ces systèmes d'injection n'est pas communiquée. Ceux-ci présentent néanmoins des modifications de conception notables. Le système d'injection de référence (S10) se distingue par des vrilles d'air d'angle plus ouvert, induisant un nombre de swirl de la flamme plus élevée. Le second système d'injection S05 présente un bol plus ouvert de 30%. L'analyse est réalisée au travers de dix régimes de fonctionnement, qui se caractérisent par une variation d'un paramètre d'étude : richesse du mélange, pression chambre, température d'air injecté, ou encore pertes de charge. Au cours de cette étude, de nombreuses techniques de mesure ont été utilisées pour étudier les flammes produites par les deux systèmes d'injection. Ces techniques comprennent en premier lieu un système de prélèvement de gaz en sortie de chambre de combustion, ainsi qu'un système de prélèvement de particules de suie dans la chambre de combustion, effectué avec une nouvelle sonde de prélèvement conçue spécialement pour être placée dans la chambre de combustion du banc HERON. Outre les mesures par prélèvement, cinq diagnostics laser couplés la plupart du temps entre eux ont été utilisés. La PIV et la PLIF-OH ont permis de caractériser l'aérodynamique de l'écoulement réactif, ainsi que la structure des flammes générées par les deux systèmes d'injection RQL. La PLIF-kérosène a été utilisée pour sonder la distribution spatiale de kérosène dans la chambre de combustion. Le kérosène est un mélange d'hydrocarbures constitué à 21% d'espèces aromatiques. Or, les composés aromatiques sont connus pour leur rôle de précurseurs de la formation des particules de suie. Par conséquent, réaliser une mesure de PLIF-kérosène revient à qualifier également la distribution spatiale de précurseurs de suie dans la chambre de combustion. Pour finir, des mesures de PLIF-NO et de LII sont effectuées afin de déterminer les distributions spatiales de monoxyde d'azote et de suie dans la chambre de combustion. Pour des raisons d'ordre technique, les cinq diagnostics optiques mentionnés ci-dessus n'ont pas pu être tous couplées entre eux. Ainsi, l'étude s'est subdivisée en trois campagnes de mesure : une campagne de PLIF- OH/PLIF-kérosène/PLIF-NO, une seconde campagne de PLIF-OH/PLIF-kérosène/PLIF-LII, et pour finir, une campagne de PIV haute-cadence.

La mise en œuvre de ces diagnostics laser a constitué un défi technique et technologique. De par leur richesse comprise entre 1,8 et 3,2, les flammes analysées avaient des niveaux d'émission de lumière intenses, ce qui perturbait les mesures optiques. Malgré la préparation effectuée en amont des campagnes d'essais, notamment en matière de filtrage optique, la présence importante de suie et de kérosène liquide dans la chambre de combustion a eu pour effet d'absorber les nappes laser dédiées aux mesures de PLIF. Par conséquent, seule la partie supérieure des images acquises a été exploitable. En dépit de ces contraintes, les données issues de la combinaison des diagnostics optiques a permis d'obtenir une analyse détaillée du comportement des flammes produites par les systèmes d'injection RQL. Ainsi, on observe que les systèmes d'injection RQL ne présentent pas de différence significative en matière de production de NO. En revanche, ceux-ci dépeignent des distributions spatiales de suie légèrement différentes. Alors que les mesures SMPS affichent des valeurs de taille et de concentration de suie plus faibles pour l'injecteur S10, les mesures par LII indiquent des niveaux de fraction volumique de suie plus élevés dans la zone primaire de réaction, en comparaison avec ceux mesurés avec le système d'injection S05. Cette différence peut s'expliquer par la modification du nombre de swirl entre les deux flammes. L'écoulement plus axial provenant du système d'injection S05 laisse moins de temps au kérosène de se décomposer chimiquement, d'où une production de suie à la fois retardée et diminuée dans la chambre de

combustion. Cependant, la distribution spatiale de suie sur l'injecteur S10 montre une atténuation en sortie du bloc de visualisation. Celle-ci provient sans doute d'une oxydation des particules de suie, due à une recirculation plus importante de l'air secondaire, favorisée par un nombre de swirl plus important. L'analyse effectuée sur les différents régimes de fonctionnement montre également que les plus faibles fractions volumiques de suie sont atteintes sur le point de fonctionnement à plus faible richesse ($\Phi = 1.8$). Malheureusement, la diminution de la richesse s'accompagne fatalement d'un accroissement de la production de monoxyde d'azote, observée à la fois sur les images de PLIF-NO et les mesures de concentration en sortie de chambre.

En définitive, l'activité scientifique réalisée dans cette thèse sur cette thématique représente, à notre connaissance, une prouesse scientifique et technique, rarement rencontrée dans la littérature sur ce type de flamme. Le couplage des diagnostics optiques a permis d'établir un scénario de formation de suie dans la zone primaire de réaction sur les deux systèmes d'injection. Les résultats ainsi obtenus confèrent à Safran Aircraft Engines de précieuses données qui alimenteront notamment les modèles de formation de suie dans leurs codes de simulation numériques. À plus long terme, ce retour d'expérience constitue un premier point de départ pour la conception des systèmes d'injection RQL qui équiperont leurs futurs moteurs aéronautiques.

7.11 Références

[1] Randal McKinney, Albert Cheung, William Sowa et Domingo Sepulveda. « The Pratt & Whitney TALON X Low Emissions Combustor : Revolutionary Results with Evolutionary Technology ». In : (jan. 2007). doi : https://doi.org/10.2514/6.2007-386.

[2] Pierre Malbois. « Analyse expérimentale par diagnostics lasers du mélange kérosène/air et de la combustion swirlée pauvre prémélangée, haute-pression issue d'un injecteur Low-NOx ». Theses. CORIA, déc. 2017. url : https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01768863.

[3] Erwan Salaün. « Etude de la formation de NO dans les chambres de combustion haute pression kérosène/air par fluorescence induite par laser ». Thèse de doct. CORIA, 2017.

[4] Maxime Bouvier, Jerôme Yon, Franck Lefebvre, G. Godard, Aurélien Perrier, Gilles Cabot et Frederic Grisch. « Time-resolved 2D angular scattering of soot particles in atmospheric turbulent flames ». In : *39th International Symposium on Combustion*. Vancouver, Canada, juill. 2022. url : https://hal-normandie-univ.archives-ouvertes.fr/hal-03763465.

[5] Ignacio Verdugo, Juan José Cruz, Emilio Alvarez, Pedro Reszka, Luis Fernando Figueira da Silva et Andrés Fuentes. « Candle flame soot sizing by planar time-resolved laser-induced incandescence ». In : *Scientific Reports* 10.1 (juill. 2020). doi : 10.1038/s41598-020-68256-z.

[6] Katharina Kohse-Hoinghaus et Jay Barker Jeffries. *Applied combustion diagnostics*. CRC, 2002.

[7] E. Salaün, F. Frindt, G. Cabot, B. Renou, S. Richard, M. Cazalens, P. Malbois et F. Grisch. « Experimental Investigation on NO Pollutant Formation in High-Pressure Swirl-Stabilized Kerosene/Air Flames Using NO-, OH- and Kerosene-PLIF and PIV Laser Diagnostics ». In : (sept. 2020). doi : 10.1115/GT2020-14985.

[8] Pierre Gautier. « Dosage des polluants NO et CO par imagerie de fluorescence induite par laser dans les écoulements réactifs ». Thèse de doct. CORIA, déc. 2017.

[9] Irfan A. Mulla, Gilles Godard, Gilles Cabot, Frédéric Grisch et Bruno Renou. « Quantitative imaging of nitric oxide concentration in a turbulent n-heptane spray flame ». In : *Combustion and Flame* 203 (mai 2019), p. 217-229. doi : https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2019.02.005.

[10] S.V. Naik et N.M. Laurendeau. « Spectroscopic, calibration and RET issues for linear laser-induced fluorescence measurements of nitric oxide in high-pressure diffusion flames ». In : *Applied Physics B* 79.5 (août 2004), p. 641-651. doi : https://doi.org/10.1007/s00340-004-1604-5.

[11] S. Prucker, W. Meier et W. Stricker. « A flat flame burner as calibration source for combustion research : Temperatures and species concentrations of premixed H2/air flames ». In : *Review of Scientific Instruments* 65.9 (sept. 1994), p. 2908-2911. doi : https://doi.org/10.1063/1.1144637.

[12] Hope A. Michelsen, Paul E. Schrader et Fabien Goulay. « Wavelength and temperature dependences of the absorption and scattering cross sections of soot ». In : *Carbon* 48.8 (juill. 2010), p. 2175-2191. doi : https://doi.org/10.1016/j.carbon.2010.02.014.

[13] A. Bescond, J. Yon, F.-X. Ouf, C. Rozé, A. Coppalle, P. Parent, D. Ferry et C. Laffon. « Soot optical properties determined by analyzing extinction spectra in the visible near-UV : Toward an optical speciation according to constituents and structure ». In : *Journal of Aerosol Science* 101 (nov. 2016), p. 118-132. doi : https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2016.08.001.

[14] A. V. Drakon, A. V. Eremin, E. V. Gurentsov, E. Yu. Mikheyeva et R. N. Kolotushkin. « Optical properties and structure of acetylene flame soot ». In : *Applied Physics B* 127.6 (mai 2021). doi : 10.1007/s00340-021-07623-8.

[15] Redjem Hadef, Klaus Peter Geigle, Wolfgang Meier et Manfred Aigner. « Soot characterization with laser-induced incandescence applied to a laminar premixed ethylene–air flame ». In : *International Journal of Thermal Sciences* 49.8 (août 2010), p. 1457-1467. doi : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2010.02.014.

[16] H.A. Michelsen, C. Schulz, G.J. Smallwood et S. Will. « Laser-induced incandescence : Particulate diagnostics for combustion, atmospheric, and industrial applications ». In : *Progress in Energy and Combustion Science* 51 (déc. 2015), p. 2-48. issn : 03601285. doi : 10.1016/j.pecs.2015.07.001. url : https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0360128515300071 (visité le 05/02/2020).

[17] Max Hofmann, Wolfgang G. Bessler, Christof Schulz et Helga Jander. « Laser-induced incandescence for soot diagnostics at high pressures ». In : *Applied Optics* 42.12 (avr. 2003), p. 2052. doi : https://doi.org/10.1364/AO.42.002052.

[18] A.T. Juarez Facio, J. Yon, C. Corbière, T. Rogez-Florent, C. Castilla, H. Lavanant, M. Mignot, C. Devouge-Boyer, C. Logie, L. Chevalier, J.-M. Vaugeois et C. Monteil. « Toxicological impact of organic ultrafine particles (UFPs) in human bronchial epithelial BEAS-2B cells at air-liquid interface ». In : *Toxicology in Vitro* 78 (fév. 2022), p. 105258. doi : 10.1016/j.tiv.2021.105258.

[19] Uemit Koeylue, Yangchuan Xing et Daniel E. Rosner. « Fractal Morphology Analysis of Combustion-Generated Aggregates Using Angular Light Scattering and Electron Microscope Images ». In : *Langmuir* 11.12 (déc. 1995), p. 4848-4854. doi : https://doi.org/10.1021/la00012a043.

[20] S. Chippett et W. Gray. « The Size and Optical Properties of Soot Particles ». In : *Combustion and Flame* 31 (1978), p. 149-159. doi : https://doi.org/10.1016/0010-2180(78)90125-6.

[21] Shih Chen Wang et Richard C. Flagan. « Scanning Electrical Mobility Spectrometer ». In : *Aerosol Science and Technology* 13.2 (jan. 1990), p. 230-240. doi : https://doi.org/10.1080/02786829008959441.

Conclusions et perspectives

Les travaux de thèse présentés dans ce manuscrit, et réalisés dans le cadre du programme industriel APLAREP piloté par Safran Aircraft Engines, s'inscrivent dans un contexte de réduction des émissions de particules fines (suie) produites dans les moteurs aéronautiques. L'objectif consistait à caractériser les émissions gazeuses et particulaires de deux systèmes d'injection de type RQL fabriqués par SAE. L'étude a été réalisée sur l'étage primaire de réaction, zone de formation des espèces gazeuses imbrûlées et des particules de suie.

Pour mener à bien ce projet, plusieurs étapes préparatoires ont été nécessaires pour réaliser les campagnes de mesures. Tout d'abord, le banc de combustion HERON a fait l'objet d'une modification technique conséquente. En effet, le banc de combustion HERON ne disposait pas de système de post-combustion, permettant l'étude de flammes riches telles que celles générées par les injecteurs RQL. D'autre part, le prélèvement de particules prévue dans le cadre du programme APLAREP nécessitait la présence d'une sonde qui n'existait pas au commencement du projet. La conception de celle-ci est passée par une étude bibliographique poussée relative au prélèvement de particules de suie. Il ressort de cette revue que la plupart des solutions de prélèvement ne concernent malheureusement que des applications à pression atmosphérique. Les seuls dispositifs de prélèvement de suie à haute pression sont des sondes thermophorétiques, non adaptées pour des analyses SMPS. Par ailleurs, l'étude bibliographique effectuée a permis de mettre en évidence les problématiques liées aux analyses de suie par prélèvement. Outre l'intrusivité de la technique due à la présence d'une sonde dans la flamme venant perturber l'écoulement, de nombreux phénomènes physico-chimiques (agrégation, oxydation, etc..) sont susceptibles de modifier la distribution en taille mesurée. Pour éviter ce biais, les dispositifs de prélèvement de particules à pression atmosphérique comprennent systématiquement un dispositif d'injection d'azote destiné à inerter l'aérosol par dilution. La sonde spécialement conçue pour le banc HERON s'inspire des solutions de prélèvement à pression atmosphérique, tout en étant capable de prélever des agrégats de suie au cœur même de la chambre de combustion. À ce titre, le prélèvement de particules de suie aéronautiques, réalisé sur une flamme kérosène/air à haute pression, représente une première dans la littérature.

En vue de valider la conception de la sonde de prélèvement sur le banc de combustion HERON, une campagne de mesure de taille et de concentration de particules a été réalisée sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique. Une sonde de prélèvement semblable à la sonde de prélèvement HERON a été utilisée pour qualifier les émissions de particules émises par la flamme du brûleur SIRIUS. Les résultats obtenus ont été comparés à des mesures de taille réalisées par technique de diffusion angulaire haute cadence. En dépit du principe fondamentalement différent des deux techniques de mesure, et de leurs incertitudes qui leur sont propres, les diamètres de giration relevés et les concentrations mesurées observent une bonne similarité. Les résultats ainsi obtenus ont validé le principe de prélèvement avec dilution à l'azote, et confèrent un niveau de confiance renforcé quant à la qualité des prélèvements de suie réalisés plus tard sur le banc de combustion HERON.

Dans une troisième phase de la thèse, le brûleur SIRIUS a fait l'objet d'une modification technique permettant l'étude de flammes à pression élevée (1-5 bar). À cette occasion, une campagne de mesures par diagnostics laser avancés a été réalisée sur le brûleur SIRIUS. Quatre techniques optiques y ont été couplées, à savoir la PIV (champ de vitesse), la PLIF-OH (topologie de flamme), la PLIF-HAP (distribution spatiale de précurseurs de suie), et la LII (distribution spatiale de suie). Les essais ont été réalisés à différentes pressions chambre allant de 1 à 4 bar. L'intérêt de cette campagne d'essais était multiple. Elle a tout d'abord permis de mieux comprendre l'effet de la pression sur les mécanismes de production et d'oxydation opérant sur une flamme swirlée et stratifiée. D'autre part, cette étude a apporté une expérience profitable pour la mise en œuvre des diagnostics laser avancés sur le banc HERON. À plus long terme, le grand nombre de données corrélées collectées pourra être exploité pour améliorer des modèles de production de suie utiles aux codes de simulations numériques.

Suite aux différentes phases préparatoires, deux systèmes d'injection RQL ont été qualifiés par diagnostics laser avancés au travers de trois campagnes de mesure successives. Les techniques optiques utilisées sont la PIV haute-cadence (champ de vitesse), la PLIF-OH (topologie de flamme), la PLIF-kérosène (distribution spatiale de kérosène vapeur), la PLIF-NO (distribution spatiale de monoxyde d'azote), et la LII (distribution de suie). Les mesures de fractions volumiques de suie ont également été complétées par une analyse SMPS. De la même manière que pour le brûleur SIRIUS, les informations couplées ont permis, pour les systèmes d'injection RQL, d'établir un scénario de formation de suie dans la zone primaire de réaction. Les mesures ainsi effectuées représentent pour Safran Aircraft Engines un précieux retour d'expérience qui leur permettra d'améliorer leurs modèles de formation de suie dans leurs codes de simulation numériques, et à plus long terme, de concevoir les premiers systèmes d'injection qui équiperont les futurs moteurs aéronautiques.

Les travaux réalisés ouvrent la voie à de nouvelles perspectives de recherches qu'il convient d'explorer.

La mesure de distribution spatiale de fraction de volume de suie dans la chambre est une donnée précieuse pour le partenaire industriel Safran Aircraft Engines. Il serait également intéressant de réaliser des mesures de distributions spatiales de taille de suie par diffusion angulaire, à l'instar de ce qui a déjà été réalisé sur le brûleur SIRIUS à pression atmosphérique. Malheureusement, l'accès optique sur le banc de combustion HERON ne permet pas de réaliser les mêmes mesures. Cette contrainte pourrait être levée en réalisant une mesure de diffusion de Mie par variation spectrale de la lumière. Par ailleurs, le CORIA a récemment fait l'acquisition d'un laser nouvelle génération, qui offre un potentiel de développement sans précédent. Intitulé QuasiModo, celui-ci est capable d'émettre, à une cadence de 30 kHz, plusieurs faisceaux laser à différentes longueurs d'onde UV-visible-IR. Les niveaux d'énergie délivrés par ce laser sont comparables à ceux des lasers 10 Hz utilisés aujourd'hui, ce qui permet une imagerie de fluorescence avec des niveaux de rapport signal à bruit de même qualité qu'à basse cadence. L'apport de la haute cadence est profitable à plus d'un titre. Celle-ci offre de nouveaux champs de lecture sur la dynamique de ces phénomènes physico-chimiques opérant dans la chambre de combustion. De surcroît, ce laser permettrait un couplage des techniques PLIF-OH/PLIF-kérosène/PLIF-NO/PIV (et peut-être même LII) sur une flamme de combustion aéronautique à haute pression, constituant une première mondiale.

Sur le plan technologique, un volet de développement majeur concerne l'étude du concept de combustion RQL dans sa globalité. En l'occurrence, les travaux présentés dans cette thèse se sont

limités à l'étude de l'étage primaire de réaction, lieu de formation des agrégats de suie. Mais des études complémentaires de la chambre de combustion RQL pourraient être réalisées dans sa globalité. La zone de mélange rapide (Quick-mix) et la zone de combustion pauvre (Lean-burn) sont en effet des étages cruciaux en matière d'oxydation des imbrûlés (CO, HC..) et des particules de suie. À plus long terme, les recherches pourront également s'articuler autour de la combustion de biocarburants dans les moteurs RQL. Communément appelés *Sustainable Aviation Fuel* (SAF), ces carburants nouvelle génération constitue la stratégie principale de décarbonation de l'aéronautique à court terme. De plus, la proportion plus faible en aromatiques des SAF pourrait permettre de réduire de manière substantielle les émissions de particules de suie. La qualification de flammes de SAF dans les moteurs aéronautiques n'en est encore qu'à ses balbutiements. En dépit de sa composition proche du kérosène fossile, la combustion de SAF dans les moteurs aéronautiques soulève un certain nombre de questions. La proportion plus faible en aromatiques des SAF pourrait permettre de réduire de manière substantielle les émissions de particules de suie.