



HAL
open science

Etude des effets de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés

Thomas Naudin

► **To cite this version:**

Thomas Naudin. Etude des effets de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés. Thermique [physics.class-ph]. Nantes Université, 2024. Français. NNT : 2024NANU4007 . tel-04740934

HAL Id: tel-04740934

<https://theses.hal.science/tel-04740934v1>

Submitted on 17 Oct 2024

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.

THESE DE DOCTORAT

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 602

Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes

Spécialité : « Energétique, thermique, combustion »

Par

Thomas NAUDIN

Etude des effets de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés

Thèse présentée et soutenue à « Nantes », le « 19/06/2024 »

Unité de recherche : Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes (LTeN)

Rapporteurs avant soutenance :

Michel GRADECK Professeur des Universités, Université de Lorraine
Benoit STUTZ Professeur des Universités, Université Savoie Mont Blanc

Composition du Jury :

Président :	Jocelyn BONJOUR	Professeur des Universités, INSA Lyon
Examineurs :	David BRUTIN	Professeur des Universités, Aix-Marseille Université
	Raffaella CALABRIA	Directrice de recherche émérite, CNR-STEMS, Naples
Dir. de thèse :	Jérôme BELLETTRE	Professeur des Universités, Nantes Université
Co-dir. de thèse :	Patrizio MASSOLI	Directeur de recherche, CNR-STEMS, Naples
Co-enc. de thèse :	Dominique TARLET	Maître de Conférences HDR, Nantes Université

Remerciements

Je souhaite, dans un premier temps, remercier les membres du jury, rapporteurs et examinateurs d'avoir accepté d'évaluer mon travail, et pour tous les échanges constructifs lors de la présentation.

J'adresse mes remerciements les plus profonds à mes directeurs de thèse. A Jérôme Bellettre, pour l'intérêt qu'il a porté à mes travaux, ses suggestions m'ayant permis de faire avancer mes travaux, son soutien et sa disponibilité et ce même lors de mon long séjour à Naples. A Patrizio Massoli, pour son accueil en terre Napolitaine, pour avoir su m'aiguiller dans mes recherches tout en me laissant une grande liberté, et pour toutes les discussions scientifiques, techniques et de culture Italienne (et surtout Napolitaine). A Dominique Tarlet, mon encadrant, pour ses idées, sa rigueur scientifique, ainsi que les nombreuses heures passées à éplucher les données expérimentales à mes côtés. Je remercie chaleureusement Raffaella Calabria, pour l'intérêt qu'elle a porté à mes travaux, son support, son affection le partage de son savoir-faire en laboratoire.

Je tiens à remercier l'ensemble des membres du personnel du *LTeN* pour leur disponibilité et leur savoir faire durant la première partie de ma thèse. A Jérôme Delmas, Nicolas Lefèvre, et Julien Aubril pour leur expertise technique et leurs idées géniales ayant permis de réaliser des dispositifs expérimentaux innovants en des temps records. A Amandine Bouhier et Michèle-Anne Audrain, pour leur aide et leur patience et leur gentillesse et ce malgré mes demandes à traiter *pour la veille*.

Avant mon départ, je me dois de remercier chaleureusement le laboratoire *STEMS* de Naples, et l'ensemble de ses membres, et notamment l'équipe *ICE-VG*. A Francesco Catapano et Giovanni Mecariello, mes compagnons d'exploration en terre allemande, ainsi qu'à Bruno Sgammato et Giuseppe Barese, pour tout le travail réalisé sur le système expérimental micro-gravité (également nommé *O Sciaraballo*), et pour tous les moments partagés. A Antonio Di Meo, d'abord collègue devenu ensuite compagnon d'infortune et ami, pour les nombreuses heures passées sur CATIA, les cafés, les discussions et les débriefs des matchs du Napoli.

A ma mère, ma soeur et mon père pour leur soutien et leur affection durant toutes ces années, sans qui je ne serai certainement pas arrivé jusqu'à là.

A mes amis, Franck, Paul et Nicolas pour tous ces moments partagés et ce depuis tant d'années, et à nos moments passés chez ce cher Greg.

Enfin, je terminerai en m'adressant à Stella. Merci pour ton soutien sans failles, et plus globalement d'apporter autant de lumière dans ma vie. A tous ces moments passés entre la France et l'Italie, et aux nombreux encore à venir.

Table des matières

Introduction générale	9
1 Synthèse Bibliographique	13
1.1 Introduction	13
1.2 Caractéristiques physiques des gouttes et des émulsions	13
1.2.1 Définition d'une émulsion	13
1.2.2 Tension de surface et mouillage	14
1.2.3 Tensioactifs-Surfactants	16
1.2.4 Viscosité	17
1.3 Comportement d'une émulsion	18
1.3.1 Procédés d'émulsifications	19
1.3.2 Phénomènes menant à la déstabilisation d'une émulsion	21
1.3.3 Effet Marangoni et convection interne	23
1.4 Étude du phénomène de micro-explosion	25
1.4.1 Généralités	25
1.4.2 Métastabilité de la phase aqueuse	28
1.4.3 Nucléation homogène et hétérogène	33
1.4.4 Influence des propriétés physiques des composants	35
1.4.5 Influence de la quantité d'eau et sa granulométrie sur la micro-explosion	36
1.4.6 Influence du mode de chauffage	41
1.4.7 Influence de la pression ambiante	42
1.4.8 approche multi-paramètres	43
1.5 Atomisation partielle ou puffing	44
1.6 Étude de gouttes et d'émulsions en condition de micro-gravité	46
1.6.1 Drop Towers	47
1.6.2 Les vols paraboliques et sub-orbitaux	48
1.6.3 Vaporisation d'une goutte de carburant en μ -gravité	48
1.7 Étude des émulsions et de la micro-explosion à l'aide de diagnostics optiques	51
1.7.1 Introduction	51
1.7.2 Méthodes de mesure de vitesse et de taille	52
1.7.3 Mesure de température	55
1.8 Conclusion	58
2 Étude de la coalescence et de la convection interne au sein de la phase dispersée	59
2.1 Présentation des objectifs	59
2.2 Méthode expérimentale	59
2.2.1 Choix des émulsions étudiées	59

2.2.2	Banc expérimental	61
2.3	Traitement des données et analyse d'images	63
2.3.1	Analyse des Images	63
2.4	Étude de l'importance de la coalescence sur l'obtention de la micro-explosion	66
2.4.1	Composition des émulsions et configurations étudiées	67
2.4.2	Calibration initiale de la température des panneaux	67
2.4.3	Mesure de l'évolution du diamètre moyen de la phase dispersée	68
2.4.4	Mesure du taux et du délai de micro-explosion	69
2.5	Analyse des trajectoires des gouttelettes d'eau au sein de l'émulsion	71
2.5.1	Analyse qualitative	71
2.6	Analyse des trajectoires à l'aide d'un algorithme de PTV	74
2.6.1	Hypothèse sur la vitesse de l'écoulement de la phase continue par le nombre de Stokes	78
2.7	Relation entre convection naturelle et micro-explosion	80
2.8	Conclusion	82
3	Mesure du champ de température interne de gouttes de n-tétradécane par LIF2c	83
3.1	Introduction	83
3.2	Caractérisation des propriétés optiques du traceur	84
3.2.1	Mesure du spectre d'absorption du traceur	84
3.2.2	Fluorescence	85
3.3	Dispositif expérimental de LIF2C et calibration initiale de la fonction $R_f(T)$	87
3.3.1	Calibration initiale du traceur	88
3.4	Application à la mesure de température au sein de gouttes	95
3.4.1	Vérification initiale de la fluorescence au sein de la goutte	96
3.4.2	Re-calibration de $R_f(T)$ au sein de la goutte	99
3.5	Mesure du champ de température au sein des gouttes	100
3.6	Conclusion	105
4	Étude des écoulements à l'intérieur d'une goutte en l'absence de gravité	106
4.1	Introduction et objectifs	106
4.2	Effet Marangoni et gouttes dans la littérature	106
4.3	Contexte de l'étude et présentation de l'installation "Drop-Tower"	107
4.4	Description du système expérimental développé	109
4.5	Observations des mouvements internes en conditions normales de gravité	115
4.5.1	Première estimation de la contribution de l'effet Marangoni et de la convection thermogravitaire	120
4.6	Résultats obtenus en micro-gravité	122
4.7	Limites du système et possibilités d'améliorations	129
4.8	Conclusion	130
	Conclusion générale	131
	Annexes	135
	Publications de l'auteur	147
	Bibliographie	158

Table des figures

1	Fragmentation d'une goutte d'émulsion en un nuage de fines gouttelettes	10
1.1	Évolution de la tension interfaciale selon la concentration en hydrocarbure pour divers bio-carburants [15]	15
1.2	La mouillabilité dépend de l'angle de contact liquide-paroi [16]	15
1.3	Orientation des molécules de surfactant selon la polarité [18]	16
1.4	relation décrivant la concentration optimale de surfactant [19]	16
1.5	Mesure de la viscosité dynamique d'émulsions W/O pour du a) Dodécane b) du Décane en fonction de la concentration [15]	18
1.6	Diamètre moyen des gouttes d'eau selon la vitesse de rotation pour un agitateur magnétique [32]	21
1.7	mécanismes de séparation de phase d'une émulsion [33]	21
1.8	Représentation de la convection liée à l'effet Marangoni [40]	23
1.9	25
1.10	illustration de la micro-explosion pour une émulsion W/O [45]	25
1.11	température d'ébullition et limite de surchauffe des différents composants des émulsions [47]	26
1.12	Mesure de la surface totale exposée à l'air avant et après micro-explosion [50]	27
1.13	Nombre de gouttes filles générées après micro-explosion selon le diamètre moyen de Sauter [10]	27
1.14	Comparaison du ratio énergie de surface/énergie cinétique pour deux types de micro-explosion [51]	28
1.15	Diagramme d'équilibre (p-T)	29
1.16	Energie minimum de formation d'un noyau de vapeur	31
1.17	Thermogramme d'une goutte d'émulsion mesuré par DSC. Le coin supérieur gauche représente le thermogramme d'une goutte d'huile pure	32
1.18	Ecart entre température d'ébullition théorique et température de nucléation (début micro-explosion) selon la vitesse de montée en température [61]	32
1.19	Différents sites de nucléation dans une émulsion W/O	34
1.20	Evolution du diamètre d'une émulsion avant micro-explosion/puffing [66]	35
1.21	Influence de la viscosité (a), de la tension interfaciale (b), tension de surface (c) et du rayon initial (d) de la goutte sur le délai de micro-explosion [67]	36
1.22	r	37
1.23	Taux de réalisation d'une micro-explosion en fonction de la taille initiale des gouttes d'eau [8]	37
1.24	Probabilité de micro-explosion selon la taille moyenne des gouttes dispersées [21]	38
1.25	Influence du volume d'eau sur la probabilité de micro-explosion	39
1.26	Cliché d'une coalescence entre deux gouttes d'eau à l'aide d'une caméra CCD	39

1.27	Quantité de surfactant sur la probabilité de micro-explosion (<i>gauche</i>) Température de goutte selon le degré de coalescence (<i>droite</i>) [75]	40
1.28	Diagramme ternaire des émulsions : <i>gauche</i> : sans surfactant - <i>droite</i> : avec surfactant	40
1.29	<i>Gauche</i> : durée avant micro-explosion selon la température pour différents type de chauffage- <i>Droite</i> : Influence de la composition de la goutte <i>Légende</i> : (1) radiatif - (2) convectif - (3) par conduction	41
1.30	<i>Gauche</i> : Temps avant la micro-explosion pour des gouttes diphasiques W/O en fonction de la température de l'air ambiant et pour plusieurs températures initiales de l'eau; <i>Droite</i> : représentation des gouttes diphasiques étudiées [81]	42
1.31	température des gouttelettes d'eau en fonction de leur position dans la goutte d'émulsion [83]	43
1.32	Mouvement ascendant d'une goutte d'eau soumise à un cycle de température (<i>gauche</i>) et caractéristiques de la trigger drop (<i>droite</i>) [83]	44
1.33	Différence entre puffing et micro-explosion [90]	45
1.34	Nombres de gouttes secondaires générées selon le mode de rupture de la goutte mère [90]	45
1.35	Forme sphérique d'une goutte avant son atomisation en micro-gravité [95]	47
1.36	Schéma de la JAMIC Drop Tower [100]	48
1.37	Exemple de trajectoire d'un vol parabolique [101]	48
1.38	première modélisation de la $D^2 - Law$ par Godsave en 1593 [102]	49
1.39	Évolution des vitesses u_{NC} et u_r en gravité normale (<i>gauche</i>) et micro-gravité (<i>droite</i>)[107]	50
1.40	Séparation de phase d'une émulsion O/W en micro-gravité	51
1.41	Évolution de la surface d'une goutte d'émulsion W/O a) en gravité normale et b) en micro-gravité [113]	51
1.42	Exemple de cartographie du champ de température au sein d'une goutte d'eau obtenue par méthode optique (LIF)[114]	52
1.43	Exemple montage par ombroscopie permettant la visualisation de l'atomisation d'un jet [115]	53
1.44	Schéma d'un montage basé sur la PIV	54
1.45	mesure de champ de vitesse au sein d'une goutte d'eau durant son chauffage	54
1.46	Intensité de fluorescence de traceurs KR et Rh560 selon la température [122]	56
1.47	Spectre d'absorption (a) et d'émission (b) de différents traceurs fluorescents [123]	57
2.1	Spectre d'émission et d'absorption de la fluorescéine	60
2.2	Image type de granulométrie obtenue par microscope digitale	61
2.3	Image type de granulométrie obtenue par microscope digitale	61
2.4	Schéma du banc expérimental basé sur le dispositif LIF	62
2.5	Vue en coupe du prototype présentant la position des panneaux radiatifs	62
2.6	image brute (<i>gauche</i>) et après amélioration du contraste (<i>droite</i>)	63
2.7	image en noir et blanc et sa représentation en bassins (<i>watershed</i>)	64
2.8	Exemple d'application de la fonction Watershed pour la détection de gouttes	64
2.9	image avant et après application du filtre gaussien pour la soustraction d'arrière-plan	65
2.10	identification et comptage des gouttelettes dispersées sur une image	66
2.11	Critère Metrics pour l'identifications des gouttes	66
2.12	Mesure de l'évaporation d'une goutte de n-tetradecane en fonction de la température	68
2.13	Évolution temporelle du diamètre moyen de la phase dispersée	69
2.14	Délais de micro-explosion pour plusieurs configurations	71
2.15	Suivi de la trajectoire d'une goutte d'eau isolée	72
2.16	Visualisation de particules de charbon disséminés dans une goutte de tetradecane	72
2.17	Schématisation du phénomène de convection naturelle au sein d'une goutte	73

2.18	Diagramme représentant la traitement des coordonnées par l’algorithme de PTV à l’aide de 3 critères [130]	75
2.19	analyse des trajectoires des gouttelettes d’eau sur une plage de 200 ms pour 3 périodes d’échantillonnages - configuration BOT	77
2.20	analyse des trajectoires des gouttelettes d’eau sur une plage de 200 ms pour 3 cas - configuration TOP	78
2.21	Evolution du nombre de Stokes selon la vitesse des gouttelettes d’eau (traceurs)	79
2.22	Micro-explosion/Puffing en fonction de l’indicateur I	81
3.1	Principe de fonctionnement du spectrographe [131]	84
3.2	Distribution de la lumière par un réseau de diffraction [131]	85
3.3	Spectre d’absorption du traceur BOD-Me	86
3.4	Spectre de fluorescence du BOD-Me pour diverses longueurs d’ondes d’excitation	87
3.5	Spectre de fluorescence du BOD-Me pour $\lambda_{excitation} = 532$ nm	87
3.6	Schéma du montage expérimental	88
3.7	Schéma du séparateur de faisceau Hamamatsu	88
3.8	Mesure de la dégradation sur une période de temps de 20 secondes	90
3.9	Représentation de la ré-absorption de la fluorescence le long de l’axe y	91
3.10	Quantification de la ré-absorption selon la longueur du chemin optique	92
3.11	Intensité de fluorescence pour les deux longueurs d’ondes sélectionnées le long du chemin optique pour plusieurs températures	93
3.12	illustration du traitement des images brutes pour la superposition des deux longueurs d’ondes	93
3.13	Mesure du ratio de fluorescence le long de la cuvette pour plusieurs températures	94
3.14	Différence entre la température de consigne et la température réelle mesurée par le thermocouple	95
3.15	Calibration du ratio de fluorescence	95
3.16	intensité de fluorescence normalisée dans la goutte sur les deux longueurs d’ondes de collection	96
3.17	Variation des signaux de fluorescence horizontaux sur les deux longueurs d’ondes et pour plusieurs températures	97
3.18	Mesure de la diffusion de la lumière incidente le long des axes verticaux et horizontaux	98
3.19	Concentration d’un faisceau par une lentille sphérique [132]	98
3.20	Variation spatiale du rapport de fluorescence suivant l’axe horizontal au sein de la goutte	99
3.21	Rapport normalisé tracé suivant l’axe horizontal au sein de la goutte	100
3.22	Profil de température vertical au sein de la goutte durant sa montée en température, cas BOT, TOP et SIDE	103
3.23	Schéma des zones prises en compte pour le calcul du gradient vertical (gauche) et gradients mesurés (droite)	104
3.24	Nombre de Rayleigh en fonction du diamètre de la goutte	105
4.1	Tour de Chute de l’ESA à Brêmes	108
4.2	Capsule contenant les bancs expérimentaux	109
4.3	Schéma de coupe de la cellule	110
4.4	micro-pompe à membranes utilisée dans le montage expérimental	110
4.5	Montage de la caméra et de l’objectif	111
4.6	Laser miniature embarqué	112
4.7	Vue 3D de l’ensemble Cellule + système optique	113
4.8	Schéma de principe de l’ensemble Cellule et du système optique	114

4.9	Profil d'accélération de la tour lors du lâché depuis le haut de la tour (durée μg 4.5 s)	114
4.10	Séquence expérimentale μg	115
4.11	Observation qualitative des mouvements internes du liquide, ici dans la configuration de chauffage 'TOP'	116
4.12	Trajectoires caractéristiques obtenues dans le cas "TOP"	118
4.13	Observations des trajectoires - configuration "SIDE"	119
4.14	Trajectoires caractéristiques obtenues - configuration "SIDE"	120
4.15	Évolution des nombres de Rayleigh et de Marangoni suivant le diamètre de la goutte et rapport correspondant	122
4.16	Évolution du rapport (D/D_0^2) lors des deux essais	123
4.17	Puffing	124
4.18	Atomisation de la goutte	124
4.19	Exemple d'images brutes obtenues	126
4.20	Traces des tourbillons de recirculation obtenus en micro-gravité	127
4.21	Distinction des particules les plus visibles pour une estimation de vitesse	127
4.22	Vitesse des particules en fonction des zones à l'intérieur de la goutte	128
4.23	comparaison de l'impact de l'émulsification sur les rejets de polluants [148]	136
4.24	influence de la température sur l'émission de NO_X prompts et thermiques [151]	137
4.25	Diminution de la production de NO_X selon la quantité d'eau injectée [154]	137
4.26	Retard à l'allumage en fonction de la teneur en eau pour plusieurs alcanes. [156]	138
4.27	Spectre électromagnétique	139
4.28	Indice de réfraction n (Gauche) et d'absorption k (Droite) de l'eau dans le domaine du proche infrarouge [159]	140
4.29	Diagramme de Perrin-Jablonski représentant les transitions inter-état d'une particule	141
4.30	Double effet Doppler - Application pour la LDA [158]	142
4.31	Évolution de l'indice d'absorption du diesel en fonction de la longueur d'onde [160]	143
4.32	Comparaison Q_a, Q_{tr} entre la théorie de Mie (ligne continue) et l'approximation présentée plus haut (ligne pointillée) [163]	144
4.33	représentation de l'effet de concentration du rayonnement incident au sein d'une goutte d'émulsion [165]	145
4.34	Vue d'ensemble du système expérimental	146

Liste des tableaux

1.1	valeurs typiques de HLB par l'Imperial Chemical Industries [20]	17
1.2	procédés d'émulsifications	20
2.1	Configurations étudiées	67
2.2	taux de micro-explosion pour les différentes configurations étudiées	70
2.3	Nombre d'Archimède en fonction du diamètre des particules	80
2.4	Mesure de l'intensité de l'advection de la phase dispersé par le critère adimensionnel I	81
3.1	Champ de températures obtenus à divers instants de la phase de chauffage pour les 3 configurations étudiées	102
4.1	Trajectoire des micro-billes obtenues par PTV pour les 3 configurations de chauffage étudiées, aux mêmes temps après l'injection	117

Nomenclature

Symbole

$\%_m$	% massique	
A_{12}	Emission de photon spontanée	
a_{32}	Rayon moyen de Sauter	m
Ar	Nombre d'Archimède	
B_{12}	Coefficient d'Einstein	
C	Concentration moléculaire	$molm^{-3}$
C_λ	Facteur de conversion	
D	Diamètre	m
D_{32}	Diamètre moyen de Sauter	m
D_{ref}	Diamètre référence goutte mère	m
E	Energie d'activation	J
E_{AB}	Energie d'attraction	J
f	Distance focale	m
F_d	Force de trainée	N
F_g	Force de poussée d'Archimède	N
f_v	Fraction volumique	
f_v	fraction volumique	
H	Enthalpie	J
I	Intensité laser	W
I_f	Intensité de fluorescence	W
K_λ	Constante optique - Constante traceur	
k_b	Constante de Boltzmann	JK^{-1}
L_c	Longueur caractéristique	m

Ma	Nombre de Marangoni	
n	Indice de réfraction	
Oh	Nombre d'Ohnesorge	
P	Pression	Pa
Q_a	Efficacité d'absorption	
R	Constante des gaz parfaits	$JK^{-1}mol^{-1}$
r	Rayon	m
R_{12}	Rapport de fluorescence	
R_f	Rapport de fluorescence (deuxième notation)	
Ra	Nombre de Rayleigh	
Re	Nombre de Reynolds	
S	Entropie	J
s_λ	Coefficient de sensibilité à la température	$\%/^{\circ}C$
St	Nombre de Stokes	
T	Température	$^{\circ}C$
u	vitesse	ms^{-1}
V_c	Volume de contrôle	m^3
x_d	Paramètre de taille	

Lettres Grecques

α	Diffusivité thermique	m^2s^{-1}
$\alpha_{a,b}$	Polarisabilité électrique	$C^2m^2J^{-1}$
β	Coefficient de dilatation thermique	K^{-1}
$\gamma_{w/o}$	Tension interfaciale eau/huile	Jm^{-2}
λ	Longueur d'onde	m
μ	Viscosité dynamique	$Pa.s$
ν	Viscosité cinématique	m^2s^{-1}
ρ	Masse volumique	kg/m^3
σ	Tension de surface	Nm^{-1}
σ_T	Coefficient de dépendance à la température de la tension de surface	$Nm^{-1}K^{-1}$

Abréviations

$2cLIF$ 2 colors-Laser Induced Fluorescence

BOT Panneau radiatif en dessous de la goutte

HLB Hydrophilic-Lipophilic Balance

LIF Laser Induced Fluorescence

O/W Emulsion *Oil-In-Water*

PLIF Planar Laser Induced Fluorescence

PTV Particle Tracking Velocimetry

TOP Panneau radiatif au dessus de la goutte

W/O Emulsion *Water-In-Oil*

Introduction générale

L'industrialisation de notre société, propulsée par l'exploitation à grande échelle des énergies fossiles (pétrole, gaz et charbon) a permis un développement de la civilisation humaine à une vitesse inégalée jusqu'alors. En effet, l'utilisation de ces sources d'énergies non renouvelables a donné aux sociétés modernes l'occasion de réaliser des progrès technologiques considérables, améliorant ainsi grandement le niveau de vie moyen des populations des pays développés.

Cependant, le début du *XXI^{ème}* peut être décrit comme celui de la prise de conscience des limites du modèle de croissance actuel basé sur l'hypothèse d'abondance des énergies disponibles, ainsi que des dégâts causés par l'utilisation intensive de ces énergies. Les émissions de CO_2 d'origine anthropique s'élèvent à 2020 Gigatonnes pour la période 1870-2016 [1]. Les modélisations du GIEC (Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat) indiquent que le total des émissions de CO_2 liés à l'activité humaine ne doit pas dépasser les 2900 Gigatonnes afin de limiter le réchauffement à $+2^\circ C$ à l'échelle planétaire [2]. Au rythme d'émissions actuel, et si l'objectif dit " $+2^\circ C$ " est celui que nous nous fixons, le *budget* carbone résiduel est estimé à environ une vingtaine d'années. Il devient donc primordial de planifier la transition énergétique, à savoir la sortie des énergies fossiles à l'échelle mondiale, couplée à une politique dite de *sobriété énergétique* visant à limiter la consommation d'énergie. Ainsi, le développement de systèmes énergétiques plus efficaces et moins polluants est un enjeu majeur pour notre société.

C'est pourquoi il est aujourd'hui plus que jamais d'actualité de s'intéresser aux diverses méthodes permettant l'amélioration de nos systèmes de combustion traditionnels, dont l'efficacité peut être optimisée tout en limitant au maximum le rejet de polluants. L'une des méthodes visant à améliorer ces systèmes de combustion consiste en l'émulsification de carburants d'origine biologique à l'aide d'eau.

Selon Hagos et al.[3], l'intérêt de l'émulsification a été étudié pour la première fois en Allemagne à la sortie de la seconde guerre mondiale. Ces émulsions, consistant en un mélange de deux liquides naturellement immiscibles, se caractérisent par leur configuration singulière, à savoir en une dispersion d'une des phases en présence dans l'autre sous la forme de fines gouttes suite à une agitation permettant un apport d'énergie au mélange.

L'intérêt de ce processus a déjà été démontré par le passé, puisqu'il permet de diminuer les émissions de polluants (NO_x , monoxyde de carbone, particules solides et suies) tout en améliorant la qualité de la combustion [4].

L'efficacité de la combustion est améliorée par un phénomène singulier, inhérent aux émulsions, appelé **micro-explosion**. La micro-explosion de gouttes d'émulsions provient de la différence de température d'ébullition des phases dispersée et continue, résultant en une expansion volumique brutale de la phase dont la température de vaporisation est la plus basse (dans la majeure partie des cas, il s'agit d'eau). Lors de sa vaporisation, l'eau viendra fragmenter la couche huileuse

environnante, résultant en un nuages de fines gouttes secondaires appelées gouttes filles (figure 1). Ce passage d'une goutte à un nuage de fines gouttelettes résultera en une intensification de la vaporisation du combustible et en un meilleur mélange avec l'air ambiant et donc une combustion plus efficace et moins polluante.

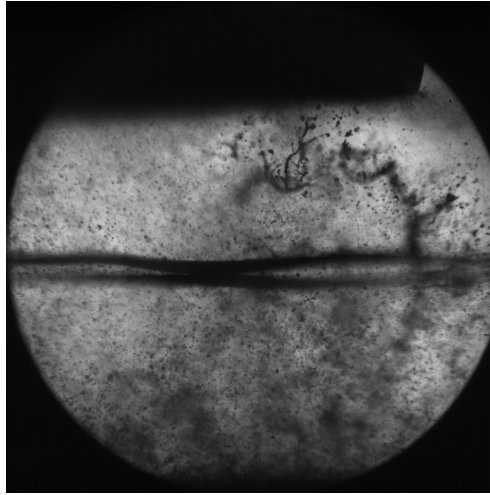


FIGURE 1 – Fragmentation d'une goutte d'émulsion en un nuages de fines gouttelettes

L'un des facteurs limitant le déploiement des carburants émulsionnés à grande échelle réside dans leur instabilité, conséquence de l'existence d'une énergie de surface entre les deux phases (apportée lors de l'agitation). L'émulsion finira par retrouver son état le plus stable en minimisant son énergie de surface, séparant les phases en présence pour former deux couches distinctes (à la manière de l'huile versée dans un verre d'eau), à travers divers mécanismes tels que la coalescence. Bon nombre de travaux ont cependant permis des avancées en matière de compréhension du comportement des émulsions, et notamment du phénomène de micro-explosion [5, 6, 7, 8, 9]. Ces travaux ont mis en évidence différents critères à prendre en compte afin d'optimiser l'émulsification et la micro-explosion, à savoir :

- La composition de l'émulsion : la teneur en eau est un critère clé dans l'optimisation du mélange. Il est nécessaire d'avoir une composition adéquate pour obtenir une fragmentation totale de la goutte mère après micro-explosion, mais une quantité d'eau trop élevée provoquerait une inversion de phase. Il en va de même pour le tensio-actif, ajouté afin de stabiliser l'émulsion, qui en quantité trop importante tend à modifier les propriétés physico-chimiques du mélange.
- La granulométrie (taille moyenne) des gouttes d'eau. Il a été démontré qu'il existe un diamètre moyen optimal de la phase d'eau induisant un nombre de gouttes filles générées maximales [10].
- La "vie des gouttes d'eau" durant le chauffage, à savoir les événements de collision, coalescence, regroupement en bas de la goutte d'émulsion par sédimentation. La vitesse de montée en température est aussi un facteur important, et peut être également optimisée (durée, uniformité au sein de la goutte).

Tous ces critères sont donc nécessaires à l'obtention d'une émulsion optimale (i.e. générant la micro-explosion la plus brutale, avec un maximum de gouttes filles). Néanmoins, il s'avère que la vie des gouttes, qualifiée également "d'histoire thermique" [7], et notamment le phénomène ultime de déstabilisation, à savoir la coalescence, semble être un paramètre ayant une importance prépondérante sur la réalisation d'une micro-explosion. Ce phénomène n'ayant pas encore

été étudié de manière extensive, nous nous proposons donc d'essayer de quantifier son impact durant le chauffage de gouttes d'émulsions. Par ailleurs, il semble que dans certains cas, des mouvements de convection interne de la phase dispersée au sein de la goutte mère aient été observés, mais aucune étude ne quantifie à ce jour l'ampleur du phénomène et son impact sur la micro-explosion. De plus, des trois modes de transfert de chaleur (par conduction, convection, et rayonnement), le chauffage par rayonnement de gouttes d'émulsions reste relativement peu étudié. La contribution des transferts radiatifs est pourtant d'une grande importance dans les systèmes portés à haute température comme les chambres de combustion. Le travail présenté ici s'intéresse donc principalement aux points suivants :

- Étude des mouvements de convection interne de la phase dispersée (gouttes d'eau) durant la période de montée en température. L'objectif étant de constater si les mouvements des gouttelettes d'eau favorisent, ou non, la coalescence ainsi que l'obtention de la micro-explosion.
- Étude du comportement d'une émulsion en condition de micro-gravité. Ici, on cherche à savoir si les mouvements internes sont uniquement liés à la convection naturelle induite par variation locale de densité (également appelée *thermogravitaire*), ou bien, si il y'a une contribution de l'effet Marangoni, à savoir des variations locales de la tension de surface pouvant entraîner des mouvements de fluide. La réalisation d'expériences en micro-gravité permettra ainsi de s'affranchir des mouvements liés à la variation de densité.
- Mesure quantitative des champs de température au sein de la phase continue. Ici l'objectif est de quantifier les variations temporelles du champ de température, sous l'influence d'un chauffage infrarouge, méthode utilisé dans les bancs expérimentaux présentés ci-après.

Ces différents points sont traités à l'aide de dispositifs et méthodes optiques telles la Fluorescence Induite par Laser pour la visualisation de la phase dispersée et son amélioration en LIF "2 couleurs" pour la visualisation du champ de température. Des dispositifs embarqués sont également utilisés pour les expériences en micro-gravité.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le *laboratoire de Thermique et Energie de Nantes* (UMR CNRS 6607) et l'*Istituto di Scienze e Tecnologia per l'Energia e la Mobilità Sostenibili* (Consiglio Nazionale delle Ricerche-Naples). Les deux laboratoires collaborent depuis plusieurs années sur les thématiques liées aux émulsions (micro-explosion, émulsification par micro-canaux), ayant donné lieu à une Chaire pluri-annuelle *Optical Diagnostic for Energy*, permettant le déploiement de diagnostics optiques (visualisation d'écoulements par caméra rapide, Fluorescence Induite par laser) pour l'étude et la caractérisation de fluides complexes, tels les fluides diphasiques de type émulsion.

Le présent ouvrage comporte quatre chapitres. Le premier chapitre est une synthèse bibliographique de la littérature existante, introduisant dans l'ordre le concept d'émulsion, le phénomène de micro-explosion, puis les diagnostics optiques les plus répandus pour l'étude des écoulements fluides, des gouttes, et de la combustion en générale. Dans le second chapitre, une étude de l'influence du comportement de la phase dispersée (eau) sur le phénomène de micro-explosion à l'aide d'un banc expérimental basé sur la LIF (Fluorescence Induite par Laser) est réalisée. Le troisième chapitre présente une amélioration du banc LIF afin de mesurer le champ de température à l'intérieur d'une goutte d'huile soumise à un chauffage radiatif. Le dernier chapitre est consacré au développement d'un banc expérimental miniaturisé afin d'être utilisé en condition de micro-gravité dans une tour de chute libre. Le développement du banc est présenté, avant d'être utilisé afin d'étudier les mouvements internes dans une goutte en situation de micro-gravité (et

donc l'importance de l'effet Marangoni). L'objectif final étant la meilleure compréhension des phénomènes physiques à l'intérieur d'une goutte de combustible, et ainsi de maximiser la probabilité d'obtention ainsi que la qualité de la micro-explosion.

Enfin, une conclusion générale reprend les résultats les plus importants présentés dans la thèse. Une ouverture sur de potentielles perspectives futures est également proposée, à la fois du point de vue de la recherche sur la micro-explosion et les possibilités offertes par la micro-gravité, ainsi que sur de potentielles futures applications industrielles.

Chapitre 1

Synthèse Bibliographique

1.1 Introduction

Ce premier chapitre rassemble les notions de bases permettant de comprendre les systèmes diphasiques que représentent les émulsions et le phénomène de micro-explosion, ainsi qu'une synthèse bibliographique de la littérature scientifique sur le sujet. Différents points y sont abordés, dans l'ordre suivant :

- Les propriétés physico-chimiques des émulsions et leurs mécanismes de déstabilisation.
- Le phénomène de micro-explosion, notamment l'influence des différents paramètres sur sa probabilité d'apparition. Un intérêt particulier sera porté sur les phénomènes de convection interne.
- Les études en conditions de micro-gravité.
- Une présentation des méthodes optiques utilisées en mécanique des fluides, notamment pour l'étude des gouttes, seules ou en sprays (pour la visualisation d'écoulements et la mesure de température essentiellement).

1.2 Caractéristiques physiques des gouttes et des émulsions

1.2.1 Définition d'une émulsion

Une émulsion peut être décrite comme un mélange de deux liquides non-miscibles. Elle se distingue par la présence de deux phases, l'une continue et l'autre dispersée sous formes de gouttelettes (la phase continue étant le composant présent en quantité dominante). La caractéristique principale de ce mélange est la non-miscibilité des deux fluides, autrement dit la solubilité quasiment inexistante d'une phase dans l'autre. Cette immiscibilité est le résultat d'un défaut d'affinité électrique entre les molécules des deux phases.

Avant agitation, l'eau et l'huile se présentent donc sous la forme de deux phases séparées, l'eau se situant dans la partie basse du récipient de part sa masse volumique plus élevée que celle de l'huile. Ce système est qualifié de stable, il consiste en l'état présentant le minimum d'interactions entre les deux fluides. L'apport d'énergie au système, par divers mécanismes d'agitation que nous présenterons après, permet la dispersion d'une des phases dans l'autre, pendant une durée plus ou moins longue, jusqu'au retour à l'état initial. Nous verrons que l'un des principaux paramètres qui influencent la durée de vie d'une émulsion est la taille de la population de

micro-gouttes dispersées.

Pour la suite de ce manuscrit, nous adopterons la convention usuelle concernant la notation des émulsions :

- W/O pour les émulsions *Water-in-Oil*, d'eau dans l'huile, qui seront les mélanges étudiés ci-après. Cette notation sera conservée dans la suite de ce manuscrit.
- O/W pour les émulsions *Oil-in-Water*, d'huile dans l'eau, rencontrées dans la littérature.
- On trouve également des émulsions dites *multiplés*, par exemple W/O/W qui consiste en une émulsion d'eau dans l'huile à son tour disséminée dans phase aqueuse, mais elles ne seront pas l'objet de cette étude.

1.2.2 Tension de surface et mouillage

La tension superficielle représente l'élasticité à la surface (interface) d'un fluide. Au sein d'un fluide, les molécules subissent des interactions attractives à très faibles distances (interactions de Van Der Waals). D'un point de vue moléculaire, pour un fluide ayant une interface de contact avec un autre (par exemple la surface libre de l'eau avec l'air), certaines molécules proches de la surface possèdent une interaction avec les deux milieux. Ces molécules, comprises dans une couche ayant pour épaisseur la longueur caractéristique d'une molécule auront des interactions plus faibles d'un point de vue énergétique que celles prises au sein du liquide seul. Il y'a donc rupture de l'équilibre pour les molécules à la surface qui présenteront un excès d'énergie [11] par rapport aux molécules situées dans les deux milieux.

Comme tout système tend à minimiser son énergie, l'interface entre les deux fluides sera la plus faible possible, d'où la forme sphérique des gouttes, offrant la plus petite surface pour un volume donnée. La tension superficielle γ (également notée σ), est alors définie comme [12] :

$$\gamma \sim \frac{U}{2a^2} \quad (1.1)$$

U étant l'énergie de cohésion d'une molécule et a^2 la surface exposée.

L'énergie de cohésion dépend du fluide et de sa composition [12] :

- Les huiles dont les interactions inter-molécules sont relativement faibles ont une tension superficielle de l'ordre de 20 mJ/m^2 .
- L'eau qui comporte des liaisons hydrogènes (U plus important que pour l'huile), pour laquelle la tension superficielle est de 72 mJ/m^2 .

La tension superficielle, est une propriété pouvant varier selon la température. La littérature scientifique contient de nombreuses formules empiriques permettant de calculer l'évolution de cette dépendance. La première notion de dépendance à la température fut donnée par Eötvös en 1886 [13] :

$$\gamma V^{2/3} = K(T_c - T) \quad (1.2)$$

Avec γ la tension de surface, V le volume molaire, T_c la température critique et K la constante d'Eötvös pour tous les liquides.

L'une des conclusions d'Eötvös étant que la tension superficielle est une fonction qui varie linéairement avec la température. Cette affirmation a été vérifiée pour de nombreux liquides utilisés dans l'industrie [14].

La tension de surface d'émulsions a été mesurée, démontrant une influence majeure de la phase aqueuse, qui possède une tension de surface bien plus haute que les hydrocarbures (figure 1.1).

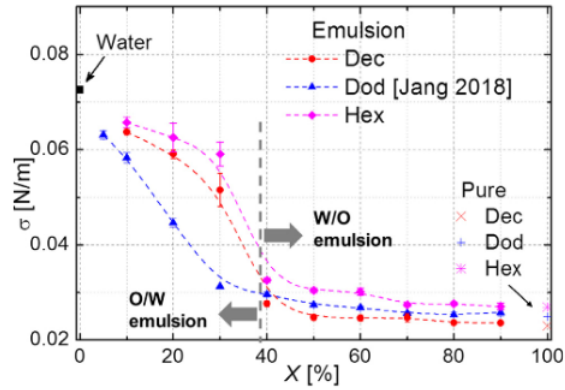


FIGURE 1.1 – Évolution de la tension interfaciale selon la concentration en hydrocarbure pour divers bio-carburants [15]

Angle de contact goutte-paroi

Dans le domaine de l'étude des gouttes, le contact goutte/support peut avoir un rôle important sur le comportement du liquide étudié. Une goutte liquide déposée sur un substrat solide formera un angle de contact plus ou moins grand selon si la paroi est dite "mouillante" ou non. Dans notre cas, la surface en contact avec la goutte (tube, micro-canal, fil de support) est un des paramètres extérieurs pouvant influencer sur la déstabilisation d'une émulsion. Le mouillage est défini comme l'angle de contact entre le solide et la paroi (figure 1.2). Les matériaux ont donc des

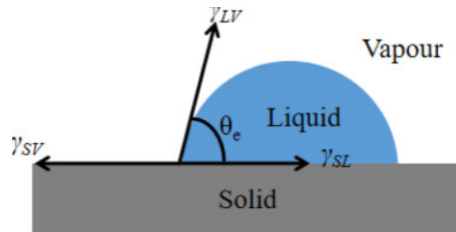


FIGURE 1.2 – La mouillabilité dépend de l'angle de contact liquide-paroi [16]

mouillabilités définies, en fonction du type de fluide déposé. Pour une goutte d'eau, si l'angle de contact liquide-solide est supérieur à 90° , le matériau est défini comme hydrophobe, alors qu'il sera hydrophile pour un angle de contact inférieur à 90° . Il existe des matériaux superhydrophiles-oléophobes, qui autoriseront l'eau à s'étaler tandis que l'huile restera sous forme de gouttes et inversement. Ces propriétés peuvent donc mener à la déstabilisation d'une émulsion. Il est donc important de sélectionner le type de paroi de contact lors d'une expérimentation. Cet angle de contact a été défini par Young comme suit [17] :

$$\cos \theta = \frac{\gamma_{SV} - \gamma_{SL}}{\gamma_{LV}} \quad (1.3)$$

Où γ_{SV} est la tension interfaciale entre le solide et l'air, γ_{SL} la tension de surface entre le liquide et le solide et γ_{LV} la tension superficielle entre le liquide et l'air.

Pour permettre à une goutte de former cet angle de contact, il faut au préalable s'assurer que son diamètre soit inférieur à une grandeur caractéristique appelée longueur capillaire. La longueur capillaire est la dimension en dessous de laquelle les effets liés à la gravité deviennent négligeables devant ceux de la tension de surface. Elle est égale à :

$$l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}} \quad (1.4)$$

1.2.3 Tensioactifs-Surfactants

Lors de la préparation d'émulsions, il est quasiment toujours indispensable de faire appel à un additif permettant de stabiliser le mélange. En effet, les émulsions sont des produits thermodynamiquement instables, et qui chercheront toujours à minimiser leur énergie (ici en trouvant la configuration ayant la plus basse énergie de surface, à savoir la séparation complète des phases). Les additifs visant à abaisser le niveau énergétique des émulsions, sont appelés tensio-actifs, surfactants, ou encore émulsifiants dans la littérature scientifique. Leur but principal est d'abaisser la tension interfaciale, notée $\gamma_{w/o}$ dans le cadre des émulsions W/O . Les surfactants sont composés de molécules dites *amphiphiles*, c'est à dire qu'elles contiennent à la fois un groupe hydrophile et un groupe hydrophobe. La partie hydrophile, (tête de la molécule) tient son affinité avec l'eau de part sa polarité. La partie hydrophobe, ou lipophile, appelée queue de la molécule, est quant à elle complètement apolaire et possède donc de bonnes affinités avec les corps gras tels que les huiles (figure 1.3). La sélection du surfactant adéquat se fait selon deux grandeurs :

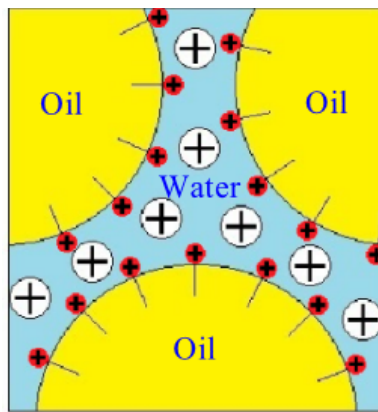


FIGURE 1.3 – Orientation des molécules de surfactant selon la polarité [18]

- La Critical Micelle Concentration, CMC (figure 1.4).
- La balance Hydrophile/Lipophile, HLB (tableau 1.1).

La CMC permet de mesurer la quantité de surfactant nécessaire à l'abaissement de la tension superficielle, et suit la relation décrite sur la figure 1.4.

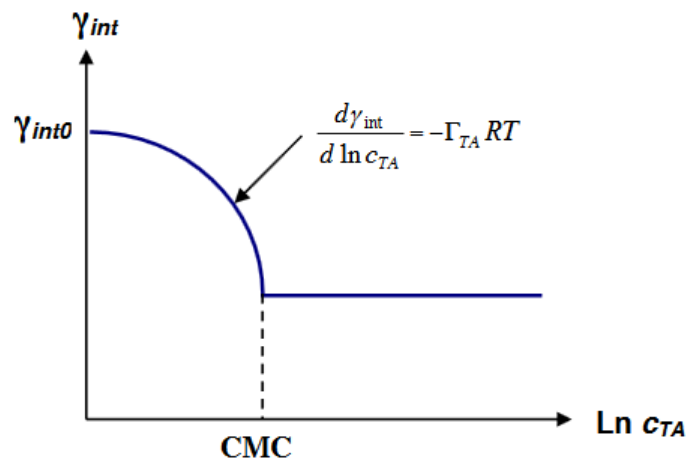


FIGURE 1.4 – relation décrivant la concentration optimale de surfactant [19]

La balance hydrophile-lipophile, HLB, permet de mesurer la solubilité préférentielle du surfactant dans l'un des deux composants. Cette échelle varie de 1 (complètement hydrophobe) à 20 (complètement hydrophile).

Il est donc important de tenir compte de ces deux indicateurs, afin de choisir le surfactant pertinent pour l'application désirée (émulsion W/O ou O/W), mais également la quantité juste, car une trop grande quantité de surfactant peut modifier les propriétés physico-chimiques de l'émulsion.

Type d'émulsion	Valeur du HLB
Emulsions W/O	3-6
Produit mouillant	7-9
Emulsions O/W	8-18
Détergents	8-15
Agents solubilisants	10-18

TABLE 1.1 – valeurs typiques de HLB par l'Imperial Chemical Industries [20]

1.2.4 Viscosité

La viscosité d'une émulsion est une des propriétés physiques les plus importantes à prendre en compte. Pour une émulsion, on pourra définir trois viscosités :

- μ_e la viscosité globale de l'émulsion.
- μ_c la viscosité de la phase continue (l'huile dans le cas d'émulsions W/O) qui joue un rôle important sur les phénomènes de coalescences que nous aborderons plus tard. En effet une forte viscosité de la phase continue défavorisera les mouvements des gouttelettes dispersées ce qui se traduira en une coalescence moins prononcée [21].
- μ_d la viscosité de la phase dispersée. Dans notre cas, la phase dispersée sera de l'eau, dont les propriétés visqueuses ont déjà été très vastement étudiées, notamment l'impact de la température [22].

Plusieurs modèles successifs ont visé à déterminer la viscosité d'une émulsion en prenant en compte plus ou moins de paramètres. Taylor [23] a amélioré le modèle d'Einstein en prenant en compte l'influence de la viscosité des différentes phases :

$$\mu_e = 1 + \left[2.5 \left(\frac{\frac{\mu_d}{\mu_c} + 0.4}{\frac{\mu_d}{\mu_c} + 1} \right) \right] V_d \quad (1.5)$$

V_d étant la fraction volumique de la phase dispersée.

Des modèles prenant en compte l'impact de la température ont également été mis au point. En effet, comme cité précédemment, l'influence de la température sur la viscosité est non négligeable (la viscosité de l'eau est divisée par deux dans l'intervalle 0-25°C).

Le modèle proposé par Ronningsen [24] prend en compte la variation de température :

$$\ln(\mu_e) = a_1 + a_2 T + a_3 V_d + a_4 T V_d \quad (1.6)$$

Avec a_1, a_2, a_3 et a_4 des coefficients expérimentaux initialement obtenus par Richardson en 1950 [25].

L'ASTM (American Society for Testing and Materials) organisme rédigeant les normes techniques dans divers domaines industriels recommande l'utilisation du modèle modifié de Walther (1931) :

$$\log_{10}(\log_{10}(\nu + \lambda)) = A - B \log_{10} T \quad (1.7)$$

A et B étant des paramètres empiriques, λ une constante et T la température.

Farah et al.[26] ont proposé un modèle basé sur l'expérience à partir de celui établi par l'ASTM :

$$\ln(\ln(\nu + 0.7)) = K_1 + K_2 V_d + K_3 \ln(T) + K_4 V_d \ln(T) \quad (1.8)$$

Il est établi que les émulsions W/O se comportent comme des fluides Newtoniens pour la plupart des hydrocarbures [26]. Cependant, dans certains cas, notamment pour des quantités d'eau importantes (de l'ordre de 30% dans le cas cité ci-après), l'émulsion peut adopter un comportement non-Newtonien qualifié de rhéo-fluidifiant. En effet, dans ce cas, le mélange peut voir sa viscosité diminuer quand le taux de cisaillement augmente, réduisant ainsi la résistance à l'écoulement [15] (figure 1.5). La composition du mélange peut donc être optimisée selon la viscosité finale désirée, qui peut avoir une importance sur la probabilité d'obtention de la micro-explosion, comme nous le verrons au paragraphe 1.4.4.

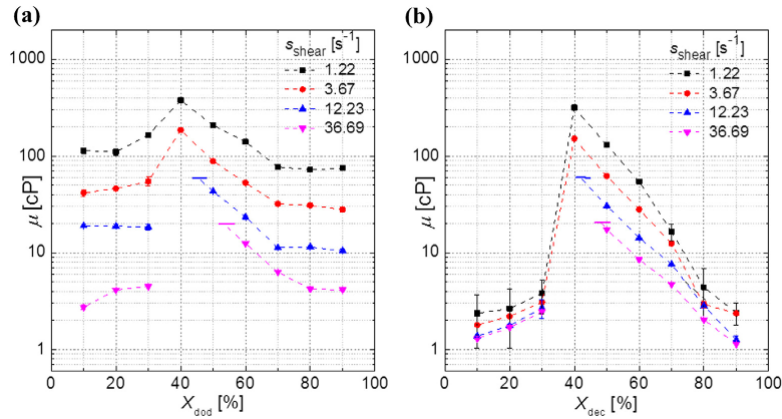


FIGURE 1.5 – Mesure de la viscosité dynamique d'émulsions W/O pour du a) Dodécane b) du Décane en fonction de la concentration [15]

1.3 Comportement d'une émulsion

Les émulsions étant des systèmes fondamentalement instables, elles possèdent un état qui évolue au fil du temps jusqu'à tendre vers la séparation de phase. Nous verrons, dans la présente section, que cette déstabilisation est une fonction de plusieurs paramètres telles la composition ou la granulométrie de la phase dispersée. Tout d'abord, les émulsions peuvent être classées suivant la taille des gouttes de la phase dispersée (gouttes d'eau dans le cas d'émulsions W/O) [27] :

- Les macro-émulsions, pour des rayons au-delà de $0.5 \mu\text{m}$.
- Les mini-émulsions, pour des rayons entre 0.1 et $1 \mu\text{m}$.
- Les micro-émulsions, pour des gouttes de rayon entre 1 nm et 100 nm .

La taille moyenne de la phase dispersée est un critère très important dans le domaine des émulsions. En effet, il influe notamment sur la stabilité de la préparation dans le temps. Le type

d'émulsion obtenu dépend également de la méthode utilisée pour mélanger les deux phases. Nous aborderons seulement le cas des macro-émulsions dans le cadre de ce manuscrit.

1.3.1 Procédés d'émulsifications

L'un des procédés d'émulsification les plus basiques consiste en la création de mayonnaise grâce à l'agitation mécanique de jaune d'oeuf (constitué à 50 % d'eau) et d'huile à l'aide d'un batteur. Aujourd'hui il existe un certain nombre de méthodes permettant de réaliser des émulsions et d'en contrôler la dimension caractéristique (i.e. la taille des gouttes de la phase dispersée). Une étude menée par Taha et al. [28] regroupe les procédés d'émulsifications les plus répandus et les résultats obtenus sur la taille moyenne des gouttes de la phase dispersée. ils sont résumés dans le tableau 1.2 :

Appareil	procédé d'obtention	Paramètres
Agitateur mécanique	L'agitateur génère des gradients de vitesse permettant la rupture de l'interface W/O	Diamètre des gouttes $>$ à $2 \mu\text{m}$, dépendant de la durée et de la vitesse d'agitation. Il s'agit de la méthode la plus courante
Mélangeur à ultrasons	Les ondes acoustiques induisent un phénomène de cavitation par différence de pression	Diamètre des gouttes : $0.1 < d_o < 2 \mu\text{m}$. Permet de contrôler finement la dispersion des gouttes. Facile d'utilisation
Homogénéisateur Haute Pression	L'écoulement biphasique passe à travers un orifice de géométrie définie et subit d'importantes gradient de pression générant un écoulement	Diamètre des gouttes : $0.1 < d_o < 1 \mu\text{m}$. La pression appliquée varie de 3 à 500 MPa [29]
Micro-canaux	Deux canaux comportant chacun une des phases de l'émulsion se rencontrent, le choc induisant des contraintes permettant la rupture des phases et l'émulsification. En général, le canal de la phase dispersée possède une section plus petite et est légèrement désaxé.	La taille des gouttes dispersées peut être grandement modifiée en fonction de la géométrie et des débits incidents [30]
Plaque tournante <i>colloid mill</i>	De manière analogue au rhéomètre, l'émulsion est injectée entre un disque mobile et un disque fixe. Le cisaillement induit permet de rompre les gouttes.	Diamètre des gouttes : $1 < d_o < 2 \mu\text{m}$
Membrane	Injection de la phase dispersée (eau pour les émulsions W/O) dans la phase continue à travers une membrane micro-poreuse (en verre ou céramique). Il est possible de contrôler la taille des gouttes dispersées selon les dimensions des pores de la membrane.	Diamètre des gouttes : $> 1 \mu\text{m}$. Généralement utilisée lorsque l'émulsion contient une importante fraction volumique de la phase dispersée [31]

TABLE 1.2 – procédés d'émulsifications

Un moyen très répandu de réaliser des émulsions est l'utilisation d'agitateurs magnétiques. Par analogie avec l'agitateur mécanique, un barreau est mis en rotation sous l'action d'un champ magnétique. Cette méthode a l'avantage de pouvoir facilement influencer sur la taille des gouttes d'eau dispersées selon la vitesse de rotation du barreau (figure 1.6).

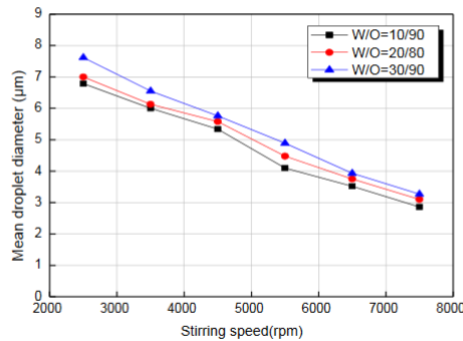


FIGURE 1.6 – Diamètre moyen des gouttes d'eau selon la vitesse de rotation pour un agitateur magnétique [32]

1.3.2 Phénomènes menant à la déstabilisation d'une émulsion

Une émulsion est, par nature, un produit instable, résultant d'un apport d'énergie permettant le mélange temporaire de deux liquides non miscibles. Comme tout système thermodynamiquement instable, une émulsion va tendre à revenir dans sa configuration initiale, à savoir la séparation totale des deux phases. Le temps nécessaire à la séparation des deux phases peut être mesuré afin de quantifier le niveau de stabilité. Plusieurs phénomènes peuvent mener à la déstabilisation d'une émulsion, ainsi que plusieurs paramètres tels que la viscosité des phases en présence, le type de surfactant utilisé, la granulométrie de la phase dispersée [33, 34, 35]. Nous présenterons ci-après les différents modes de déstabilisation d'une émulsion, résumés par la figure 1.7.

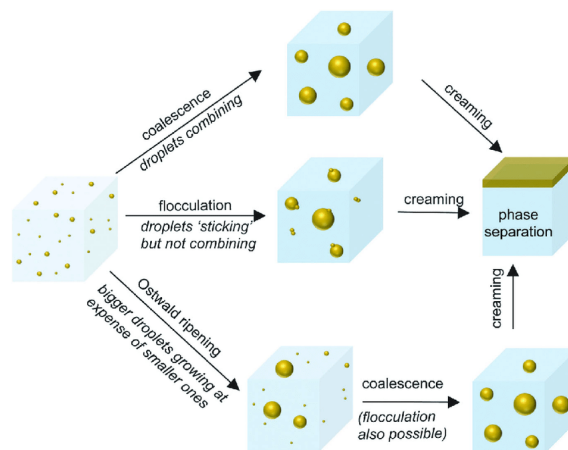


FIGURE 1.7 – mécanismes de séparation de phase d'une émulsion [33]

Parmi ces phénomènes on retrouve :

- Le crémage, qui est induit par la différence de masse volumique entre les deux composants. La gravité, par le biais de la poussée d'Archimède, va déplacer le composant dans la partie haute (si la masse volumique de la phase dispersée est plus petite que celle de la phase continue, cas des émulsions O/W), ou vers la partie basse (cas des émulsions W/O où la masse volumique de la phase dispersée est plus grande que celle de la phase volumique -

on parle alors de sédimentation). La force de poussée d'Archimède agissant sur une sphère d'eau dispersée dans l'huile est donnée par :

$$\vec{F}_g = \frac{4}{3}\pi r^3 \vec{g}(\rho_w - \rho_o) \quad (1.9)$$

Dans le cadre d'une descente de la gouttelette d'eau entraînée par la gravité, cette dernière peut être ralentie par la viscosité de la phase huileuse donnée par :

$$\vec{F}_d = -6\pi\mu_o r \vec{V} \quad (1.10)$$

Où μ_c est la viscosité de la phase continue (huile dans notre cas), et \vec{V} la vitesse de la goutte.

- La floculation, qui se manifeste par l'apparition de "flocons" (agrégats de gouttelettes sans coalescence), se produit pour des émulsions très fines, où l'écart-type du rayon moyen des gouttelettes dispersées est très faible. La floculation a lieu quand les interactions attractives l'emportent sur les attractions répulsives.

L'énergie d'attraction entre deux molécules peut être exprimée sous la forme suivante [12] :

$$E_{AB} = \frac{-k\alpha_A\alpha_B}{d^6} \quad (1.11)$$

Avec α_A, α_B les polarisabilités électriques des molécules, k une constante, et d la distance entre les deux molécules. Les forces répulsives de type électrostatique loi de Coulomb, ont quant à elle, une dépendance en d^{-2} . La conclusion d'un bilan entre les phénomènes d'attractions et de répulsions montre que pour des molécules proches, les forces attractives domineront, ce qui engendre la floculation.

- Le mûrissement d'Ostwald a tendance à apparaitre pour les émulsions polydisperses. La différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur d'une goutte, définie par la loi de pression de Laplace (1805), stipule que la pression au sein d'une goutte augmente de façon inverse à son rayon (plus le rayon de courbure de la goutte est grand, plus Δp est grand). Cette différence de pression entre les gouttes les plus petites et les plus grandes conduit à un gradient de potentiel chimique qui entraîne les gouttes les plus petites à "se vider" dans les plus grandes [36]. Il est possible d'obtenir un taux de murissement d'Ostwald ω_T constant aux temps longs : [36, 37] :

$$\omega_T = \frac{d\bar{r}^3}{dt} = \frac{8\gamma_{w/o}C_w^{eq}D_w v_w}{kT} \quad (1.12)$$

Où $\gamma_{w/o}, C_w^{eq}, D_w, v_w, k$ et T sont respectivement la tension interfaciale, la solubilité de l'eau, la diffusivité massique de l'eau, le volume molaire de l'eau, la constante de Boltzmann et la température. Dans le cadre où la fraction de la phase dispersée est grande, on parlera de perméation, où les taux de mûrissement d'Ostwald peuvent être 10 à 100 fois supérieurs à ceux mesurés pour des diffusions moléculaires [19]. Ces cas d'études ne sont pas l'objet de ce manuscrit.

- Enfin, le phénomène de coalescence qui est le phénomène ultime exprimant la fusion des gouttelettes de la phase dispersée en goutte plus grandes. Cette fusion est totalement irréversible et est favorisée par les phénomènes cités précédemment (par exemple la réduction de la distance entre les gouttes par floculation peut favoriser la coalescence). La coalescence peut être partielle, ou bien totale. Dans le deuxième cas, on se retrouvera en présence d'une goutte d'eau unique en partie basse de la goutte "mère".

Des modèles numériques ont également été développés afin de comprendre plus en détails la coalescence de deux gouttes et notamment l'impact du surfactant dissout dans le liquide environnant. Lu et al. [38] ont pu voir, en effectuant des simulations, qu'aux temps courts, le surfactant s'accumule dans les creux proches du film à cause de la contraction de l'interface entre les deux gouttes lors de leur approche. Il s'en suit un gradient de surfactant autour du périmètre des gouttes. Le liquide environnant est donc "charrié" vers les zones à forte concentration en surfactant (*Effet Marangoni*), et le surfactant est par la suite repoussé à l'arrière des gouttes.

1.3.3 Effet Marangoni et convection interne

L'effet Marangoni, (découvert en 1865 par le physicien Carlo Marangoni) décrit les mouvements d'un fluide siège d'un gradient de tension superficielle. Cet effet intervient dans le cadre des émulsions puisque l'abaissement de la tension superficielle est l'un des mécanismes clés pour la stabilité de ces systèmes. Dans le cas de l'effet Marangoni, le gradient de tension superficielle σ entraîne un mouvement du fluide dans la direction où σ est le plus élevé [39, 40]. La tension de surface décroît pour la plupart des liquides avec l'augmentation de la température, d'où l'apparition du gradient de σ . Cela explique donc pourquoi on peut observer des mouvements de convection dans le cas de gouttes chauffées en micro-gravité, où les mouvements convectifs liés aux variations de densité sont inhibés. Le nombre adimensionnel de Marangoni, noté Ma , permet de quantifier l'intensité du phénomène; il est défini par l'équation suivante :

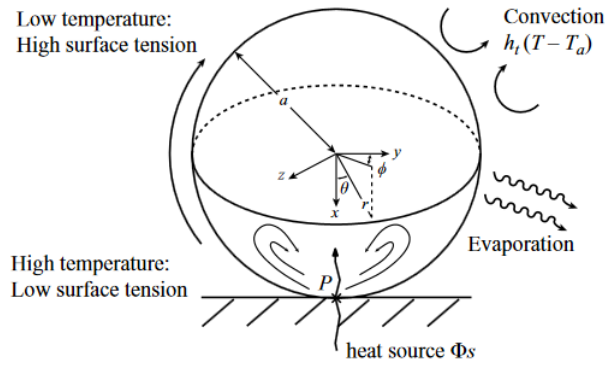


FIGURE 1.8 – Représentation de la convection liée à l'effet Marangoni [40]

$$Ma = \frac{d\sigma}{dT} \frac{L_c \Delta T}{\alpha \mu} \quad (1.13)$$

Où $\frac{d\sigma}{dT}$ représente le coefficient de variation de la tension de surface avec la température du fluide, L_c la longueur caractéristique, α la diffusivité thermique et μ la viscosité dynamique.

Dans le cas de gouttes, l'effet Marangoni peut s'avérer non négligeable. Les recirculations internes liées à cet effet sont représentées sur la figure 1.8. Il peut donc être judicieux de comparer le nombre de Marangoni, au nombre de Rayleigh, caractérisant la convection naturelle par variation de densité [41] :

$$Ra = \frac{g \beta \Delta T L_c^3}{\alpha \nu} \quad (1.14)$$

Avec β le coefficient de dilatation thermique, g la constante de gravitation, α la diffusivité thermique, ν la viscosité cinématique et ΔT la différence entre la température de paroi et la température au loin du fluide et L_c la longueur caractéristique. Dans le cas des gouttes $L_c = \frac{V_D}{\pi R^2}$ avec V_D le diamètre de la goutte.

Pour résumer, les deux types de convection interne observées au sein de gouttes chauffées sont donc les suivantes :

- La convection naturelle induite par gravité, dont le moteur est la variation locale de densité du fluide en fonction de la température. Le fluide localement chauffé verra donc sa densité diminuer, entraînant ainsi un mouvement ascendant. On l'appellera par la suite convection *thermogravitaire*.
- La convection "Marangoni", dont le moteur est le gradient de tension superficielle. La tension superficielle d'un liquide diminue typiquement dès lors que sa température augmente. En présence d'une source de chaleur et de l'apparition de gradient de tension de surface, le liquide se retrouve attiré dans les zones où cette tension est la plus élevée, créant ainsi des mouvements convectifs.

On peut trouver, dans les écrits scientifiques, des valeurs de nombre de Rayleigh critique au delà desquelles la convection thermogravitaire s'enclenche. Ces valeurs critiques sont de l'ordre de 1700 dans le cadre d'une plaque plane infiniment longue et de 2585 dans le cas d'une sphère [42]. La littérature est relativement peu fournie sur la contribution de chacun des différents types de convection.

Cependant, une étude menée par Diddens et al. [43] sur des gouttes binaires eau/éthanol propose une classification de l'écoulement interne en fonction des nombres de Marangoni et de Rayleigh, pour des angles de contact inférieurs à 90° (cas des gouttes suspendues). La figure 1.9 résume le phénomène régissant l'écoulement selon les nombres de Marangoni en abscisse et de Rayleigh en ordonnée. On distingue les régimes suivants : Rayleigh dominant (quand $Ra \gg Ma$), Marangoni et Rayleigh de même ordre de grandeur, et enfin le cas où $Ra \ll Ma$. Les travaux de Mandal et Baskhi [44] démontrent que pour plusieurs types de gouttes (de dimensions 2-3 mm) allant de l'eau à éthanol s'évaporant, le ratio entre les nombres de Marangoni et de Rayleigh est toujours supérieur à 1, traduisant une prédominance des forces liées aux gradients de tension de surface sur l'écoulement interne.

Pour résumer, les mouvements de convection naturelle (internes) pour une goutte sont induits à la fois par des variations locales de densité, ainsi que par des gradients de tension de surface. En pratique, il est difficile de distinguer expérimentalement la contribution d'un des types de convection par rapport à l'autre. Les expériences menées en micro-gravité permettent de s'affranchir des phénomènes induits par la gravité, et ainsi de mettre en avant la convection liée à l'effet Marangoni, afin d'en mesurer sa contribution. Nous étudierons, dans le cadre de ce manuscrit, l'impact de la convection interne au sein d'une émulsion sur le phénomène de micro-explosion. En effet, nous verrons que l'écoulement interne créé peut permettre d'advecter les gouttelettes d'eau dispersées et ainsi de les mettre en mouvement, et donc d'exercer une influence sur l'atomisation de la goutte.

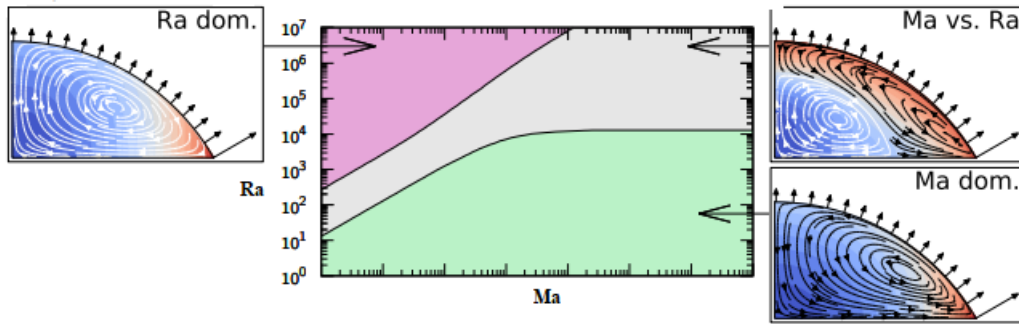


FIGURE 1.9 –

Classification du type d'écoulement interne au sein d'une goutte binaire selon les nombre Ma et Ra [43]

1.4 Étude du phénomène de micro-explosion

Le section 1.4 traite en profondeur du phénomène de micro-explosion, depuis son origine physique jusqu'à ses conséquences sur la combustion des gouttes d'émulsions. Nous commencerons par aborder sa phénoménologie, avant de détailler les différents paramètres régissant son apparition (influence des propriétés physiques des liquides composant l'émulsion, de la granulométrie de la phase dispersée, du mode de chauffage...). L'objectif premier de l'étude de l'atomisation de gouttes d'émulsions W/O peut être résumé comme étant la recherche de **l'augmentation de la fréquence d'apparition** de la micro-explosion d'une goutte d'émulsion et ce en vue de l'optimisation de la combustion.

1.4.1 Généralités

La micro-explosion d'une goutte d'émulsion W/O se produit lors du changement de phase soudain de la phase aqueuse dispersée au sein de la phase continue, qui se situe elle encore à l'état liquide. En effet, l'eau dispersée, lors de sa vaporisation brutale, va venir fragmenter l'enveloppe huileuse environnante en une multitude de gouttelettes secondaires appelées gouttes filles (figure 1.10).

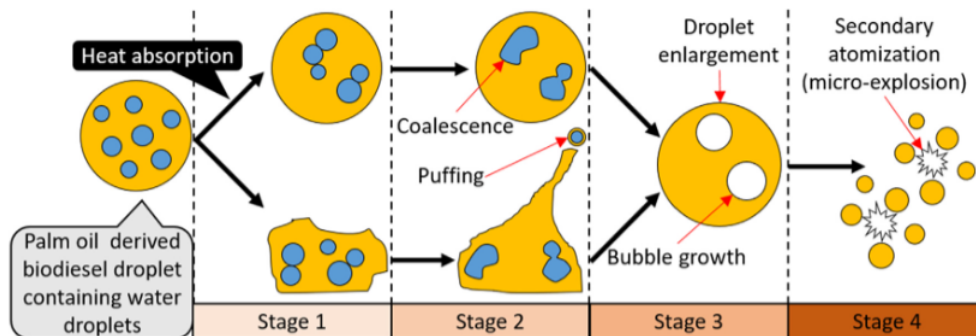


FIGURE 1.10 – illustration de la micro-explosion pour une émulsion W/O [45]

La micro-explosion a été premièrement décrite par Ivanov et Nefedov en 1965 [46], qui ont pour la première fois proposé que ce phénomène d'atomisation puisse être l'une des causes d'une combustion plus rapide, de meilleure qualité et réduisant les émissions de polluants.

Ce phénomène est essentiellement régi par la différence entre les points d'ébullition des phases qui composent l'émulsion. En effet, à pression atmosphérique, la vaporisation de l'eau survient à

100 °C. La plupart des hydrocarbures possèdent des points d'ébullition plus élevés, qui augmente selon la longueur de la chaîne carbonée les composants (figure 1.11). C'est cette différence de température de changement de phase qui est le moteur de la micro-explosion [6].

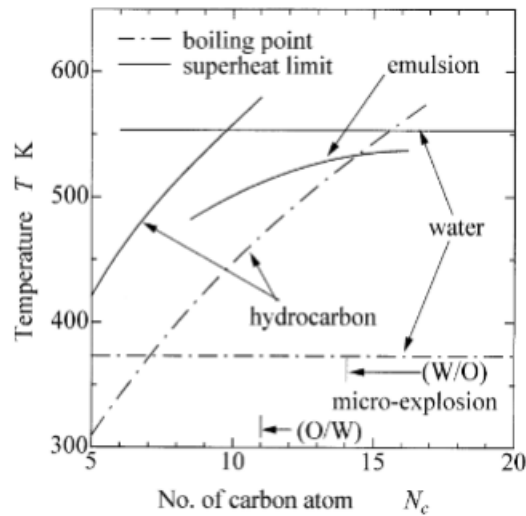


FIGURE 1.11 – température d'ébullition et limite de surchauffe des différents composants des émulsions [47]

Au premier abord, il peut paraître assez contre-intuitif d'ajouter de l'eau à un carburant afin d'améliorer l'efficacité de sa combustion. En effet, l'évaporation de l'eau présente dans l'émulsion nécessite un apport d'énergie ; c'est autant d'énergie fournie par la source qui ne sera pas disponible afin de brûler le combustible [48]. Pourtant, la présence d'une faible quantité d'eau possède des intérêts majeurs, à savoir la réduction de l'émission de certains polluants et l'amélioration de l'efficacité de la combustion grâce à la micro-explosion (les effets de la présence d'eau sur la diminution de la présence de certains polluants sont notamment détaillés en annexe).

On peut ajouter à ces bienfaits un impact plus physique engendré par la micro-explosion, qui contribue également à la baisse des émissions de suie et particules solides. En effet, l'atomisation d'une goutte d'émulsion résulte en une dispersion plus fine des gouttelettes et donc un meilleur mélange avec l'air [49] (on obtient un meilleur ratio surface/volume des gouttes en contact avec l'air ambiant). Ce mélange avec l'air optimisé, va entraîner une meilleure évaporation du liquide et donc une diminution du taux d'imbrûlés, notamment des suies et des particules solides.

Il est possible de quantifier précisément le nombre de gouttelettes secondaires résultantes d'une micro-explosion à l'aide de caméras rapides et hautes résolutions permettant de les traquer. Par exemple, Volkov et Strizhak [50] se sont intéressés à la micro-explosion de gouttes d'émulsions W/O basées sur différents carburants et ont pu mesurer très efficacement la surface totale exposée à l'air avant et après l'explosion. Il en ressort que la surface totale de combustible exposée a été multipliée par 6 entre la goutte d'émulsion (ou goutte *mère*) et les gouttelettes filles générées après l'atomisation (figure 1.12).

Nous venons de voir, que la micro-explosion permet d'améliorer la qualité de la combustion d'une goutte de carburant. Il semble donc pertinent de s'intéresser aux conditions permettant de générer un nombre maximal de gouttes secondaires, qui traduirait ainsi le meilleur mélange entre le combustible et l'air ambiant.

Mura et al. ont démontré qu'il existe un diamètre de Sauter optimal des inclusions d'eau avant

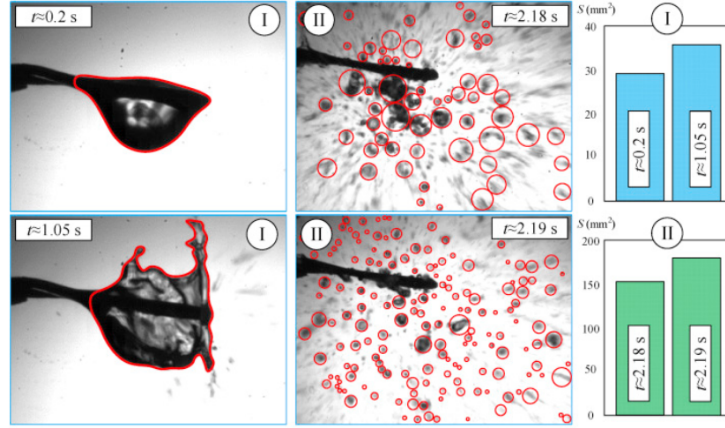


FIGURE 1.12 – Mesure de la surface totale exposée à l’air avant et après micro-explosion [50]

micro-explosion [10] (optimal signifie produisant le plus de gouttes *filles*). Le diamètre moyen de Sauter est défini comme étant le rapport volume par surface d’un ensemble de gouttelettes :

$$d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^k d_i^3 n_i}{\sum_{i=1}^k d_i^2 n_i} \quad (1.15)$$

Avec d_i le diamètre d’une goutte et n_i le nombre de gouttes ayant ce diamètre. Dans cette expérience, le diamètre moyen de Sauter optimal D_{32} était de $4.7 \mu\text{m}$, pour une émulsion W/O à base d’huile de tournesol et de surfactant SPAN 83. L’étude de Mura [10] établit également qu’en dessous et au dessus de ce diamètre optimal, le nombre de gouttes filles générées diminue (figure 1.13).

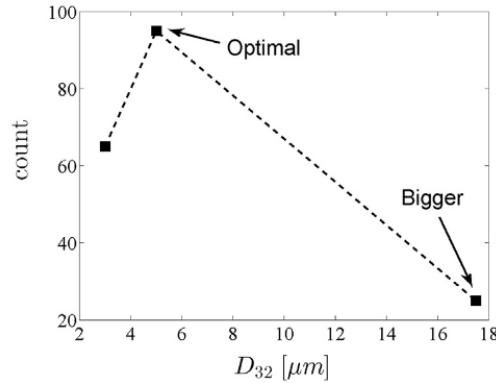


FIGURE 1.13 – Nombre de gouttes filles générées après micro-explosion selon le diamètre moyen de Sauter [10]

Cela peut être expliqué, pour les petits diamètres de gouttes d’eau par la mono-dispersion de l’émulsion qui réduira la coalescence (de par la différence de pression de Laplace trop faible), entraînant ainsi une atomisation moins puissante voir uniquement un **puffing** (qui signifie une atomisation seulement partielle de la goutte). Dans le cas de diamètres moyens plus importants, le nombre de gouttes générées diminue également.

Tarlet et al. se sont appuyés sur ce résultat pour mesurer le ratio entre l’énergie de surface et l’énergie cinétique des gouttes atomisées. Ce ratio a été défini comme suit [51] :

$$We = 12 \frac{\gamma_o 4\pi R^2}{\frac{1}{2} m V^2} \quad (1.16)$$

Où γ_o est la tension superficielle de l'huile et We le nombre de Weber. La figure 1.14 montre le ratio énergie de surface/énergie cinétique pour plusieurs gouttes identifiées dans le cadre d'une micro-explosion qualifiée "d'optimale" et une micro-explosion générant des gouttes filles moins nombreuses et plus grosses.

On voit donc que ce ratio est nettement plus grand pour la micro-explosion optimale, traduisant une prépondérance de l'énergie de surface.

Les auteurs ont donc pu déduire que la micro-explosion optimale produit des gouttes filles plus petites, mais qui ne sont pas nécessairement plus rapides que lors d'atomisations moins optimales. Un autre résultat intéressant de cette étude est la distribution des vitesses des gouttes filles suivant une loi log-normale, tout comme pour la distribution de l'énergie thermique [52].

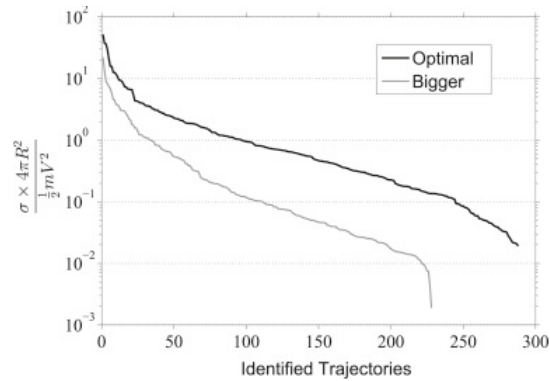


FIGURE 1.14 – Comparaison du ratio énergie de surface/énergie cinétique pour deux types de micro-explosion [51]

1.4.2 Métastabilité de la phase aqueuse

L'étude des émulsions et plus particulièrement de la micro-explosion, repose sur le principe du changement de phase anticipé d'une des deux phases par rapport à l'autre. Cependant, il existe un état, défini comme métastable, au cours duquel la phase de la matière n'est pas celle prédite par la thermodynamique. Par exemple, il est possible d'avoir de l'eau liquide au-delà de 100°C à la pression atmosphérique, alors que la thermodynamique du changement de phase nous indique que dans ces conditions l'eau se trouve à l'état vapeur. Le terme métastable induit cette notion de stabilité précaire, car la moindre perturbation fera basculer la matière dans sa phase dite de stabilité *préférentielle*.

Dans le cas qui nous intéresse, de l'eau liquide au-delà de son point d'ébullition est appelée eau surchauffée. Plusieurs expériences ont permis de repousser les limites de la métastabilité. Par exemple, Afpel [53] a obtenu une température maximale d'eau liquide de 279.5 °C à pression atmosphérique.

Cette zone de métastabilité se situe entre la courbe de saturation ou de changement de phase (également appelée courbe binodale) et les limites spinodales liquides et vapeurs du diagramme Pression-Température (figure 1.15)

La courbe binodale est donnée par l'équation suivante [55] :

$$\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} = \frac{R}{L_v} \ln \left(\frac{\frac{2\gamma(T)}{r} + P_{sat}(T_0)}{P_{sat}(T_0)} \right) \quad (1.17)$$

Tandis que la courbe spinodale, qui sépare le domaine de métastabilité du fluide et l'autre

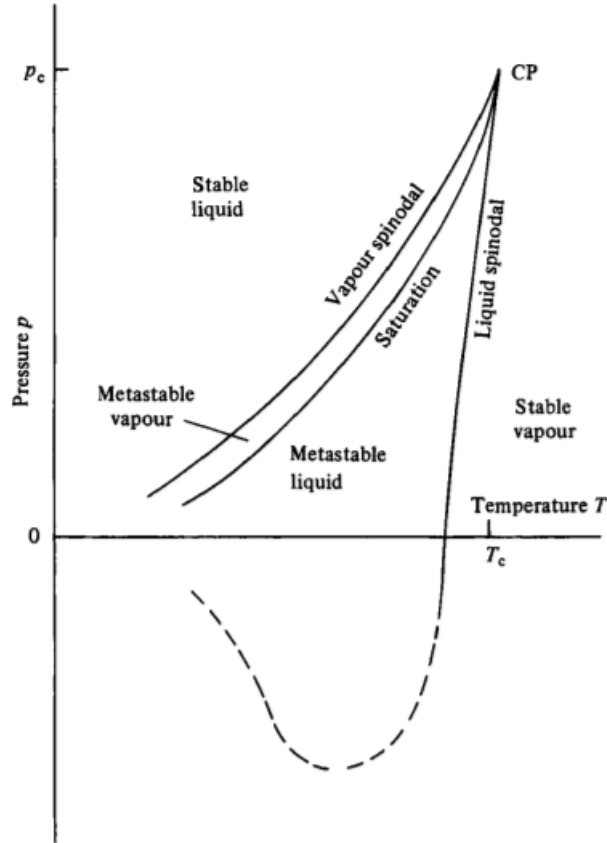


FIGURE 1.15 – Diagramme d'équilibre (p-T) [54].

phase, peut être définie comme [56] :

$$\left(\frac{\partial p}{\partial v}\right)_T = 0 \quad (1.18)$$

Dès lors que l'équation $\left(\frac{\partial p}{\partial v}\right)_T$ devient $>$ à 0, la frontière de métastabilité est passée, pour arriver à la nouvelle phase stable du fluide. Il est cependant à noter que la formulation exacte de la courbe spinodale est sujette à recherches et débats dans la communauté scientifique [56].

Comme le montre la figure 1.15, les deux courbes de limite spinodales (vapeur et liquide) se rejoignent au point critique, au delà duquel il devient impossible de distinguer les différentes phases de la matière.

Trois chemins permettent de passer la frontière de changement de phase et d'entrer dans le domaine de métastabilité (Skripov fut l'un des premiers à décrire ces expériences [57]) :

- Chauffage isobare; cette méthode a permis d'observer la dépendance de la durée de vie d'une goutte de liquide surchauffée à la température
- Dépressurisation isotherme en dessous de la pression de saturation
- Augmentation de la température à pression et volume constants

Le changement de phase liquide-vapeur (et donc la rupture de la métastabilité) est un phénomène cinétique, qui nécessite des forces attractives suffisantes entre les molécules pour induire un choc qui créera le premier noyau de vapeur. Deux modèles permettent de relier la dépendance vitesse de réaction / température :

- La loi d'Arrhenius (eq.1.19a), qui est une relation empirique, valable pour de nombreuses réactions chimiques
- L'équation d'Eyring-Pollanyi (eq.1.19b), qui est de la même forme que la loi d'Arrhenius mais se base cette fois-ci sur la thermodynamique statistique

$$\frac{d \ln k}{dT} = \frac{E^+}{RT^2} \quad (1.19a)$$

$$\ln \frac{k}{T} = \left(\frac{k_b}{h} + \frac{\Delta S^+}{R} \right) - \frac{\Delta H^+}{R} \frac{1}{T} \quad (1.19b)$$

Avec k la constante de vitesse, E^+ l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits, k_b la constante de Boltzmann, ΔH^+ l'enthalpie d'activation, ΔS^+ l'entropie d'activation (où l'enthalpie libre d'activation $\Delta G^+ = \Delta H^+ - T\Delta S^+$).

L'énergie d'activation E^+ est donc un paramètre influant sur la vitesse de réactions (les réactions ayant une énergie d'activation grande sont considérées comme lentes et inversement pour les réactions ayant une faible énergie d'activation). Dans le cas du changement de phase liquide-vapeur qui nous intéresse, l'énergie d'activation dépend de la **nucléation**, qui peut se déclencher de manière homogène ou hétérogène (la nucléation étant l'apparition du premier germe de vapeur au sein d'une phase liquide).

L'énergie de formation d'un germe de vapeur (phase α) au sein d'une phase β liquide est donnée par la formule suivante, représentant la différence entre un système avec germe et un système sans germe :

$$\Delta E = n(\mu_\alpha - \mu_\beta) + S_\alpha(T_\alpha - T_0) - V_\alpha(p_\alpha - p_0) + A\sigma \quad (1.20)$$

Avec μ_α et μ_β les potentiels chimiques des phases, n le nombre de moles du système, S_α , T_α , V_α , et p_α , l'entropie, la température, le volume et la pression de la phase vapeur, A l'air interfaciale et σ la tension interfaciale.

Dans le cas d'un embryon de vapeur au sein d'un liquide, les conditions d'équilibre thermique, mécanique et chimique sont successivement les suivantes [58] :

$$T_\alpha = T_\beta \quad (1.21a)$$

$$p_\alpha = p_\beta + \frac{2\gamma_{w/o}}{r} \quad (1.21b)$$

$$\mu_s(T_\beta) + v_\beta[p_\beta - p_s(T_\beta)] = \mu_s(T_\alpha) + RT_\alpha \log \frac{p_\alpha}{p_s(T_\alpha)} \quad (1.21c)$$

Dans le cadre d'un déséquilibre purement mécanique, l'équation (eq.1.20) devient, de part les conditions d'équilibre thermique et chimique :

$$\Delta E = \frac{4\pi}{3} r^3 \gamma_{w/o} \left(\frac{3}{r} - \frac{2}{r^*} \right) \quad (1.22)$$

La figure 1.16 montre qu'il existe un rayon appelé rayon critique r_c de formation d'un noyau sphérique. En dessous de r_c , la sphère aura tendance à disparaître tandis qu'au dessus de r_c la sphère grossira [58]. Ce rayon critique correspond au point d'annulation de la dérivée première et au minimum de la dérivée seconde de l'équation 1.22.

La différence de température d'ébullition entre les deux composants de l'émulsion semble être

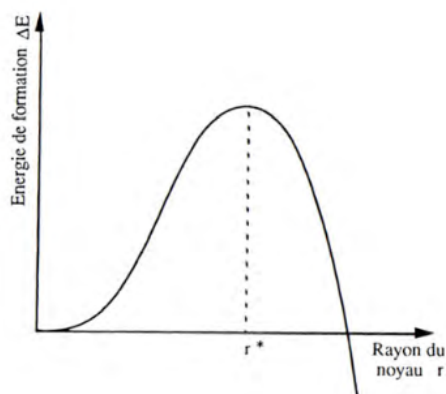


FIGURE 1.16 – Energie minimum de formation d’un noyau de vapeur [58].

un paramètre ayant une influence non négligeable sur la réalisation et la qualité de la micro-explosion. Rao et Basuo [59] ont étudié l’atomisation d’eau dans du décane, dodécane et tétradécane respectivement. Il en résulte que la fragmentation la plus complète est obtenue dans le cadre d’eau dispersée dans du tétradécane, car les deux composants possèdent la plus grande différence de température d’ébullition en comparaison avec les deux autres alcanes. Cela peut être attribué au fait que plus cette différence de température est grande, plus le degré de surchauffe au delà de la température d’ébullition de l’eau pourra être important ce qui conduira potentiellement à une atomisation plus forte.

Il peut donc s’avérer utile de s’intéresser à la mesure de l’impact du degré de métastabilité de la phase aqueuse sur la micro-explosion (qualité et délais notamment). Malheureusement, les seules méthodes permettant une mesure fiable de la température **au sein de la phase aqueuse uniquement** sont les mesures de champ de température (Fluorescence induite par Laser notamment); méthodes encore peu utilisées pour les gouttes d’émulsions (on citera les travaux de Moussa sur le sujet [7]).

Un autre moyen d’étudier la température d’une émulsion durant une période de montée en température est d’utiliser un système basé sur l’analyse thermique différentielle (DSC : *Differential Scanning Calorimetry*). La DSC permet d’obtenir le flux de chaleur apporté à un échantillon par rapport à une référence donnée. Les résultats de la DSC se présentent sous la forme d’un graphique typique représenté par la figure 1.17. Le pic représente le changement de phase de l’eau, qui n’est pas observé dans le cas d’une goutte d’huile pure.

Tarlet et al.[55] se sont intéressés à une émulsion contenant une goutte unique d’eau de diamètre compris entre 89 et 762 μm , simulant plusieurs gouttes d’eau ayant coalescées pour en former une plus grosse. Il en résulte que le degré de métastabilité de l’eau est compris entre 100 et 130°C, avec une moyenne de 119°C sur dix essais. Ces résultats sont en accord avec ceux établis par Mura [6] lors de l’investigation par DSC de la métastabilité d’une émulsion. Il est important de noter que plus le diamètre des gouttes d’eau est grand, **plus la probabilité de nucléation est grande** et donc plus le degré de métastabilité sera faible. Cette relation est due au fait que la limite spinodale, abordée au début du paragraphe, est une fonction du diamètre.

Sazhin et al. [60, 61] ont pu mesurer expérimentalement la différence entre la température d’ébullition théorique et la température de nucléation réelle en fonction de la vitesse de chauffe ($\dot{T} = \frac{dT}{dt}$). Cette différence, qui correspond au degré de métastabilité, croît avec la vitesse de montée en température jusqu’à atteindre un maximum de 12 °C dans l’étude citée.

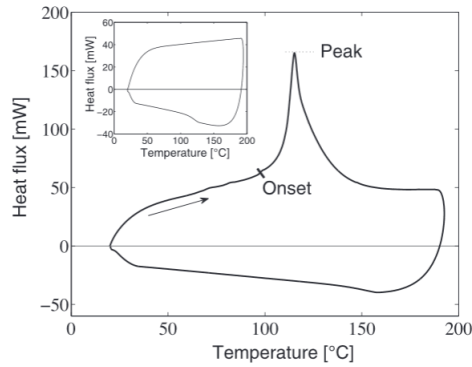


FIGURE 1.17 – Thermogramme d’une goutte d’émulsion mesuré par DSC. Le coin supérieur gauche représente le thermogramme d’une goutte d’huile pure

[55]

La corrélation suivante a été établie $T_N = T_B + 12 \times \tanh(\dot{T}/50)$ Pour $\dot{T} < 300 \text{ K/s}$ (figure 1.18); T_N représentant la température de nucléation, T_B la température d’ébullition, et \dot{T} la vitesse de montée en température.

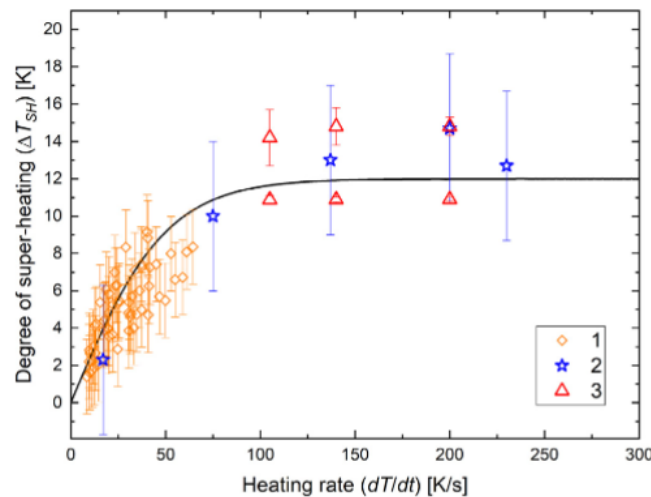


FIGURE 1.18 – Ecart entre température d’ébullition théorique et température de nucléation (début micro-explosion) selon la vitesse de montée en température [61]

A la lumière de travaux supplémentaires notamment apportés par Moussa [7], il a été possible d’approfondir cette relation entre taille des gouttes dispersées, métastabilité et qualité de la micro-explosion. En effet, l’utilisation de méthodes optiques telles que la LIF (Fluorescence Induite par Laser) et son extension en LIF 2 couleurs ont rendu possible la visualisation de la température en tout point de la phase dispersée (par opposition au thermocouple), et de rendre compte de la non-homogénéité de cette température que nous aborderons après. De plus, nous reviendrons plus en détails sur l’impact de la granulométrie des émulsions sur leur potentiel de micro-explosion, car il s’agit d’un des facteurs sur lequel nous avons un levier d’action.

Il est important de noter que l’une des conditions nécessaires à la réalisation d’une micro-explosion est que la température limite de surchauffe de l’eau soit inférieure à la température d’ébullition de l’huile, pour permettre de franchir ce palier de métastabilité avant que l’huile ne s’évapore totalement (c’est le cas pour les hydrocarbures qui nous intéressent).

1.4.3 Nucléation homogène et hétérogène

Nous présenterons ici succinctement les phénomènes de nucléation homogène et hétérogène, afin de comprendre quels sont les événements déclenchant l'apparition du premier germe de vapeur, générant alors un changement de phase.

Nucléation homogène

La nucléation homogène se produit lorsque un germe de vapeur apparaît au sein d'un liquide sans l'intervention d'éléments extérieurs (contact avec une paroi, collision...). Le liquide (dans notre cas l'eau) est sous forme métastable jusqu'à la température permettant l'apparition du premier germe de vapeur. Plusieurs théories ont contribué à l'élaboration du taux de nucléation homogène. La nucléation homogène est clairement stochastique, puisque l'évènement peut se produire en tout point du liquide. La première version de la théorie, développée par Wolmer et Weber en 1926 [62, 63], s'appuie sur les travaux de Gibbs (1886) sur la thermodynamique des changements d'états. Grâce à ces travaux, il a été possible de définir l'équation reliant le taux de nucléation (homogène) à la température :

$$J = J_0 \exp\left(\frac{\Delta G^+}{k_b T}\right) \quad (1.23)$$

Avec ΔG^+ l'enthalpie libre d'activation, k_b la constante de Boltzmann et T la température.

Néanmoins, il est assez difficile de prédire avec précision le moment d'apparition du premier germe de vapeur dans le cadre de la nucléation homogène, même si il existe des modèles statistiques comme celui développé par Abraham [62].

Nucléation hétérogène

La nucléation hétérogène se déclenche grâce à l'aide de facteurs extérieurs, tels qu'une surface rugueuse, une impureté, une interface entre deux liquides. Des formules permettant de calculer le taux de nucléation hétérogène pour différents cas (avec une surface solide, au contact d'un autre liquide) ont été énumérées par Kadota et Yamasaki [47] :

- Pour la nucléation d'un liquide en contact avec une surface solide :

$$J = N^{\frac{2}{3}} \phi \left(\frac{2\gamma}{\pi m b \varphi}\right)^{0.5} \exp\left(\frac{-16\pi\gamma^3 \varphi}{3kT(\eta P_\infty - P_0)^2}\right) \quad (1.24)$$

Où φ et ϕ sont des fonctions de l'angle de contact entre la goutte et la paroi, B une constante, γ la tension interfaciale, P_∞ la pression partielle de vapeur à l'équilibre et P_0 la pression à laquelle se trouve le liquide.

Dans ce cas le taux de nucléation dépend grandement de l'angle de contact liquide/paroi ; on obtiendra un taux de nucléation plus grand pour des parois mouillantes dont l'angle de contact θ se rapproche de 0). Ce paramètre peut être intéressant car il permet d'avoir un contrôle sur la nucléation (traitement de surface).

- Pour la nucléation à l'interface liquide-liquide :

$$J = N^{\frac{2}{3}} \phi \left(\frac{2\gamma_a}{\pi m b \psi}\right)^{0.5} \exp\left(\frac{-16\pi\gamma_a^3 \psi}{3kT(\eta P_\infty - P_0)^2}\right) \quad (1.25)$$

Cette fois ψ est une fonction qui dépend des tensions superficielles $\gamma_{a,b}$ des différents liquides et de la tension interfaciale γ_{ab} . La nucléation pourra avoir lieu soit à l'intérieur du fluide métastable, à l'intérieur de l'autre fluide (huile dans le cas des émulsions W/O) où à la frontière séparant les deux fluides, selon le rapport des différentes tension de surface. [64, 5]

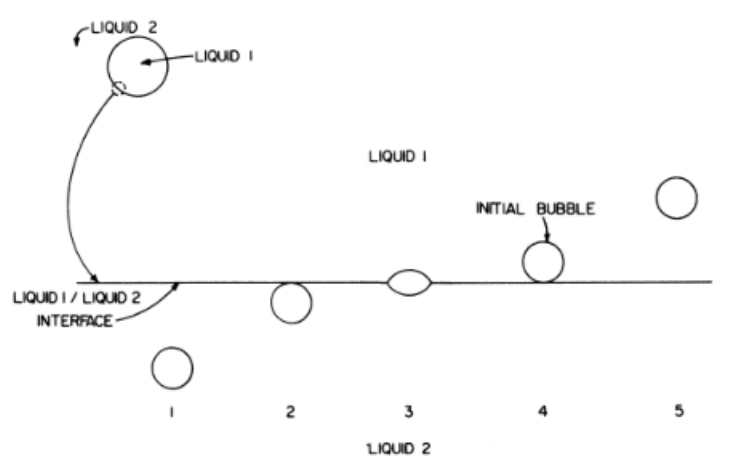


FIGURE 1.19 – Différents sites de nucléation dans une émulsion W/O [65]

La figure 1.19 issu de l'étude d'Advesian [65] montre les cinq sites de nucléation possibles, respectivement dans le volume d'eau, au sein de l'eau à la frontière avec l'interface W/O, à l'interface W/O (forme lenticulaire du germe), au sein de l'huile à la frontière avec l'interface W/O, et au sein du volume d'huile. La nucléation se produira à l'endroit où la tension de surface est la plus faible [5]. Dans le cadre d'émulsions W/O, et en présence de surfactant visant à diminuer au maximum la tension interfaciale $\gamma_{w/o}$, le site de nucléation le plus probable se trouvera donc à l'interface entre l'huile et l'eau.

La figure 1.20 montre l'évolution du diamètre d'une goutte d'émulsion diesel-ethanol/eau en fonction du temps, dans le cas de la nucléation homogène (localisée au centre de la goutte) ou bien hétérogène (localisée au bord de la goutte). Nous pouvons constater que, dans le cas de la nucléation hétérogène, un grand nombre de "puffings intermédiaires" se produisent. Pour la nucléation homogène, la goutte est complètement stable jusqu'à son changement de phase, car l'énergie accumulée dans ce cas est plus grande et permet une fragmentation complète de la goutte.

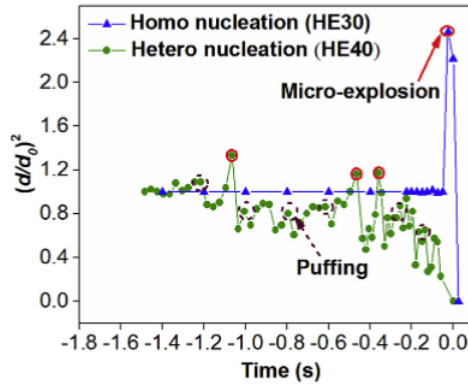


FIGURE 1.20 – Evolution du diamètre d'une émulsion avant micro-explosion/puffing [66]

1.4.4 Influence des propriétés physiques des composants

Les propriétés physico-chimiques des liquides composant l'émulsion jouent un rôle important sur la probabilité de réalisation ainsi que sur la qualité de la micro-explosion. Parmi ces propriétés, la viscosité, la tension de surface et la tension interfaciale, la masse volumique ainsi que la température d'ébullition des composants et enfin la composition globale de l'émulsion sont les paramètres les plus étudiés expérimentalement. Nous présenterons, dans cette section, des résultats qui rendent compte de l'influence de chacun de ces paramètres pris séparément.

Pour commencer, Antonov et al. [67] ont étudié à tour de rôle l'influence de la viscosité, de la tension de surface et la tension interfaciale d'une émulsion W/O sur le délais avant micro-explosion.

Comme le montre la figure 1.21, les résultats de cette étude permettent de mettre en lumière plusieurs éléments :

- Plus la viscosité de la phase continue est élevée, plus le délai avant micro-explosion est grand [68]. D'une part, cela peut être expliqué par le fait que la viscosité réduit les mouvements internes et donc la coalescence qui semblerait être phénomène augmentant la probabilité ainsi que la puissance de la micro-explosion. L'augmentation de la viscosité de la phase continue traduira également une couche huileuse plus difficile à atomiser et nécessitant une plus grande énergie de rupture.
- Plus la tension interfaciale combustible/eau est élevée (i.e. plus la concentration d'émulsifiant est faible), plus le délai avant micro-explosion diminue. Cette tendance est liée au fait que l'émulsifiant ou surfactant tend à stabiliser l'émulsion et donc à retarder les mécanismes permettant d'enclencher la micro-explosion. Les auteurs expliquent également l'allure de ces courbes par le fait que plus la tension interfaciale eau/diesel est faible, plus les liaisons entre molécules de la même espèce sont fortes, et donc, que l'énergie nécessaire à la dislocation de ces liaisons est grande.
- Plus la tension de surface de la phase continue (ici le diesel) est élevée, plus le délai avant micro-explosion diminue, sans explications supplémentaires données par les auteurs.

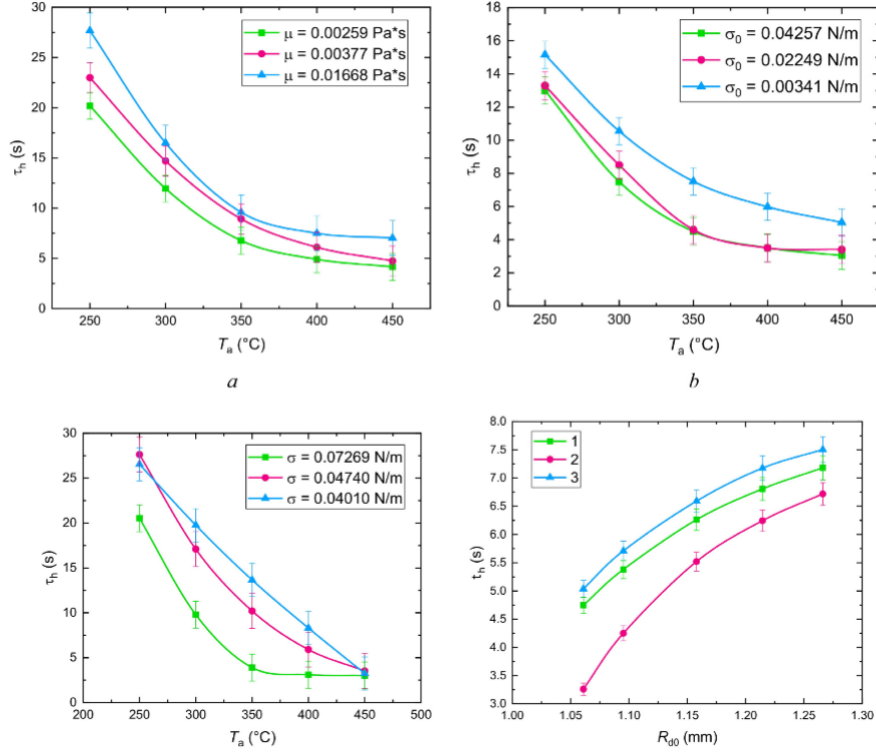


FIGURE 1.21 – Influence de la viscosité (a), de la tension interfaciale (b), tension de surface (c) et du rayon initial (d) de la goutte sur le délai de micro-explosion [67]

1.4.5 Influence de la quantité d'eau et sa granulométrie sur la micro-explosion

Diamètre moyen

La dispersion (répartition des gouttes d'eau selon leur taille) d'une émulsion ainsi que la quantité de surfactant sont les facteurs clés définissant la durée durant laquelle une émulsion reste stable. En effet, les différents phénomènes menant à la déstabilisation d'une émulsion sont grandement influencés par ce niveau de dispersion, comme nous l'avons vu précédemment. Il peut donc être intéressant de caractériser l'émulsion étudiée, notamment par le diamètre moyen des gouttes ainsi que son écart-type. Dans le domaine des émulsions, plusieurs diamètres équivalents sont utilisés pour quantifier la granulométrie, le plus répandu étant le diamètre moyen de Sauter, défini dans la section 1.4.1. L'utilisation de microscopes permet l'identification de la population de gouttes ainsi que la mesure de leur taille.

Le critère important à prendre en compte lors de l'étude d'un échantillon de population statistique est le nombre minimal d'individus (ici de gouttes) à considérer afin d'avoir un échantillon représentatif de la population globale. Ce nombre minimal est défini dans ce cas par la loi Normale :

$$n_{min} = \left(\frac{c \times u(1 - \frac{\alpha}{2})}{G_I} \right)^2 \quad (1.26)$$

Avec c le ratio entre l'écart type et le diamètre moyen des gouttes d'eau, appelé polydispersité [27], α et u des paramètres de la loi Normale et G_I l'incertitude souhaitée.

Il est nécessaire de ne pas prendre une valeur de G_I trop faible lors d'identifications manuelles des gouttes sous peine de se retrouver avec un échantillon trop important à mesurer.

La distribution de taille des gouttelettes d'eau dispersées dans une émulsion s'apparentera,

le plus souvent à une loi de type log-normale. La fonction de densité de probabilité permet de passer d'une représentation de valeurs discrètes (nombre fini de goutte) à une représentation continue [27] (figure 1.22) :

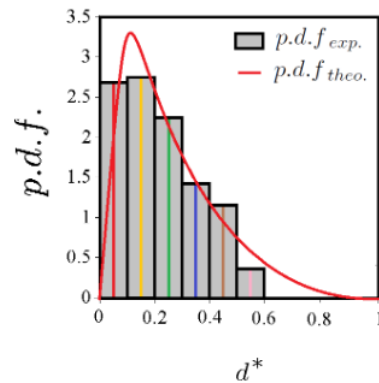


FIGURE 1.22 – r
 épartition de la population de gouttes en fonction du diamètre normalisé [27]

D'autres distributions (bimodales, normales, poly-dispersées) sont également rencontrées.

Plusieurs études [69, 70, 8], s'accordent pour démontrer que le taux de succès de micro-explosion dépend grandement de la quantité d'eau dans l'émulsion et de sa granulométrie. En effet, les émulsions trop fines (ayant une répartition des tailles de gouttes trop resserrée) ne sont pas soumises à des mécanismes de déstabilisations permettant aux gouttes d'eau de coalescer, tandis que les émulsions grossières démontrent le plus haut taux de micro-explosion (figure 1.23)

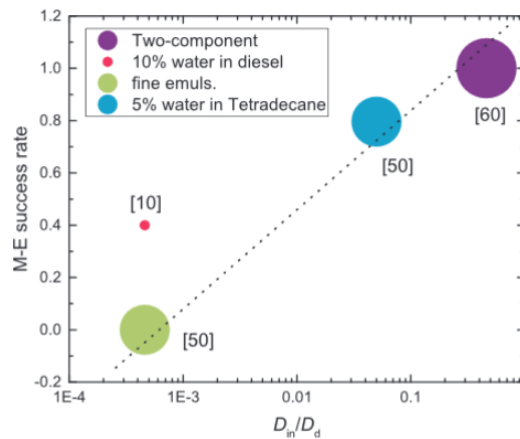


FIGURE 1.23 – Taux de réalisation d'une micro-explosion en fonction de la taille initiale des gouttes d'eau [8]

Il paraît donc primordial de bien maîtriser la structure de l'émulsion ainsi que la méthode d'agitation, afin de trouver le compromis idéal entre stabilité (notamment durant la période de conservation dans un réservoir par exemple), et un taux de coalescence suffisant permettant d'aboutir à la micro-explosion.

Cette dépendance de la micro-explosion à la granulométrie a été confirmée dans l'expérience menée par Moussa et al. (figure 1.24) ; qui montre clairement une augmentation de la probabilité de micro-explosion avec le diamètre moyen. On voit donc bien que les fortes poly-dispersions,

plus propices à la coalescence permettent d'augmenter la probabilité de micro-explosion.

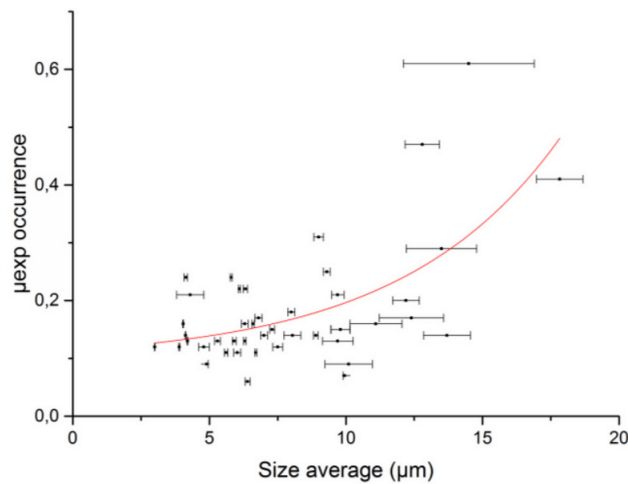


FIGURE 1.24 – Probabilité de micro-explosion selon la taille moyenne des gouttes dispersées [21]

L'importance de la coalescence sur l'atomisation d'une goutte d'émulsion est bien représentée par le nombre d'Ohnesorge [7, 21]. Il est défini par l'équation suivante :

$$Oh = \frac{\mu_c}{\sqrt{\gamma_{w/o}\rho_w D}} \quad (1.27)$$

Avec $\gamma_{w/o}$ la tension interfaciale entre l'eau et l'huile, ρ_w la masse volumique de l'eau, μ_c la viscosité de la phase continue (l'huile) et D le diamètre moyen des gouttes d'eau.

Ce nombre adimensionnel exprime le rapport entre les forces visqueuses et les forces d'inertie. Un nombre d'Ohnesorge élevé indique donc une domination des forces visqueuses, et par ce fait, une capacité pour les gouttes dispersées à se mouvoir dans la phase continue diminuée, et inversement pour un Oh faible. La même étude a démontré que la probabilité de micro-explosion diminue avec l'augmentation du nombre d' Oh .

Ces résultats sont appuyés par Khan et al.[71], qui ont pu observer des micro-explosions pour des émulsions préparées à l'aide d'agitateurs mécaniques, tandis qu'aucune atomisation ne fut réalisée pour des émulsions plus fines réalisées à l'aide de mixeurs à ultrasons. La préconisation est donc de réaliser des émulsions dont le diamètre moyen est supérieur à $2 \mu\text{m}$. Un compromis doit être trouvé entre **composition, stabilité et dispersion** des gouttes en vue d'optimiser le phénomène.

Importance de la coalescence

Nous avons précédemment abordé le mécanisme de coalescence des gouttes de la phase dispersée d'une émulsion. Ce phénomène, qui, à première vue enclenche la séparation des phases est en réalité un point clé concernant l'apparition de la micro-explosion. Kimoto et al. [9] ont pu observer à l'aide de caméras rapides que la micro-explosion avait lieu pour des émulsions polydispersées (avec des gouttes ayant des diamètres moyens supérieurs à $10 \mu\text{m}$), tandis qu'elle n'apparaissait pas pour des émulsions très finement dispersées (diamètre moyen de 1 à $2 \mu\text{m}$). Suzuki et al.[72] ont utilisé du bleu de méthylène, un colorant soluble uniquement dans l'eau, afin de mettre en évidence la coalescence des gouttes, et l'impact de la distribution de taille de la phase dispersée sur la micro-explosion.

La figure 1.25 montre la probabilité d'occurrence de la micro-explosion en fonction du ratio initial volume d'une goutte d'eau /volume de la goutte d'émulsion (avec le volume d'une goutte d'eau calculé à l'aide du diamètre moyen de Sauter). On voit donc que plus ce ratio augmente (et plus la taille moyenne des gouttes dispersée est importante), plus la micro-explosion a de chances de se produire.

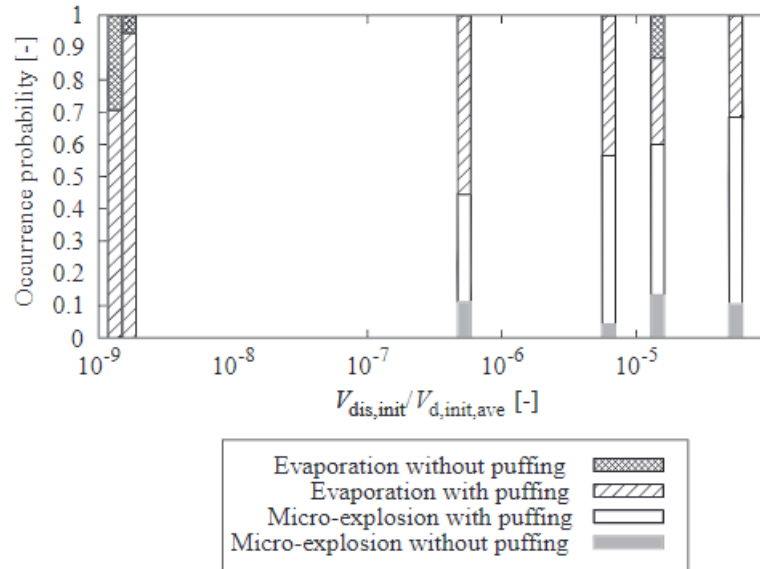


FIGURE 1.25 – Influence du volume d'eau sur la probabilité de micro-explosion [72].

Par ailleurs, l'utilisation de caméras rapides et à haute résolution ont rendu possible la visualisation du mécanisme de coalescence [73]. La figure 1.26 démontre très bien ce phénomène pour deux gouttes d'eau dans une émulsion.

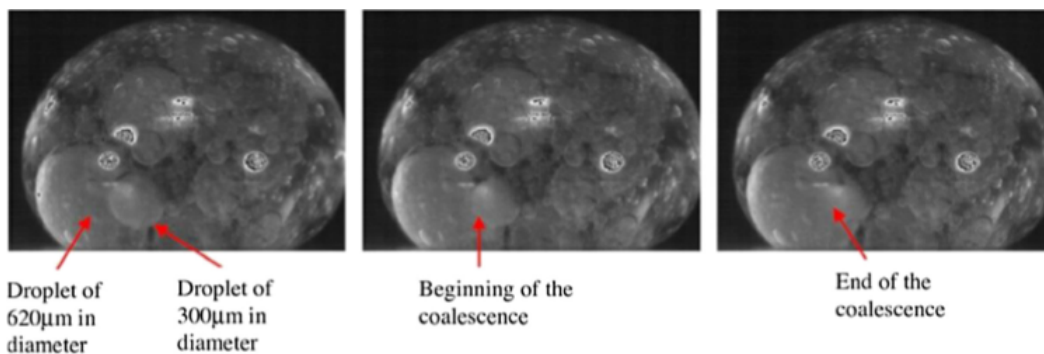


FIGURE 1.26 – Cliché d'une coalescence entre deux gouttes d'eau à l'aide d'une caméra CCD [74]

Rôle du surfactant

La granulométrie d'une émulsion semble donc s'inscrire parmi les facteurs les plus influents concernant l'obtention de la micro-explosion. Cette granulométrie et plus particulièrement son évolution temporelle, par les mécanismes de déstabilisation divers résultant le plus souvent en coalescence, est grandement dépendante de la concentration en surfactant au sein de l'émulsion. En effet, il a été observé expérimentalement que pour des concentrations en surfactant faibles, **la coalescence est facilitée** [75].

L'étude expérimentale menée par Shen et al. [75] démontre également l'influence de la coalescence sur la température de l'eau. En effet, dans le cas où la coalescence est la plus avancée, l'eau semble subir une montée en température plus importante (potentiellement de par le taux d'évaporation moins important). La figure 1.27 montre que pour une quantité de surfactant plus faible (et donc une coalescence facilitée), la température (prise en un point de la goutte à l'aide d'un thermocouple) semble augmenter de manière plus importante après coalescence par rapport à la goutte où la coalescence ne survient pas. Cependant, cette conclusion est à prendre avec précaution car une mesure de température ponctuelle au sein d'une émulsion peut ne pas être un indicateur fiable en raison des forts gradients de températures pouvant s'y trouver.

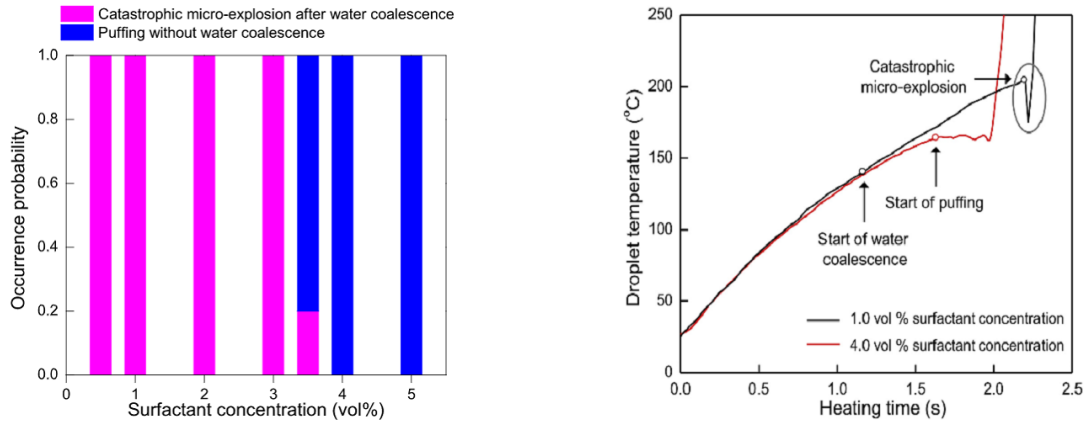


FIGURE 1.27 – Quantité de surfactant sur la probabilité de micro-explosion (gauche) Température de goutte selon le degré de coalescence (droite) [75]

D'autre part, des études sur l'impact de la quantité de surfactant sur la probabilité de l'occurrence de micro-explosion, ont pu démontrer que pour une quantité élevée de surfactant, la micro-explosion est inhibée [75, 76]. Dans le cadre de ces expérimentations, aucune micro-explosion n'a été observée pour des teneurs en surfactant supérieures à 3.5%_{vol} (à noter que dans la majeure partie des applications industrielles, les concentrations sont de l'ordre de 0.5 à 1%)(figure 1.28).

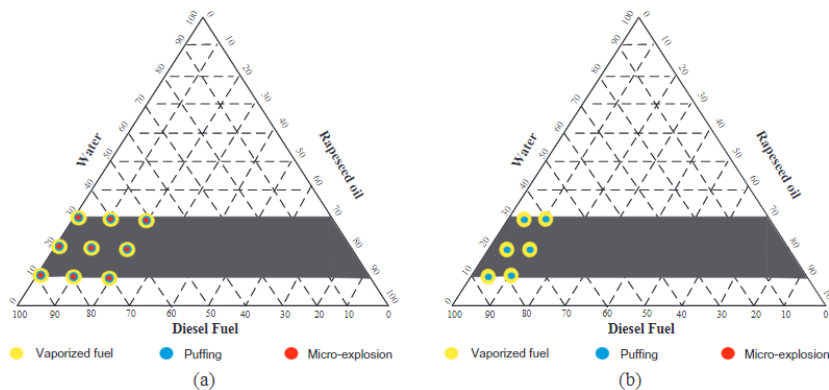


FIGURE 1.28 – Diagramme ternaire des émulsions :gauche : sans surfactant -droite : avec surfactant

[76]

De plus, Suzuki et al. [72] ont remarqué que, lors de la montée en température de l'émul-

sion, l'efficacité du surfactant diminue, résultant en une augmentation de la tension interfaciale $\gamma_{W/O}$, ce qui facilitera à nouveau la coalescence. Un critère intéressant pouvant être pris en compte serait donc la température à partir de laquelle le surfactant utilisé perd en efficacité. Cela permettrait d'une part, un stockage de l'émulsion à température ambiante sans déstabilisation, puis, le déclenchement de la coalescence à partir d'une certaine température entraînant la micro-explosion.

1.4.6 Influence du mode de chauffage

Le mode de transfert de chaleur depuis la source vers la goutte (conductif, convectif ou radiatif) est également un paramètre jouant un rôle important, notamment sur le délais entre le début du chauffage et la micro-explosion. Les transferts thermiques entre la source de chaleur et la goutte font l'objet de nombreuses études expérimentales et numériques.

Antonov et al. [77, 78] se sont intéressés à l'impact du type de transfert thermique lors du chauffage d'une goutte à deux composants huile et eau (différente d'une émulsion car ici les composants sont séparés en deux phases distinctes dans la goutte). Comme le montre la figure 1.29, le temps de chauffage avant l'atomisation de la goutte est toujours plus élevé pour le mode radiatif.

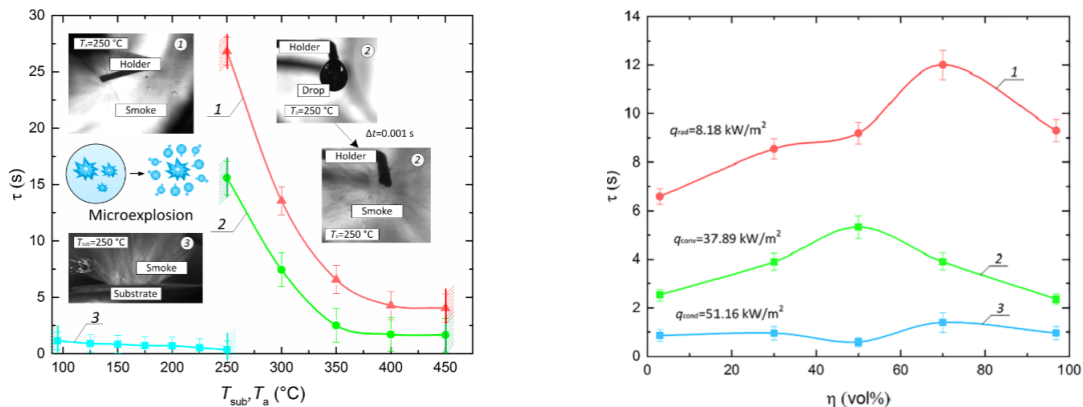


FIGURE 1.29 – **Gauche** : durée avant micro-explosion selon la température pour différents type de chauffage- **Droite** : Influence de la composition de la goutte **Légende** : (1) radiatif - (2) convectif - (3) par conduction

[77]

Les paramètres de température de surface du milieu radiatif ainsi que les propriétés optiques sont des critères ayant une très grande importance sur la quantité du rayonnement reçue par la goutte. Ce mode de transfert est très intéressant, car on trouve d'importants échanges radiatifs au sein d'une chambre de combustion, notamment depuis la flamme et les parois. Par ailleurs, il a été montré que la micro-explosion d'émulsions W/O pouvait être obtenue avec un flux minimal dans le cas du chauffage radiatif (par comparaison aux flux convectif et conductif). Dans ce cas de figure, nous avons à faire à un chauffage volumique, par opposition au chauffage surfacique pour les modes convectif et conductif, qui pourrait permettre de chauffer plus efficacement les gouttelettes d'eau dispersées (bien que le modèle de calcul des flux présenté dans l'article reste discutable).

Un autre résultat intéressant de l'étude menée par Antonov et al. [77] est le ratio $Surface/Surface_{initiale}$ après désintégration de la goutte-mère selon le type de chauffage. En effet, il a été constaté que ce ratio est 7 à 10 fois plus grand pour le chauffage radiatif que pour les modes convectif et par conduction respectivement. D'après ces observations, le mode radiatif permettrait donc d'obtenir un nuage aérosol ayant le plus grand nombre de gouttelettes filles ainsi que la dispersion la plus fine. Le chauffage radiatif étant celui ayant le plus long délai avant la micro-explosion (par opposition au schéma conductif, dans lequel l'eau entre en contact avec le substrat chaud, réduisant considérablement la durée de chauffage), la goutte d'émulsion a donc le temps d'atteindre de plus hautes températures en tout point, et ainsi d'accumuler plus d'énergie, permettant d'obtenir la micro-explosion la plus brutale. Le transfert de chaleur radiatif permettrait donc d'obtenir un niveau de métastabilité plus important avant le déclenchement de l'atomisation.

Par ailleurs, la température du milieu ambiant, (et donc la puissance du transfert de chaleur convectif ou conductif vers la goutte), possède un impact important sur le nombre de gouttes filles générées. L'augmentation de la température du milieu ambiant permet d'intensifier le phénomène de micro-explosion, résultant en une fragmentation plus brutale de la goutte mère [79, 80]. En plus de la température du milieu ambiant et du mode de chauffage, l'influence de la température initiale de l'eau dans une goutte diphasique (ajout d'une goutte d'eau unique dans une goutte d'huile, mais donc pas sous forme d'émulsion) a également été étudiée (figure 1.30).

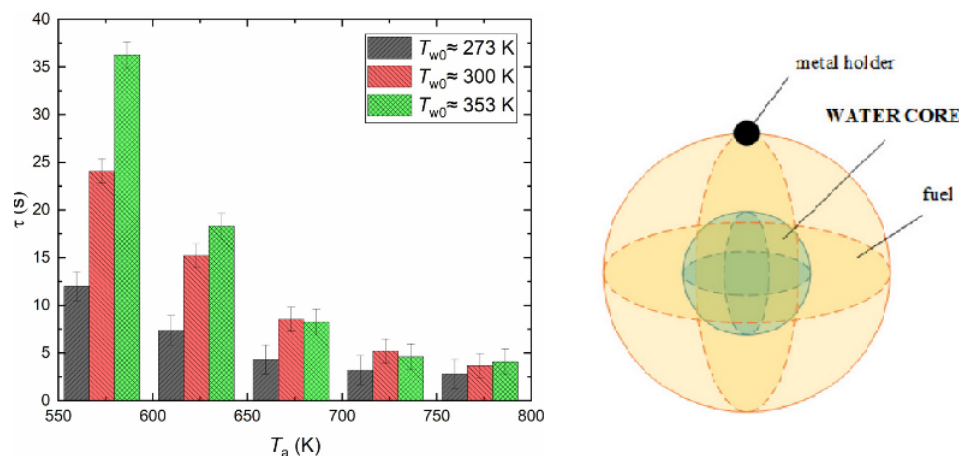


FIGURE 1.30 – **Gauche** : Temps avant la micro-explosion pour des gouttes diphasiques W/O en fonction de la température de l'air ambiant et pour plusieurs températures initiales de l'eau ; **Droite** : représentation des gouttes diphasiques étudiées [81]

Dans ce cas, la goutte diphasique ayant la température initiale de l'eau la plus faible est toujours celle qui possède le plus faible temps avant son atomisation. Néanmoins, il est établi que la micro-explosion de gouttes diphasiques et d'émulsions est un phénomène physique multi-paramétriques nécessitant d'être variés indépendamment les un des autres afin de comprendre leur influence. Aujourd'hui l'influence de la granulométrie, de la composition de l'émulsion, des propriétés physiques (à travers le nombre d'Ohnesorge notamment [21]) sont les critères les mieux compris dans le but d'optimiser l'occurrence de la micro-explosion.

1.4.7 Influence de la pression ambiante

La pression ambiante mérite également d'être prise en compte, car il s'agit d'un paramètre clé lors de la conception de systèmes de combustions. Kim et al. [82] ont pu observer la diminution graduelle du phénomène de puffing pour une pression variant de 1 à 15 bars. La limite de cette étude pourrait cependant se situer dans le fait que aucune micro-explosion n'ait été observée, de par la dispersion trop fine de la phase aqueuse ($D_{moy} < 1\mu m$).

D'autres études [66] montrent une tendance à la diminution de l'occurrence de micro-explosion avec l'augmentation de la pression. Cela est en partie attribuable au fait que la pression environnante agirait telle une force extérieure à la surface de la goutte, contraignant son expansion volumique par rapport au cas à pression atmosphérique. Cependant, la littérature est à ce jour assez peu fournie sur l'atomisation d'émulsions W/O à différents niveaux de pression, et constitue un enjeu phare pour la compréhension et l'optimisation du phénomène. Il paraît donc prudent de rester mesuré sur le potentiel impact de la pression sur l'inhibition (ou non) de la micro-explosion.

1.4.8 approche multi-paramètres

Nous avons vu, tout au long de cette section, que la micro-explosion est un phénomène dépendant d'un nombre important de facteurs, et qu'il peut être délicat d'avoir un contrôle sur la totalité de ces paramètres à la fois.

Récemment, Moussa et al. [83] ont étudié l'importance de 3 critères différents sur l'obtention de micro-explosions et de puffings à l'aide de la méthode optique LIF2c (Fluorescence induite par laser à 2 couleurs). Grâce à cette méthode, il a été possible de mesurer le champ de température des gouttelettes d'eau au sein de l'émulsion (fig 1.31) :

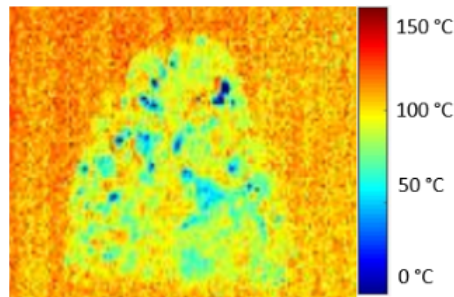


FIGURE 1.31 – température des gouttelettes d'eau en fonction de leur position dans la goutte d'émulsion [83]

L'une des observations clé ressortant de cette étude concerne les "cycles" de températures subis par les micro-gouttes d'eau. En effet, dans le cadre de cette étude, l'émulsion était chauffée par effet Leidenfrost (donc par le dessous de la goutte). Le cycle de température pour une gouttelette d'eau décrit est donc le suivant :

Au début, la goutte d'émulsion est chauffée, ce qui engendre un gradient de masse volumique et de tension de surface (Effet Marangoni décrit au paragraphe 1.3), ce qui permet à la gouttelette d'eau d'avoir un mouvement ascendant vers le haut de l'émulsion (figures 1.31, 1.32). Cette partie du domaine étant plus froide, la goutte d'eau se refroidit à nouveau et subit un mouvement descendant sous l'effet de la gravité.

Par la suite, Moussa et al. [7, 83] ont tenté de définir les caractéristiques de la goutte d'eau déclenchant la micro-explosion, nommée *trigger drop* (figure 1.32). En normalisant le diamètre de la goutte déclenchant la micro-explosion par le diamètre de la goutte "mère" (qui peut varier selon les essais), l'étude a démontré qu'il existe une disparité trop importante du diamètre de la *trigger drop* afin que ce critère soit suffisant pour caractériser complètement la micro-explosion.

L'autre paramètre étudié fut la position de cette *trigger drop*. En effet, il se trouve qu'il a été observé expérimentalement que les gouttes d'eau s'évaporant aux abords de la surface de

l'émulsion pouvait déclencher un *puffing* (éjection de vapeur hors de la goutte) qui n'induisait pas forcément une atomisation de la goutte [84].

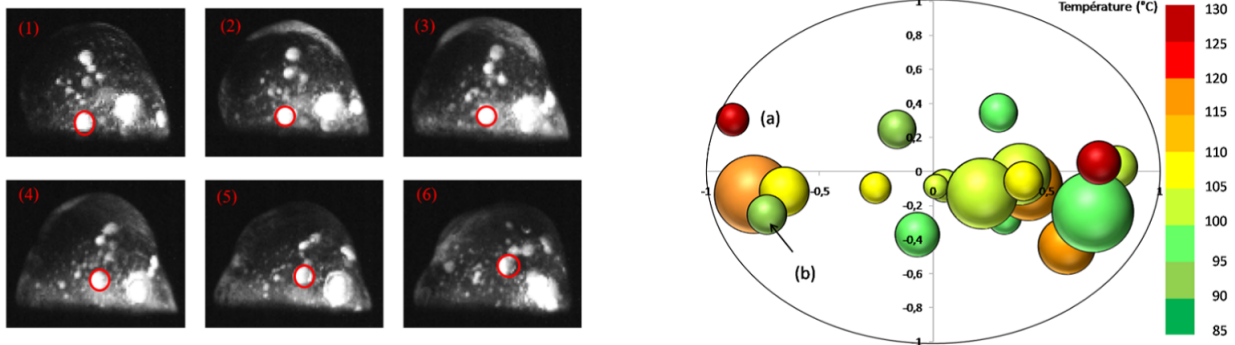


FIGURE 1.32 – Mouvement ascendant d'une goutte d'eau soumise à un cycle de température (gauche) et caractéristiques de la trigger drop (droite) [83]

Il en résulte que la trigger drop dépend ici des trois paramètres à savoir la température, la taille ainsi que la position, et qu'il est difficile de définir un profil typique de goutte optimale déclenchant la micro-explosion, car l'un des paramètres peut en compenser un autre (on peut avoir observé une trigger drop petite et assez surchauffée, où bien l'inverse). On voit donc bien qu'en plus des paramètres tels que les propriétés physico-chimique ou bien la composition de l'émulsion (facilement contrôlables), la "vie" des goutelettes d'eau durant la montée en température joue un rôle tout aussi important, et beaucoup moins prévisible.

Il est également important de rappeler que dans certains cas, la micro-explosion n'est pas déclenchée par **une seule** goutte mais bien par une nucléation en chaîne de plusieurs gouttes d'eau métastables. Califano et al. [85], en utilisant la technique de la goutte suspendue, ont pu apercevoir que les émulsions monodisperses peuvent subir un changement de phase simultané d'un grand nombre de gouttes d'eau, créant ce qu'ils nomment une micro-explosion *collaborative*. Ce type de micro-explosion est une alternative à celle basée sur le mécanisme de coalescence.

1.5 Atomisation partielle ou puffing

Il est important d'aborder le phénomène de *puffing*. Dans certains cas, l'atomisation de la goutte d'émulsion n'est pas complète, mais on observe plutôt une "éjection" de la vapeur d'eau produite ne résultant pas en une fragmentation totale de la couche d'huile (figure 1.33). Watanabe et al. [86, 87, 88] ont étudié le phénomène de puffing pour des émulsions W/O. On y voit une grande importance de la quantité minimale d'eau afin d'avoir une atomisation complète, ce qui a également été démontré par Rosli et al. [89].

Dans le cas où cette quantité est insuffisante, la matrice huileuse de la phase continue n'est pas totalement atomisée et on observe des puffings à certains endroits. En effet, il est nécessaire que l'énergie libérée lors de la vaporisation des goutelettes de la phase dispersée soit suffisante afin de dépasser la force exercée par la tension de surface de la goutte d'huile enveloppante. Il est intéressant de noter, que selon ces auteurs, l'évaporation du carburant à la surface libre entraîne la diminution de l'épaisseur du film extérieur de la phase continue, ce qui réduit l'énergie nécessaire à l'atomisation de la goutte. Le puffing peut être considéré comme le fractionnement non optimal de la goutte d'émulsion. En effet, lorsque la goutte subit uniquement un puffing, le nombre de gouttes filles générées est bien plus faible que dans le cas d'une micro-explosion

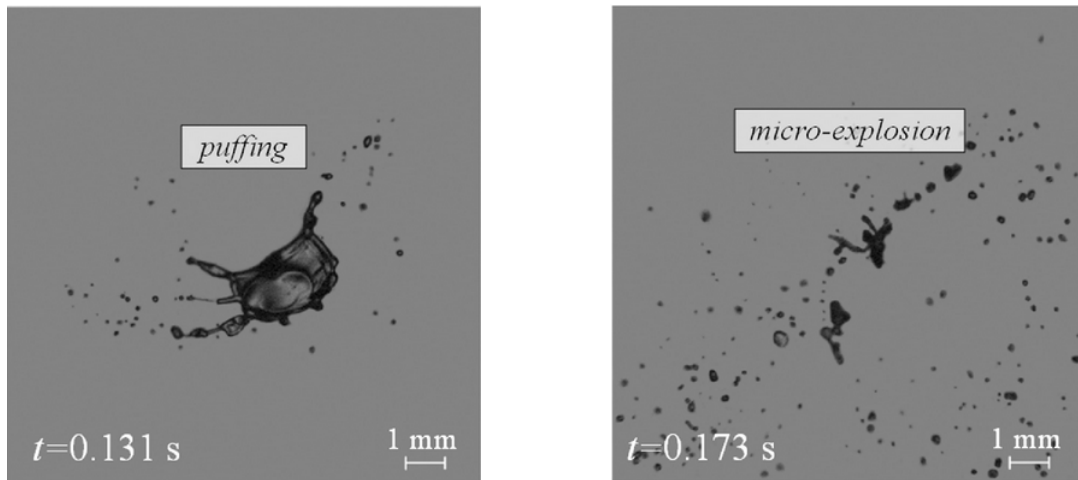


FIGURE 1.33 – Différence entre puffing et micro-explosion [90]

(figure 1.34).

De manière générale, il a été observé deux types de puffings. Le premier est un puffing qualifié d'intermédiaire, à savoir l'expulsion de vapeur résultant du changement de phase d'une goutte d'eau isolée, généralement située proche de la surface libre de l'émulsion [91]. Ce type de puffing peut se produire plusieurs fois tout au long de la durée de vie de la goutte d'émulsion. L'autre type de puffing va entraîner une vaporisation d'une plus grande partie (voir de la totalité) de la phase aqueuse, mais la fragmentation de la couche huileuse ne sera pas optimale. Mura [6] avaient qualifié une fragmentation optimale comme résultant en un nombre maximal de gouttelettes filles générées.

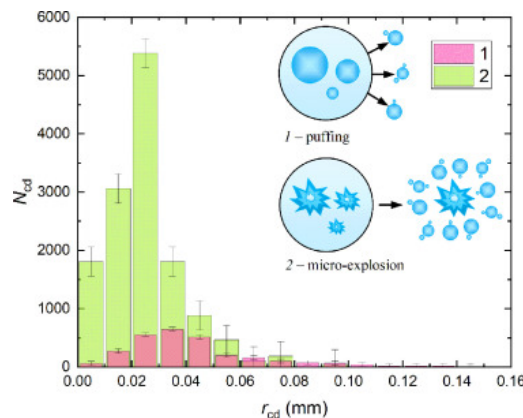


FIGURE 1.34 – Nombres de gouttes secondaires générées selon le mode de rupture de la goutte mère [90]

Pour une émulsion d'eau dans du tétradécane avec une composition de 5%_{vol} d'eau et 0.1%_{vol} de surfactant SPAN 83, Moussa [7] a observé une micro-explosion dans 76% des 50 cas étudiés, les 24% restant étant des puffings. Le mélange détaillé ici avait été défini au préalable comme celui ayant la plus haute probabilité de micro-explosion.

Lorsque l'émulsion comporte une quantité trop importante de surfactant, ou bien que sa période de montée en température est très rapide, il arrive que toute l'eau s'évapore sans observer de micro-explosion. En effet, dans ce type de situations, les gouttelettes d'eau dispersées n'ont

pas le temps de coalescer ce qui résulte en une évaporation sous forme de puffing. De plus, il arrive qu'un gradient de température important se forme entre la surface de la goutte d'émulsion ayant atteint la température d'ébullition de l'eau, tandis que l'intérieur de la goutte se situe à une température plus faible [92, 93], résultant en une éjection de l'eau sous forme de vapeur. L'augmentation de la température dans une émulsion présente deux mécanismes intéressants, à savoir :

- L'abaissement de la tension de surface qui diminue de manière inversement proportionnelle à la température [14] et notamment celle de la phase continue, qui facilitera son atomisation (il sera plus facile de rompre les liaisons entre molécules de la phase continue).
- La dégradation des propriétés du surfactant avec la température. En effet, il semblerait que le surfactant subisse une dégradation de ses propriétés stabilisantes avec la température [94], ce qui engendrerait la coalescence de la phase dispersée et donc une meilleure micro-explosion. La littérature étant peu fournie sur le sujet, cette affirmation sera donc traitée avec précaution.

Le puffing a donc été défini comme une atomisation partielle de la goutte d'émulsion. Il semblerait, comme nous l'avons déjà vu, que la composition et la granulométrie de la phase dispersée soient les paramètres les plus prépondérants sur l'obtention de ces simples puffings par rapport à une atomisation complète.

1.6 Étude de gouttes et d'émulsions en condition de micro-gravité

Un intérêt croissant est aujourd'hui porté sur les expériences de mécanique des fluides en condition de micro-gravité, car elles offrent la possibilité de mener des études en s'affranchissant de phénomènes induits par la gravité terrestre (comme la convection naturelle pour les fluides). Ces expériences sont très prisées dans l'étude des gouttes en combustion notamment, car elles permettent de simplifier grandement la physique du problème. La présente section est une introduction au sujet et aux différents moyens de réaliser des essais en situation de micro-gravité, avant d'être appliqué à une étude réalisée sur des gouttes d'émulsion et de combustible au sein d'une *Tour de Chute libre 0g* (Chapitre 4).

Nous avons pu voir tout au long de ce chapitre, que la micro-explosion est un phénomène stochastique, dépendant de multiples paramètres. La granulométrie de l'émulsion, est l'un des facteurs sur lesquels il est possible d'avoir une influence, car il est établi dans la littérature qu'une émulsion très finement dispersée ne coalescera que très peu avant d'être atomisée tandis qu'une émulsion plus grossière permettra une coalescence plus aisée, résultant souvent en une probabilité de succès de la micro-explosion plus élevée.

Lors du chauffage d'une goutte d'émulsion, les gouttelettes d'eau de la phase dispersée peuvent subir des déplacements induits par des courants de convection naturelle (dont l'origine peut provenir à la fois de l'effet Marangoni et de la gravité, c.f section 1.3.3). La micro-gravité permettrait d'inhiber le mécanisme de convection naturelle dit "*thermogravitaire*" et donc de mettre en avant la contribution éventuelle de l'effet Marangoni. La micro-gravité permet par exemple d'obtenir une sphéricité complète de la goutte, car seule la tension de surface est présente dans le bilan des forces mécaniques agissant sur celle-ci. (figure 1.35). Ce type de sphéricité permet d'utiliser une hypothèse de symétrie dans les modèles mathématiques développés pour modéliser l'évaporation de gouttes.

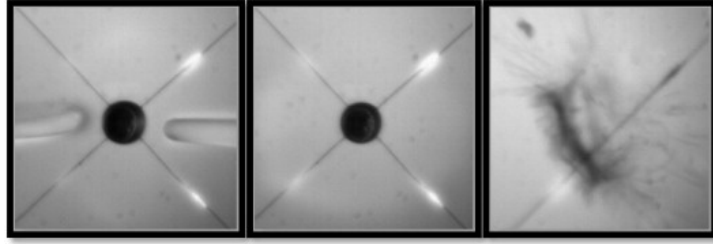


FIGURE 1.35 – Forme sphérique d’une goutte avant son atomisation en micro-gravité [95]

Cette section présentera les différents dispositifs permettant de réaliser des expériences en micro-gravité, ainsi que leur intérêt dans l’étude de l’évaporation/atomisation de gouttes de combustibles pures et émulsionnés.

1.6.1 Drop Towers

Les expériences en *Drop Tower* sont parmi les plus répandues lorsqu’il s’agit de réaliser des manipulations en environnement $0g$ de part leur facilité d’utilisation et de la répétabilité proposée. Grâce à cette méthode, il est possible d’atteindre des niveaux de gravité extrêmement faibles (allant jusqu’à $10^{-4} - 10^{-6}g_0$)[96]. Plusieurs installations permettent de réaliser ce type d’expérimentation, les plus connues étant la ZARM Drop Tower offrant une hauteur de chute libre avoisinant les 140 mètres, la Bejin Drop Tower offrant une zone de chute-libre d’environ 60 mètres [97]. Il existe deux méthodes principales permettant d’atteindre des conditions de micro-gravité au sein d’une drop-tower [98] :

- Les systèmes *evacuated drop shaft* qui consistent en une mise sous-vide de la tour résultant en une traînée aérodynamique quasi-nulle.
- Les systèmes *dual-capsule*, dans lesquels une capsule dite intérieure est imbriquée dans une capsule extérieure. La capsule extérieure ou *drag shield* permet de réduire au maximum les frottements dans la capsule intérieure.

D’autres *drop towers* de tailles plus petites ont été construites par divers groupes de recherche [99, 95], ces installations variant de 3.5 à 10 mètres de hauteur étant des alternatives plus aisées à concevoir (figure 1.36).

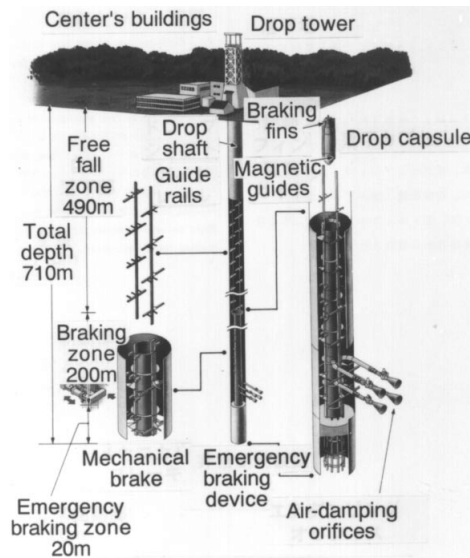


FIGURE 1.36 – Schéma de la JAMIC Drop Tower [100]

1.6.2 Les vols paraboliques et sub-orbitaux

Un autre moyen de réaliser des expériences en l'absence de gravité peut se faire par le biais de bancs d'essais embarqués dans des avions conçus pour réaliser des vols à trajectoire paraboliques. AIRBUS et son A310-0G propose ce type de prestation aux entreprises et laboratoires voulant bénéficier de ces conditions pour leurs expériences. Dans ces paraboles, la durée de micro-gravité est fixée à une vingtaine de secondes, répétée plusieurs fois. La figure 1.37 indique la trajectoire empruntée par un avion lors de vols paraboliques.

Les vols sub-orbitaux, (réalisés par des entreprises telles *Virgin Galactic*, *Blue Origin* et *SpaceX*), permettent d'obtenir des durées de micro-gravité plus importantes, (de l'ordre de 2 à 7 minutes), et autorisent ainsi la réalisation d'expériences plus longues en comparaison aux paraboles. Dans ce type de vol, la navette s'extrait de l'atmosphère terrestre, à une altitude d'environ 90 kilomètres.

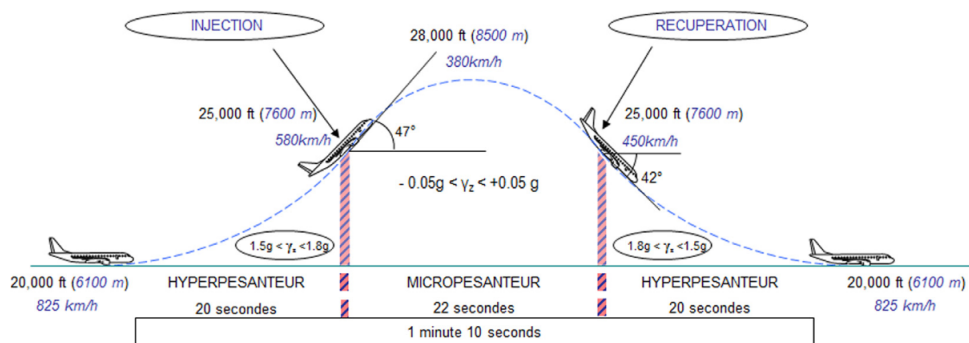


FIGURE 1.37 – Exemple de trajectoire d'un vol parabolique [101]

1.6.3 Vaporisation d'une goutte de carburant en μ -gravité

Le sujet de la vaporisation d'une goutte de carburant fait l'objet de nombreuses études expérimentales et théoriques, ayant pour but de parvenir à une meilleure compréhension d'un

phénomène complexe à la dimension multi-physique. Le travail de Godsave en 1953 [102] a permis le développement d'un modèle théorique, connu sous le nom de $D^2 - Law$, qui décrit l'évolution linéaire du ratio $(\frac{D}{D_0})^2$ durant son évaporation (figure 1.38).

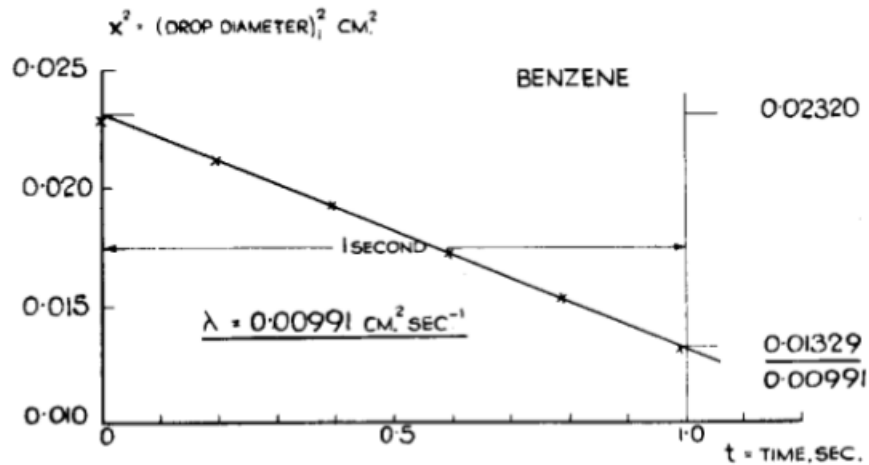


FIGURE 1.38 – première modélisation de la $D^2 - Law$ par Godsave en 1953 [102]

Ce modèle bien que très répandu, fait l'objet de plusieurs critiques décrivant les limites de son champ de validité, notamment au niveau des hypothèses retenues ([103, 104, 105]). En effet, trois hypothèses principales permettant de valider cette loi peuvent être discutées :

- La température constante et uniforme au sein de la goutte, qui peut être invalidée par le fait qu'il existe une période de montée en température et que pour des gouttes dépassant une certaine taille, l'état d'évaporation quasi-stationnaire n'est jamais atteint [106].
- L'hypothèse concernant la symétrie sphérique de la goutte, en négligeant les mouvements de convections internes et externes. Elle peut cependant être applicable dans des expériences en micro-gravité, car les déformations liées à la gravité deviennent inexistantes.
- Enfin, l'hypothèse spécifiant qu'il n'y a aucune influence de la phase vapeur proche de la surface de la goutte, qui serait totalement évacuée, a également été remise en question par les auteurs précédemment cités.

Plusieurs études [96, 107, 108, 109, 110] ont proposé des expériences en condition $0g$ afin d'étudier le comportement d'un carburant brûlé dans un environnement permettant de s'affranchir des mouvements convectifs dûs à la gravité. Pour un carburant pur, il a été montré que la $D^2 - Law$ n'était pas consistante. En effet, il est possible de définir des vitesses de convection naturelle (extérieure) et d'évaporation radiales, dans le cadre d'une goutte de combustible durant son évaporation [111] :

$$u_{NC} = \left(\frac{(\Delta\rho)gd_s}{\rho_\infty} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.28)$$

$$u_r = \frac{\rho_l}{\rho_v} \frac{1}{4d_s} \frac{d(d_s^2)}{dt} \quad (1.29)$$

u_{NC} et u_r étant respectivement la vitesse liée à la convection naturelle et à l'évaporation radiale, d_s le diamètre instantané de la goutte, ρ_l et ρ_v les masses volumiques du fluide à l'état liquide et vapeur.

La figure 1.39 démontre l'influence de la gravité sur les différentes vitesses. On voit que dans les conditions de gravité normale, la vitesse d'évaporation radiale u_r est faible devant la

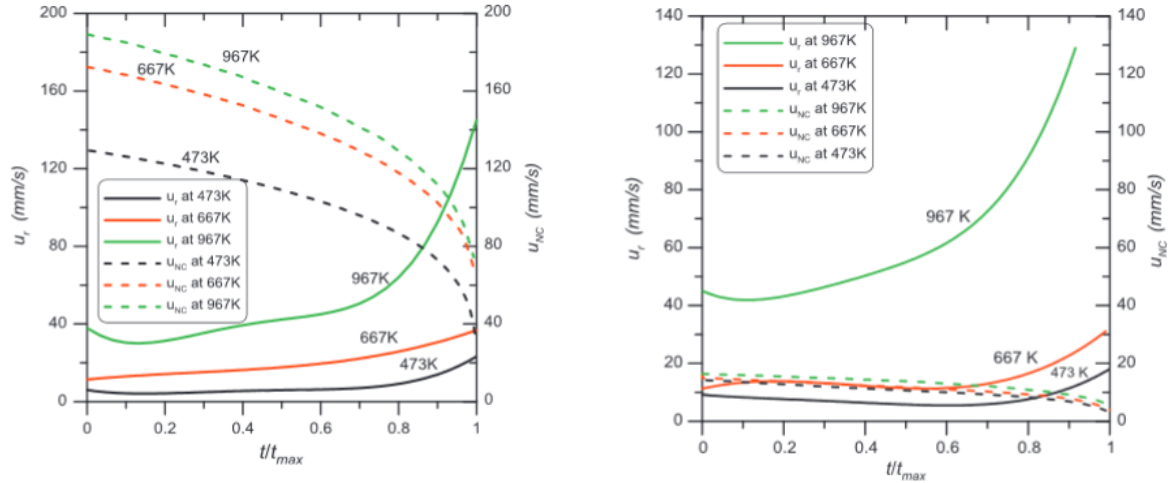


FIGURE 1.39 – Évolution des vitesses u_{NC} et u_r en gravité normale (gauche) et micro-gravité (droite)[107]

vitesse d'évacuation de la vapeur induite par convection naturelle u_{NC} . Cette tendance s'inverse en micro-gravité car, le terme u_{NC} devient très faible, cela a pour conséquence d'invalider la troisième hypothèse de la D^2 -law qui impose un déplacement permanent de la vapeur produite loin de la surface de la goutte.

Cependant, au delà d'une certaine température seuil, la vitesse d'évaporation radiale u_r augmente suffisamment pour contrebalancer cette effet, et permettre à la théorie de la D^2 -law d'être à nouveau vérifiée.

Nous pouvons donc constater, bien que la plupart des études réalisées en micro-gravité ont été faites en utilisant des carburants purs et non pas des émulsions, que la gravité joue un rôle important sur l'évaporation de la goutte à travers l'évacuation de la vapeur produite notamment. En effet, Chauveau et al.[112] ont confirmé que la micro-gravité empêchait la vapeur produite d'être évacuée, ce qui affecte le mécanisme de changement de phase, le rendant plus lent qu'en gravité normale.

Concernant les émulsions, on ne recense que peu d'études θg dans la littérature existante. On citera notamment l'étude de Segawa et al. [109], qui portait sur d'émulsions d'huile dans l'eau, ayant montré la séparation complète des deux phases (figure 1.40). Selon les auteurs, la séparation des phases, en micro-gravité, aurait été créée par le biais du fil résistif chauffant, qui en créant un gradient de tension superficielle, aurait permis de favoriser la séparation de phase (*Effet Marangoni*).

À notre connaissance, l'une des seules expérience réalisées et à ce jour sur des gouttes d'émulsions W/O en condition θg est celle effectuée par Okajima et al. [113], qui ont étudié la combustion d'une goutte d'émulsion W/O en micro-gravité dans d'une drop tower. La micro-explosion n'a été observée dans aucun cas sous-microgravité, mais seulement en gravité normale, comme l'indique la figure 1.41. Le motif de cette différence entre les deux cas demeure cependant assez flou. Ainsi, il semble nécessaire d'étudier plus en détails le comportement de ces émulsions à la lumière des dispositifs expérimentaux disponibles à ce jour. C'est dans cette optique que s'inscrivent les travaux présentés dans le Chapitre 4 de ce manuscrit.

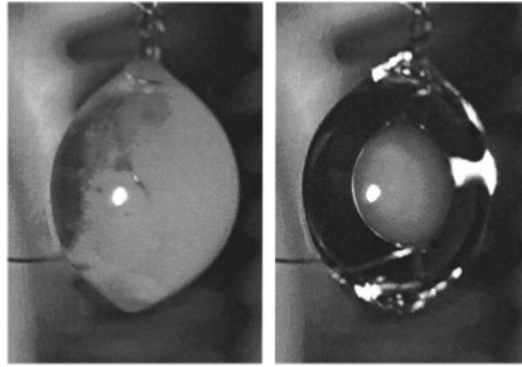


FIGURE 1.40 – Séparation de phase d’une émulsion O/W en micro-gravité [109]

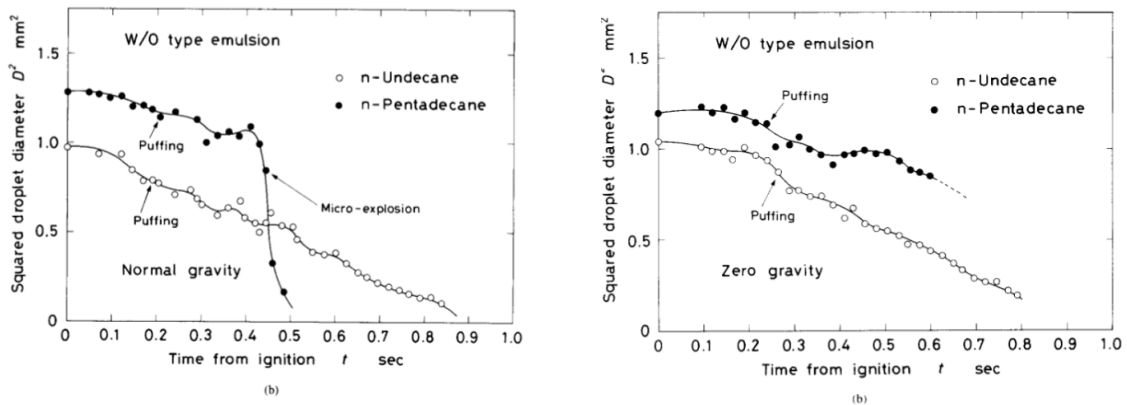


FIGURE 1.41 – Évolution de la surface d’une goutte d’émulsion W/O a) en gravité normale et b) en micro-gravité [113]

1.7 Étude des émulsions et de la micro-explosion à l’aide de diagnostics optiques

1.7.1 Introduction

L’étude de la micro-explosion des gouttes émulsions est cruciale afin de comprendre et ainsi d’optimiser ce phénomène complexe. De manière globale, on distingue deux types d’approches concernant l’étude expérimentale des gouttes :

- Les méthodes dites intrusives, qui utilisent des capteurs (thermocouples, capteurs de pression de pression...) se situant au sein même du milieu étudié. Souvent, la présence seule du capteur peut avoir tendance à interférer avec le comportement du système. Par exemple, dans le cadre des gouttes, on notera que la présence de thermocouple à l’intérieur de la goutte aura tendance à créer des sites de nucléation hétérogène, et ainsi altérer le comportement de la goutte durant la phase de montée en température.
- Les méthodes non-intrusives, qui regroupent tous les diagnostics optiques que nous présenterons dans cette section. Elles possèdent l’avantage premier de ne pas modifier le système (même si dans le cas de l’ajout de traceurs, les propriétés du fluide peuvent être modifiées selon la concentration), ainsi que de permettre l’observation de phénomènes à la résolution temporelle extrêmement courte. De plus, la qualité et la fréquence d’acquisition des caméras modernes couplés à des algorithmes de traitement d’images de plus en plus

performantes permettent d'observer des évènements indétectables jusqu'à lors.

L'objectif de cette section n'est pas d'établir une liste exhaustive des diagnostics optiques existants, mais plutôt de présenter le fonctionnement des méthodes les plus utilisées dans le domaine de l'atomisation et notamment celles mises en place dans les bancs expérimentaux présentés dans cet ouvrage.

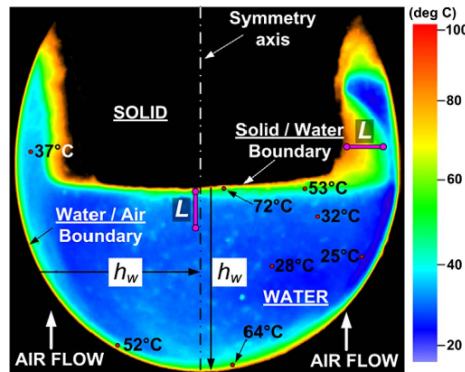


FIGURE 1.42 – Exemple de cartographie du champ de température au sein d'une goutte d'eau obtenue par méthode optique (LIF)[114]

Les grandeurs physiques principales que l'on cherche à caractériser sont le plus souvent la vitesse d'une particule, la granulométrie dans le cas d'un spray ou d'une émulsion, ainsi que le champ de température (figure 1.42). Ces trois informations sont particulièrement recherchées dans le cadre de l'étude de l'injection de carburants dans une chambre de combustion, avec pour objectif principal d'augmenter l'efficacité du spray et donc son atomisation en fines gouttelettes. Dans le cadre des émulsions, les données de champ de température et d'évolution temporelle de la granulométrie de la phase dispersée, couplées à la caractérisation des mouvements internes de cette même phase (vitesses et trajectoires), permettent d'obtenir une compréhension globale des mécanismes de déstabilisation d'une émulsion menant à la micro-explosion.

1.7.2 Méthodes de mesure de vitesse et de taille

Ombroscopie

L'ombroscopie est la méthode d'observation la plus facile à mettre en place. En effet, elle nécessite seulement une caméra de type CCD et une source lumineuse se situant derrière l'objet étudié (la goutte dans notre cas). Elle peut être utilisée pour l'observation de l'atomisation d'un spray en gouttes, ou bien, lors de la micro-explosion d'une goutte d'émulsion, afin de dénombrer le nombre de gouttelettes secondaires générées et ainsi rendre compte de la qualité de l'atomisation.

Dans le cadre d'une émulsion, la différence entre les indices optiques de la phase continue et de la phase dispersée, permet, en théorie, de laisser passer plus ou moins de lumière dans l'une des deux phases, et donc de pouvoir les distinguer à l'image. Néanmoins, pour ce type de visualisation, on lui préférera des méthodes basées sur la fluorescence. La précision de la mesure dépendra grandement de la caméra utilisée (i.e de la résolution), ainsi que de l'objectif. L'utilisation d'un diffuseur (figure 1.43) permet d'homogénéiser la lumière arrivant à la surface de l'objet d'intérêt.

Vélocimétrie par images de particules

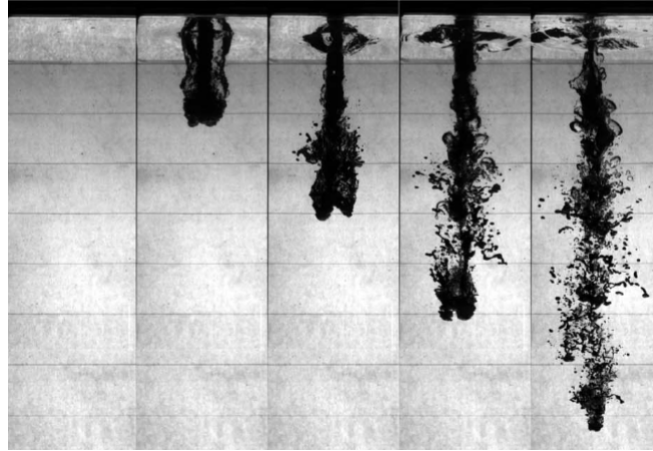


FIGURE 1.43 – Exemple montage par ombroscopie permettant la visualisation de l'atomisation d'un jet [115]

La vélocimétrie par images de particules ou PIV permet de mesurer la vitesse d'un flot de particules ensemencées dans un écoulement [116]. Les particules utilisées doivent présenter des caractéristiques permettant de suivre l'écoulement fluide sans le perturber (même densité, taille et durée de vie suffisantes par rapport au phénomène étudié). Le nombre de Stokes défini comme le rapport du temps de réponse de la particule τ_p sur le temps caractéristique de l'écoulement τ_f permet de décrire le comportement des particules "charriées" par ledit écoulement [117] :

$$St = \frac{2\rho_p}{9\rho_f} \left(\frac{a}{L}\right)^2 Re \quad (1.30)$$

Avec a le rayon des particules, L la longueur caractéristique de l'écoulement, ρ_p et ρ_f , les masses volumiques des particules et du fluide, et Re le nombre de Reynolds. Dès lors que $St \leq 1$, les particules suivront l'écoulement sans le perturber. Une variante de cette méthode, appelée PTV (Particules Tracking Velocimetry), s'appuie sur la mesure des vitesses de chaque particules prises individuellement. Pour ce faire, la quantité de traceur disséminée est grandement réduite.

Ces deux variantes de mesure de champ de vitesse se basent sur les mêmes types de bancs expérimentaux à savoir (figure 1.44) :

- une caméra ayant une fréquence d'acquisition suffisante afin de suivre les particules.
- un laser réglé de façon à générer des impulsions à deux instants distincts
- une combinaison de faisceaux et lentilles permettant de transformer le faisceau laser en un plan laser et ainsi d'obtenir des informations 2D.

Les deux images prises dans un laps de temps Δt sont ensuite traitées par des algorithmes de corrélation. Chaque image est divisée en plusieurs sous-images appelées fenêtre d'interrogation. Le vecteur vitesse de chaque fenêtre d'interrogation est ensuite obtenu en mesurant un maximum du déplacements des pixels dans la fenêtre [118].

Cette méthode peut s'avérer pertinente lors de l'étude de gouttes soumises à des cycles de chauffage. En effet, dans le cadre d'émulsions d'eau dans l'huile, l'observation montre que les gouttelettes d'eau dispersées peuvent avoir des mouvements convectifs au sein de la goutte mère liés aux cycles de températures qu'elles subissent. Leur variation de densité lors du chauffage

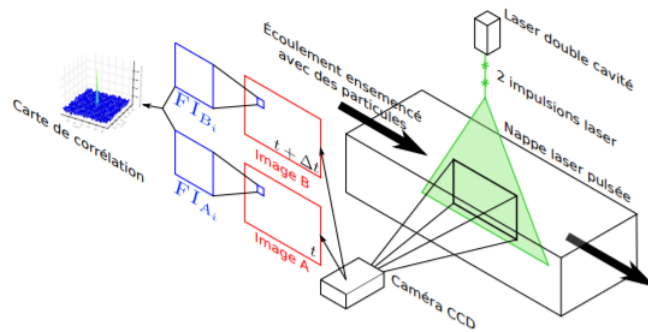


FIGURE 1.44 – Schéma d'un montage basé sur la PIV [118]

leur conférera par exemple un mouvement ascendant. Nous verrons par la suite, que le type de chauffage et son positionnement par rapport à la goutte jouent un rôle très important pour la convection dans la goutte d'émulsion.

A notre connaissance, il n'existe à ce jour aucune étude des mouvements convectifs dans une goutte d'émulsion W/O. La PIV serait donc un outil opportun pour appréhender ce phénomène. A titre d'exemple Volkov et al. [119] ont étudié le champ de vitesse au sein d'une goutte d'eau soumise à un flux d'air chaud à l'aide de méthode PIV.

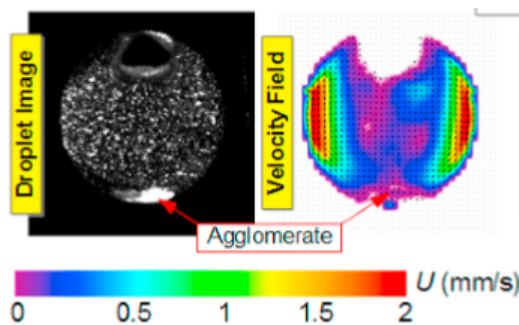


FIGURE 1.45 – mesure de champ de vitesse au sein d'une goutte d'eau durant son chauffage [119]

Fluorescence Induite Par Laser

La Fluorescence Induite par Laser (LIF) est une méthode se basant sur le principe de diffusion inélastique de la lumière par un traceur aux propriétés fluorescentes. Cette diffusion inélastique (abordée dans la section 4.8 et représentée par le diagramme de Jablonski ; figure 4.29) est la ré-émission du rayonnement lumineux incident de longueur d'onde λ_1 , à une longueur d'onde $\lambda_{\pm\Delta\lambda}$. La molécule aux propriétés fluorescentes, en absorbant un photon, transitera d'un état initial vers un état excité. Lors de son retour à l'état initial, la molécule va ré-émettre un photon dont la longueur d'onde dépend du traceur. C'est la lumière des photons émis par le traceur fluorescent qui sera mesurée à l'aide du dispositif optique.

Dans la plupart des montages LIF utilisés pour l'étude des gouttes, un faisceau Laser est transformé en plan Laser à l'aide de lentilles optiques (on parle alors de Planar LIF), avant de venir illuminer une goutte dans laquelle est disséminé le traceur, qui sera sélectionné selon ses affinités avec le liquide à étudier ainsi que la longueur d'onde du laser. Un filtre passe-bande permet d'isoler uniquement la longueur d'onde de ré-émission.

Les mesures quantitatives de l'intensité de fluorescence peuvent être réalisées afin d'obtenir des informations sur la température du liquide, car l'intensité de fluorescence des traceurs est entre-autre fonction de la température. Les équations et la méthode relatives à la mesure de température par LIF sont présentées dans la section suivante. Dans le cas où les seules informations requises sont la taille et la position, la mesure de l'intensité de fluorescence n'est pas nécessaire, car l'objectif est seulement d'obtenir une visualisation la plus nette possible des gouttes. La méthode de mesure de position et de granulométrie des micro-gouttes d'eau dispersées par LIF est décrite au chapitre 2, avant d'être améliorée en LIF dite *deux couleurs* pour obtenir l'information sur la température au chapitre 3.

Concernant les mesures de taille où de vitesse, on citera également L'anémométrie Doppler Laser (LDV) et sa version permettant de mesurer simultanément les deux paramètres, l'anémométrie Phase Doppler (PDA) [120], basé sur l'effet Doppler (présenté dans la section 4.8). Ces méthodes ne rentrent pas dans le cadre des travaux décrits plus loin, et leur application expérimentale ne sera pas détaillée ici.

1.7.3 Mesure de température

Dans le cadre de la mesure de la température, les méthodes optiques présentent également cet avantage de non intrusivité, tout en offrant une grande résolution spatiale. Pour des systèmes de petites échelles et extrêmement sensibles aux conditions extérieures telles que les gouttes, ces méthodes sont donc pertinentes afin d'obtenir des informations fiables et non "polluées". De plus, il est possible d'obtenir un champ de température dans un plan 2D (dans le cas de la PLIF) alors que les instrumentations par thermocouples ne permettraient d'obtenir qu'une mesure locale de la température en un point de la goutte. Nous nous limiterons, dans cette section à la mesure de température par LIF 2 couleurs, car c'est cette solution qui sera sélectionnée pour la réalisation des travaux expérimentaux. Nous n'aborderons donc pas ici le cas de la spectroscopie Raman qui est une autre méthode employée pour la mesure de température.

La possibilité de mesure de température par LIF provient de la dépendance de l'intensité de fluorescence à la température des molécules fluorescentes. Qui plus est, la fluorescence possède l'avantage d'avoir un temps de réponse très rapide (10^{-9} s), ce qui en fait une méthode pertinente pour le suivi de variations brutales de température.

Fluorescence Induite par Laser pour la mesure de température

La fluorescence émise par les traceurs montre une dépendance à la température, qui peut croître ou décroître avec celle-ci selon les espèces chimiques. Le coefficient de sensibilité s_λ décrit cette dépendance à la température [121] :

$$s_\lambda = \frac{1}{I_\lambda} \frac{dI_\lambda}{dT} \quad (1.31)$$

Ce coefficient correspond à la variation de l'intensité du signal lumineux I_λ avec la température.

La relation entre intensité de fluorescence et température est donnée par la formule suivante [122] :

$$I_f = K_\lambda C V_C I_0 e^{s_\lambda T} \quad (1.32)$$

Où K_λ est une constante dépendante des paramètres optiques et du traceur (étant souvent décomposée en $K_\lambda = K_{optique,\lambda} + K_{traceur,\lambda}$), C la concentration en traceur, V_C le volume de contrôle, I_0 l'intensité d'excitation du laser, s_λ la sensibilité du traceur à la température. Le

coefficient s_λ est mesuré en $\%/^\circ\text{C}$.

Une fois les différents paramètres fixés, l'intensité de fluorescence ne dépend plus que de la température (à une longueur d'onde donnée). La figure 1.46 montre l'évolution de l'intensité de fluorescence en fonction de la longueur d'onde pour la Rhodamine 560 et le Kiton Red à différentes températures.

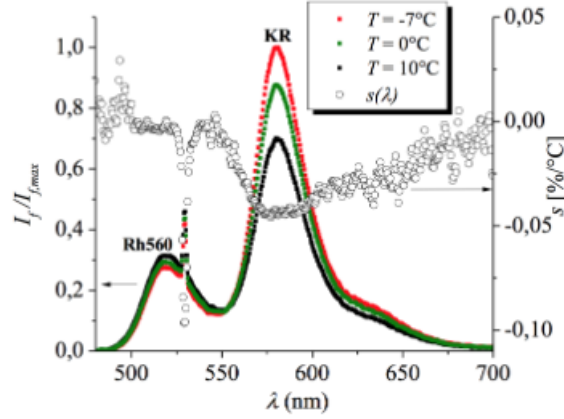


FIGURE 1.46 – Intensité de fluorescence de traceurs KR et Rh560 selon la température [122]

Certains des paramètres de l'équation 1.32 étant difficilement mesurables, il est possible de s'en affranchir à l'aide d'une amélioration de la méthode appelée LIF 2 couleurs (notée LIF2c). Cette amélioration consiste en la détection du signal de fluorescence sur deux longueurs d'ondes différentes λ_1 et λ_2 (méthode à un traceur et deux couleurs). Lorsque l'on utilise deux longueurs d'ondes de détection et deux traceurs différents, la méthode est appelée LIF deux couleurs deux traceurs (2c2dLIF) [122]. Cette méthode dite de LIF 2 couleurs permet notamment de s'affranchir de la nécessité de garder la concentration en traceur constante (C dans l'équation 1.32). Puisque cette condition n'est pas remplie pour les phénomènes d'évaporation, la LIF2 semble une méthode adéquate pour la mesure de température au sein de gouttes d'émulsion.

Reprenons l'équation 1.32 et appliquons la à deux longueurs d'ondes λ_1 et λ_2 :

$$I_{f1} = K_{\lambda_1} C V_C I_0 e^{s_{\lambda_1} T} \quad (1.33a)$$

$$I_{f2} = K_{\lambda_2} C V_C I_0 e^{s_{\lambda_2} T} \quad (1.33b)$$

Le ratio de fluorescence R_{12} est alors donné par le rapport des équations 1.33a et 1.33b :

$$R_{12} = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_{\lambda_1} C V_C I_0 e^{s_{\lambda_1} T}}{K_{\lambda_2} C V_C I_0 e^{s_{\lambda_2} T}} \quad (1.34)$$

Or, dans le cadre d'une mesure sur deux longueurs d'ondes distinctes, les paramètres optiques étant le même et le traceur unique, nous obtenons, un ratio de fluorescence uniquement fonction de la température, et d'une température de référence T_0 comme suit :

$$\frac{R_{12}}{R_{120}} = e^{(s_1 - s_2)(T - T_0)} \quad (1.35)$$

Où R_{120} est le ratio de fluorescence à une température de référence (température de calibration), et les paramètres s_1 et s_2 sont obtenus par étalonnage préalable à température fixée.

Potentielles erreurs de mesure par LIF

Les mesures de température par LIF, bien que très prometteuses, peuvent être entachées d'erreurs importantes si certaines précautions ne sont pas respectées. Nous présenterons ici, les problématiques inhérentes à la mesure de température par LIF et les solutions permettant de minimiser ces erreurs de mesures.

Nous avons évoqué les difficultés liées à la mesure de certains paramètres de l'équation 1.32 qui peuvent être surmontées par les méthodes ratiométriques (équations 1.34 et 1.35). Ces solutions permettent de s'affranchir de la dépendance du signal de fluorescence à l'intensité du laser [123, 124].

L'un des premiers problèmes pouvant être rencontré est la saturation du signal de fluorescence, qui peut survenir lorsque l'intensité du laser est trop forte (plus courant dans le cas des lasers pulsés qui génèrent un pic d'intensité que dans le cas des lasers continus). Il est possible de calculer l'intensité de saturation à partir des paramètres quantiques du traceur [123] :

$$I_{sat} = \frac{A_{21} + Q_{21}}{B_{12} + B_{21}} C_{\lambda} \quad (1.36)$$

Avec A_{21} l'émission de photon spontanée, B_{12} et B_{21} les coefficients d'Einstein pour l'absorption et l'émission, et C_{λ} un facteur de conversion.

Il est donc possible de calculer cette intensité, en $W.m^{-2}$, afin de s'assurer de ne pas saturer le signal (l'utilisation de lasers continu est très souvent une garantie que l'intensité se situera en dessous de la valeur de saturation).

Un autre problème inhérent à l'utilisation de méthodes basées sur la LIF est la ré-absorption du signal de fluorescence avant que ce dernier n'atteigne le capteur. Dans le cas de la méthode à 2 traceurs, il est primordial de choisir des traceurs cohérents, c'est à dire qui ne présentent pas de conflits spectraux [125, 121]. Par exemple, les spectres d'émissions des deux colorants ne doivent pas se recouvrir afin d'obtenir le signal correspondant à l'émission réelle émise par chacun des deux traceurs. De plus, le spectre d'émission d'un des traceurs ne doit pas être absorbé par le second. Pour l'eau, le couple Rhodamine 560 (Rh560) et Kiton Red est souvent sélectionné car la bande d'émission de l'un est suffisamment éloignée de la bande d'absorption de l'autre [121]. Ils ne présentent également aucun conflits d'émission et peuvent donc être mesurés sur deux canaux distincts.

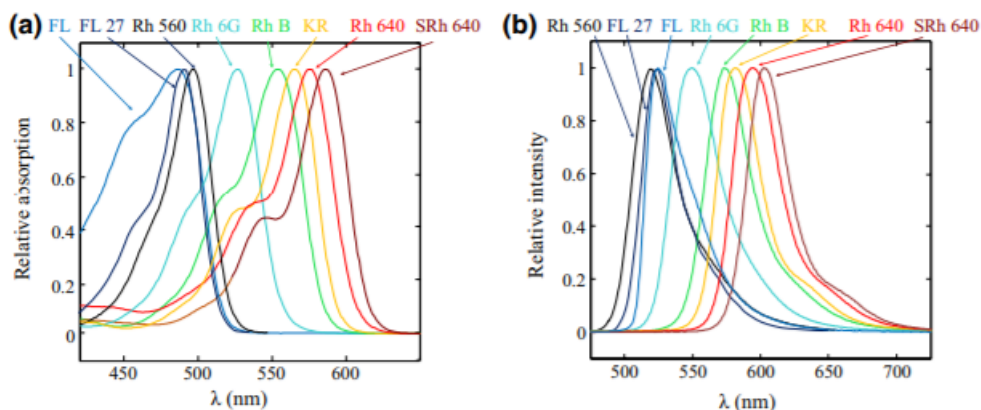


FIGURE 1.47 – Spectre d'absorption (a) et d'émission (b) de différents traceurs fluorescents [123]

Nous nous limiterons, dans le cadre de ce manuscrit à la méthode de mesure de température par un traceur unique et deux bandes de détection. Le seul conflit spectrale à éviter est dans ce cas celui entre la longueur d'onde d'absorption et les deux bandes de détection, afin d'éviter

une ré-absorption trop importante du signal émis par le traceur lui même.

Nous avons vu, que l'amélioration de la mesure de température par LIF, par les méthodes LIF 2 couleurs 1 traceur et 2 couleurs 2 traceurs permettent de s'affranchir de la connaissance de certains paramètres ainsi que de la nécessité de garder une concentration de traceur constant (ce qui aurait été difficile pour une étude de gouttes subissant une évaporation). Cependant, ces techniques restent à priori sensibles au pH du fluide ainsi qu'à la taille des gouttes [126]. Il n'existe, à ce jour, pas d'explication établie concernant la dépendance de l'intensité de fluorescence à la taille des gouttes. Cependant, il a été démontré expérimentalement que le ratio de fluorescence pouvait varier jusqu'à 30% pour des gouttes dont la taille varie de 50 à 300 μm [126].

Une amélioration des méthodes LIF2c, la LIF à 3 couleurs, permet de résoudre le problème de dépendance à la taille des gouttes. Cette méthode consiste en la détection du signal de fluorescence sur 3 bandes de longueur d'ondes, par extension de la méthode LIF 2 couleurs (équations 1.34 et 1.35). Cette méthode reste cependant peu utilisée.

1.8 Conclusion

A travers cette synthèse bibliographique, nous avons proposé de retracer l'historique du phénomène de micro-explosion, depuis sa découverte jusqu'aux avancées les plus récentes en matière de compréhension du phénomène. Cette étude de l'état de l'art nous permet de dire que la bonne réalisation de la seconde atomisation d'une goutte de carburant émulsionnée n'est pas encore totalement maîtrisée, de part les nombreux critères à prendre en compte, et son occurrence stochastique.

Par ailleurs, il s'avère que l'étude du comportement d'émulsions W/O en micro-gravité n'a, à notre connaissance, encore jamais été étudié (on rappelle les études de Segawa et al. [109] et Okajima et al. [113] pour une émulsion O/W), ce qui représente donc l'un des aspects innovants de ce travail, au même titre que l'étude du champ de température au sein de la phase continue.

Le chapitre suivant portera sur l'étude du comportement de la phase dispersée lors de la montée en température d'une goutte émulsion W/O, et plus précisément sur les mouvements convectifs internes des gouttelettes d'eau. L'objectif sera de quantifier l'intensité de ces mouvements convectifs et de constater si ils favorisent ou non la coalescence et quelle est la conséquence de ces mouvements sur l'occurrence de la micro-explosion.

Chapitre 2

Étude de la coalescence et de la convection interne au sein de la phase dispersée

2.1 Présentation des objectifs

L'objectif du présent chapitre est de fournir une meilleure compréhension du comportement de la phase dispersée des émulsions W/O lors de la phase de montée en température. En effet, il a déjà été observé de manière qualitative que les gouttelettes d'eau disséminées pouvaient être entraînées par des mouvements internes lors du chauffage de la goutte d'émulsion. Cependant, aucune étude permettant de quantifier l'impact de ces mouvements sur la coalescence de la phase dispersée ainsi que sur l'atomisation de l'émulsion n'a été menée.

A travers ce chapitre, nous nous proposons donc de quantifier les phénomènes convectifs ainsi que la coalescence, tout en mesurant l'impact de ces phénomènes sur l'occurrence de la micro-explosion.

Comme nous l'avons vu dans le Chapitre 1, les méthodes expérimentales basées sur les diagnostics optiques offrent des possibilités intéressantes concernant l'étude non intrusive des mouvements et des transferts thermiques au sein des fluides.

Le protocole expérimental développé dans ce chapitre se base sur la Fluorescence Induite par Laser (LIF), permettant d'obtenir des informations sur la taille et la position des gouttelettes d'eau de la phase dispersée. Cette méthode, couplée à un algorithme de Particle-Tracking-Velocimetry (PTV) rend possible l'obtention des trajectoires et des vitesses de ces "particules". Dans le présent cas, la lumière ré-émise par le traceur disséminé dans la phase aqueuse sera mesurée et nous permettra ainsi d'avoir accès aux informations de tailles et de positions des gouttelettes à l'intérieur de la goutte d'émulsion pendant la période d'échantillonnage. Nous ne nous intéresserons ici à la fluorescence que de manière qualitative, en utilisant ce signal émis afin de ne distinguer que la phase dispersée au sein des gouttes émulsions.

2.2 Méthode expérimentale

2.2.1 Choix des émulsions étudiées

Les émulsions étudiées sont des émulsions W/O, se présentant sous la forme suivante :

- Une phase continue de n-tétradécane, sélectionné pour ses propriétés proches de celles d'un biodiesel (masse volumique, viscosité et température de changement de phase), ainsi que pour sa pureté permettant d'assurer la validité des mesures par LIF. De plus, cet

hydrocarbure n'est principalement excité que par des longueurs d'ondes se situant dans l'ultra-violet . Il n'interférera donc pas dans les mesures, le laser utilisé se situant dans le domaine du visible.

- Une phase dispersée (7%_m) faite d'eau déminéralisée, permettant d'éviter la présence d'impuretés pouvant être trouvées dans de l'eau courante standard.
- Une faible quantité (0.4%_m) de surfactant SPAN 83, possédant un HLB de 3.7. Plus la valeur du HLB est basse, plus le surfactant possède un caractère hydrophobe, repoussant la séparation de phase des émulsions W/O.

L'expérience présentée se basant sur la LIF, le choix d'un traceur fluorescent pertinent a dû être réalisé. Les critères de choix se portent sur une forte solubilité dans la phase à observer, un spectre d'excitation concordant à la longueur d'onde du laser (532 nm dans notre cas). Notre choix s'est porté sur le sel de sodium de Fluorescéine, dont les spectres d'absorption et d'émission sont présentés sur la figure 2.1. Ce traceur est un dérivé de la fluorescéine traditionnelle ayant

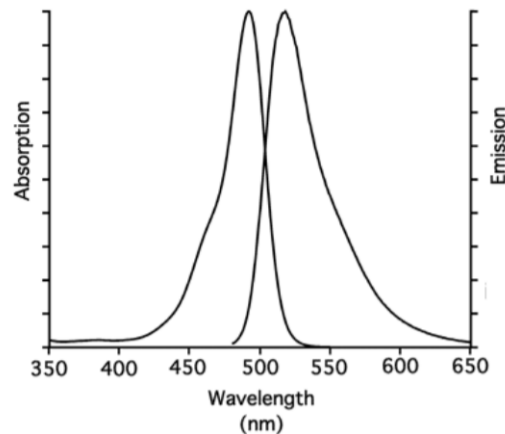


FIGURE 2.1 – Spectre d'émission et d'absorption de la fluorescéine

une solubilité dans l'eau importante (jusqu'à 500g/L). Cette propriété ainsi que ses longueurs d'ondes d'émission et d'absorption en font donc un candidat très intéressant pour la visualisation de la phase aqueuse.

L'un des objectifs du présent travail étant l'étude du comportement de la phase dispersée durant la période de montée en température, deux émulsions ayant la même composition (présentée au début de la section), mais présentant une différence de granulométrie sont étudiées. La granulométrie des émulsions peut être contrôlée en modifiant le temps d'agitation. Les deux émulsions sont mélangées à l'aide d'un agitateur magnétique VMS-C4, *VWR*. Ce procédé d'émulsification nous permet de réaliser des émulsions dont la stabilité n'est pas un obstacle à l'observation de la coalescence, par opposition à des procédés tels l'agitation mécanique ou l'émulsification en micro-canaux, qui permettent d'obtenir des émulsions très fines (et donc trop stables pour observer les phénomènes de déstabilisation aux échelles de temps qui nous intéressent). Une fois préparées, la granulométrie des émulsions est mesurée à l'aide d'un microscope digital VHX-7000 *Keyence*, dont un exemple de visualisation est présenté figure 2.2.

Une fois les images du microscope enregistrées, les gouttes peuvent être mesurées soit automatiquement à l'aide d'un programme *MATLAB*, soit manuellement. La figure 2.3 montre une mesure du diamètre moyen des émulsions ainsi que le nombre d'échantillons minimal à prendre en compte (calculé par la loi Normale avec un intervalle de confiance à 95%). Dans la présente étude, nous aurons :

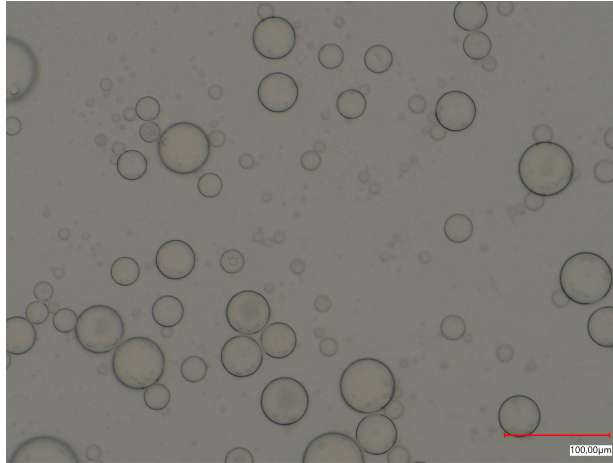


FIGURE 2.2 – Image type de granulométrie obtenue par microscope digitale

- L'émulsion A, de diamètre moyen $20 \mu m$ pour la phase dispersée. Cette émulsion sera la plus grossière, afin de permettre une déstabilisation plus aisée du système en vue de l'observation de la coalescence.
- L'émulsion B, de diamètre moyen $12 \mu m$. Cette émulsion, plus fine, et donc plus stable, aura la propriété de coalescer moins facilement, ainsi que de permettre l'observation des mouvements des micro-gouttes d'eau (probablement entraînées par convection naturelle).

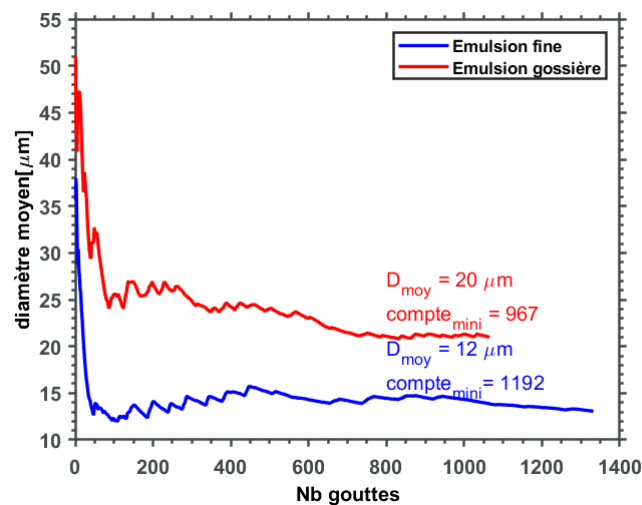


FIGURE 2.3 – Image type de granulométrie obtenue par microscope digitale

2.2.2 Banc expérimental

Le banc expérimental est présenté sur la figure 2.4. Il se compose d'une caméra rapide *Photron* SA-X2 Fastcam permettant une acquisition allant jusqu'à 12 500 images par secondes à la résolution maximale de 1024 par 1024 pixels, couplée à un laser continu (Nd-Yag 2nd *Spectra Physics*) émettant un faisceau de longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$, à une puissance comprise entre 0.5 et 10 W.

Un couple de lentilles (une sphérique et une cylindrique) est utilisé afin de transformer le rayon laser incident en un plan laser, permettant de "couper" la goutte d'émulsion dans un plan vertical. L'objectif est d'avoir un plan suffisamment fin, afin d'obtenir une qualité de visualisation

optimale comme nous le verrons après.

Enfin, un filtre passe-bande pour des longueurs d'ondes $\lambda=550 \pm 5$ nm est utilisé afin de ne recevoir que le signal d'émission de fluorescence, sans pollution provenant de la lumière incidente. De plus, la fluorescéine voit son intensité de fluorescence augmenter avec la température, ce qui facilitera la visualisation lors de l'expérimentation.

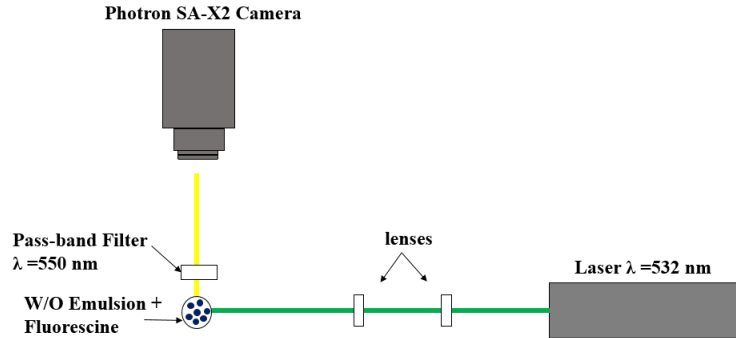


FIGURE 2.4 – Schéma du banc expérimental basé sur le dispositif LIF

Pour cette étude, la fréquence d'acquisition de la caméra est variée entre 500 et 2000 images par seconde, avec un temps d'exposition compris entre 1/1000 et 1/2000 de seconde. Cette gamme de fréquences ne permet pas d'étudier l'atomisation de la goutte d'émulsion de manière quantitative (par comptage du nombre de gouttes filles générées), car ce phénomène nécessite une fréquence d'acquisition d'au moins 5000 images par seconde. Néanmoins, notre étude portant sur la phase de chauffage antérieure à la micro-explosion, les paramètres choisis permettent amplement de suivre le mouvement de la phase dispersée, tout en facilitant le post-traitement.

Le prototype expérimental servant à l'étude est présenté sur la figure 2.5. Les gouttes seront chauffées par un panneau radiatif de diamètre 11 mm, dont la position respectivement à la goutte peut être changé (dessous, dessus ou sur un côté), toujours à une distance de 4mm. Ce panneau émet un rayonnement dans le domaine du proche infrarouge [1-12 μm] et sa température peut-être contrôlée jusqu'à 750°C (par puissance imposée). La goutte est injectée manuellement à l'aide d'une micro-seringue permettant ainsi de contrôler le volume lors de la formation.

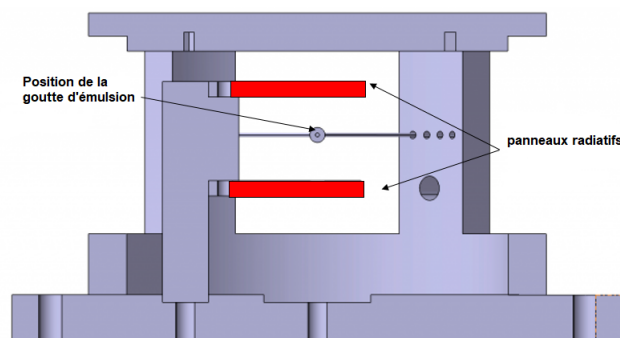


FIGURE 2.5 – Vue en coupe du prototype présentant la position des panneaux radiatifs

Influence de l'épaisseur du plan laser

L'un des points clés permettant d'obtenir des images par LIF de qualité réside dans l'obtention d'un plan laser suffisamment fin par rapport à la taille de la goutte d'émulsion. En effet, un plan laser trop épais résultera en une superposition de gouttes d'eau se situant dans des plans différents (on appelle ici plan la feuille laser malgré le fait qu'elle possède une épaisseur

non-nulle), ce qui entrainerait des erreurs de détection lors du post-traitement.

L'épaisseur du plan laser peut être affiné en variant la position des lentilles par rapport à l'objet à étudier. Un plan laser d'une centaine de microns pour une goutte de 2 millimètres de diamètre permet d'obtenir une image de qualité, à savoir une limitation du chevauchement des gouttes contenues dans plusieurs plans.

2.3 Traitement des données et analyse d'images

Les images brutes sont traitées via *MATLAB* et son environnement *Image Processing Toolbox*. Les différentes opérations de traitement appliquées sont présentées ci-après. Une fois les positions et tailles des gouttes d'eau extraites, ces données sont transmises comme valeurs d'entrée à un algorithme de suivi Lagrangien (Particle-Tracking-Velocimetry) afin d'étudier les trajectoires et vitesses des gouttelettes.

2.3.1 Analyse des Images

L'objectif du traitement de ces images est d'obtenir un discernement optimal des gouttes d'eau au sein de l'émulsion. Nous verrons par la suite que certains éléments peuvent venir perturber cette détection (nucléations, mouvements de la goutte d'émulsion).

Amélioration du contraste entre les deux phases

La première étape du traitement des images acquises est l'amélioration du contraste entre les gouttes d'eau et la phase continue. Pour ce faire, plusieurs traitements combinés sont présentés ici.

- **Imadjust**

La fonction **Imadjust** améliore le contraste d'une image en saturant les 1% de pixels ayant la plus haute et la plus faible intensité lumineuse. Par ailleurs, il est également possible d'ajouter des paramètres d'entrée supplémentaires à la fonction, telles que des bornes minimale et maximale d'intensité à prendre en compte. Ce paramètre sera utilisé afin de supprimer les pixels trop brillants ainsi que les pixels trop sombres dont l'intensité demeure trop faible même après saturation.

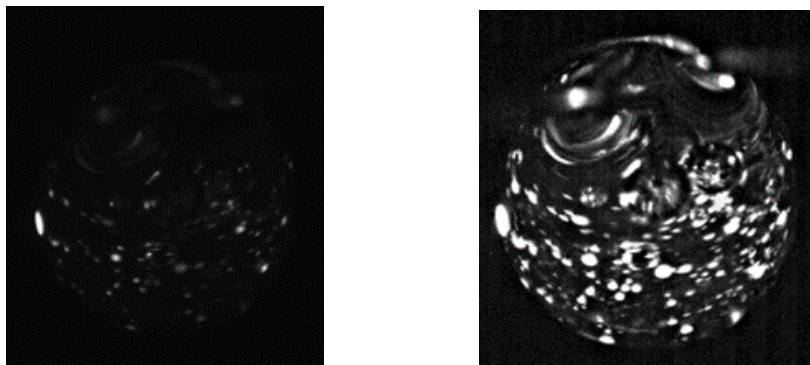


FIGURE 2.6 – image brute (**gauche**) et après amélioration du contraste (**droite**)

Watershed

Un des objectifs fondamentaux lié à l'analyse d'images consiste en la reconnaissance et la segmentation des différents objets la composant. La segmentation consiste en un ensemble d'opérations de morphologie mathématiques permettant de séparer certains objets s'interceptant (dans ce cas des gouttes se chevauchant). Nous avons vu, au paragraphe précédent, qu'il était possible de limiter ce phénomène en affinant l'épaisseur du plan laser, mais il est parfois nécessaire d'y ajouter un traitement supplémentaire.

Gonzalez [127] explique que les images en noir et blanc peuvent être pensées comme étant des surfaces, dont les régions brillantes seraient les points hauts, et les régions sombres les points bas. Il est donc possible de procéder à une séparation des objets se chevauchant lors de la détection en prenant en compte l'intensité lumineuse de chacun des objets.

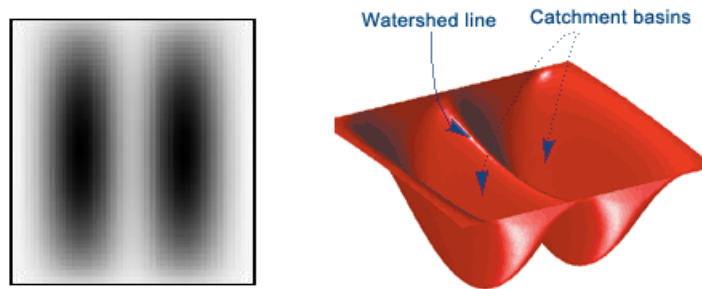


FIGURE 2.7 – image en noir et blanc et sa représentation en bassins (*watershed*)

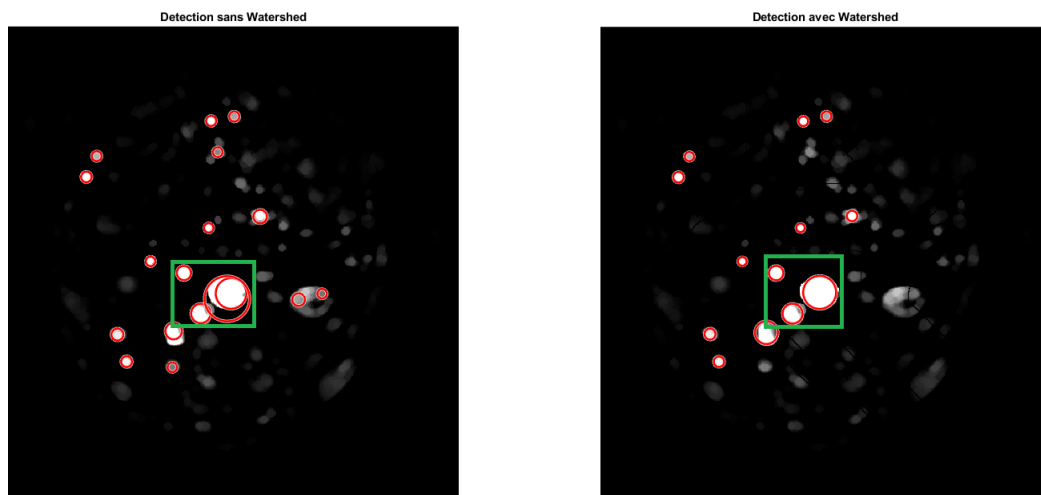
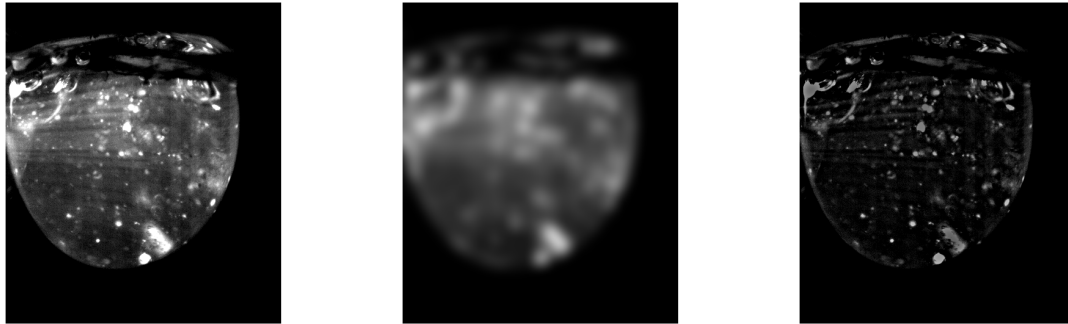


FIGURE 2.8 – Exemple d'application de la fonction Watershed pour la détection de gouttes

La figure 2.7 est une illustration de l'utilité de la fonction **Watershed** et la figure 2.8 un exemple d'application au cas de gouttes se chevauchant. Le rectangle vert affiché sur les deux images représente le cas d'étude. Sur l'image de gauche, où la fonction n'est pas utilisée, on remarque une erreur de détection car deux gouttes présentent aux moins un point de contact. L'algorithme détecte alors une troisième goutte (erronée) passant par au moins un point des gouttes existantes réellement. Sur l'image de droite, la fonction Watershed permet de segmenter les deux gouttes réelles et ainsi de mener à une détection plus précise.



(a) image brute

(b) filtre gaussien

(c) image après soustraction

FIGURE 2.9 – image avant et après application du filtre gaussien pour la soustraction d’arrière-plan

Filtre Gaussien - soustraction d’arrière plan

La soustraction d’arrière plan permet d’améliorer la netteté d’une image, notamment des interfaces et donc des contours des gouttes par une diminution du bruit. Pour ce faire, il est possible d’utiliser un filtre Gaussien, crée à partir du produit de convolution entre l’image brute et sa version floutée. La figure 2.9 montre les différentes étapes de soustraction d’arrière-plan à l’aide d’un filtre Gaussien.

On peut cependant observer une diminution de l’intensité du signal lumineux lors de ce type de traitement, comme le démontre l’image (c) de la figure 2.9. Moussa propose, dans les cas pour lesquels la diminution du contraste serait trop importante, d’utiliser les *Éléments Morphologiquement Structurants* [7, 128] consistant en la création d’un filtre d’une forme et d’une taille choisies. Dans le présent cas, le signal de fluorescence émis par le traceur est suffisamment fort pour utiliser le filtre Gaussien.

imfindcircles

La fonction **imfindcircles**, fondée sur la transformée de Hough, est utilisée afin de détecter le position des centres et le rayon des gouttes d’eau. Tout d’abord, un filtre de *De Canny* est appliqué sur l’image par la fonction afin de détecter les contours des formes circulaires. Pour ce faire un gradient d’intensité est calculé, une valeur élevée indiquant une forte probabilité de présence d’un contour. Par la suite, seul les maximums sont conservés pour représenter ces contours.

Une fois ce filtre appliqué, le calcul des coordonnées du centre et du rayon du cercle est réalisé.

Ici, nous nous proposons d’ajouter un paramètre de mesure supplémentaire à la fonction **imfindcircles**, dénommé **Metrics** dans l’environnement **MATLAB**. Ce paramètre mesure la circularité d’un objet, en retournant une valeur correspondante à $\frac{4\pi A}{\text{perimètre}^2}$, A étant l’air de l’objet. Ce paramètre est donc égal à 1 pour un cercle, et inférieur à 1 pour toute autre forme. En pratique, les gouttes détectées ne sont jamais pleinement circulaires, et le paramètre **Metrics** est ajusté manuellement afin de définir un seuil minimum de gouttes pouvant être détectées. La procédure est donc la suivante :

- L’image brute est traitée à l’aide des différents filtres présentés plus haut.
- Une première détection des gouttes à l’aide de **imfindcircles** est réalisée (figure 2.10). Les valeurs des rayons, position du centre ainsi que le paramètre **Metrics** de chaque goutte sont enregistrés dans une matrice.

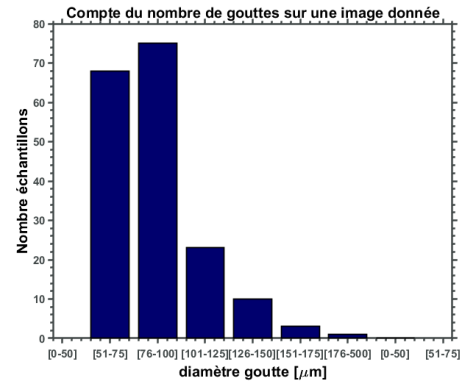
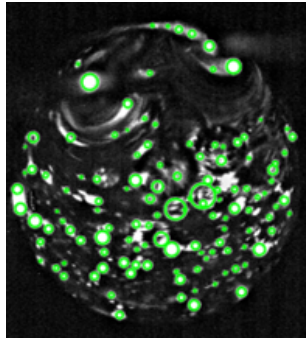


FIGURE 2.10 – identification et comptage des gouttelettes dispersées sur une image

- Un critère seuil du paramètre **Metrics** est fixé arbitrairement (en regardant le taux d'erreur sur la détection des gouttes), et les gouttes ayant un **Metrics** inférieur à la valeur seuil sont écartées.

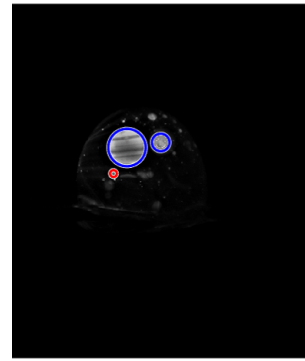
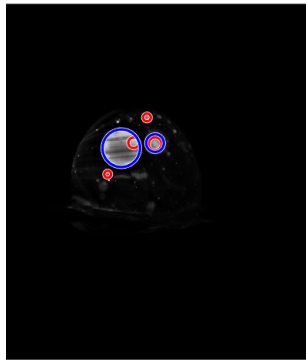


FIGURE 2.11 – Critère Metrics pour l'identifications des gouttes

La figure 2.11 présente un cas d'application de ce critère. En effet, sur la détection (image de gauche), on observe une petite gouttelette (encerclée en rouge) à l'intérieur d'une goutte plus grande (encerclée en bleu). Or, il s'agit d'une erreur de détection (pouvant être liée à des variations locales de l'intensité lumineuse), qui peut être corrigée à l'aide du paramètre de seuil de détection (image de droite).

De surcroît, il est nécessaire de définir un seuil minimal concernant la taille des gouttes détectées afin d'éviter des erreurs pour les objets dont la taille est trop faible devant la résolution de la caméra. Le théorème de l'échantillonnage (théorème de Nyquist-Shannon) appliqué aux systèmes discrets tels que les images (qui sont des matrices de pixels) nous dit qu'il est souhaitable d'avoir un minimum de 3 pixels par dimension de l'objet mesuré. La limite basse de 4 pixels minimum par goutte sera donc imposée à la fonction *imfindcircles*, afin d'avoir une marge suffisante sur la détection.

2.4 Étude de l'importance de la coalescence sur l'obtention de la micro-explosion

La coalescence des gouttelettes d'eau dispersées semble être un des paramètres clés dans l'obtention de la micro-explosion. En effet, plusieurs études citées au chapitre précédent ont mis

en avant la prévalence de ce phénomène sur l'atomisation de goutte d'émulsions, essentiellement de manière qualitative. On citera notamment, l'étude menée par Antonov et al. [8], qui démontre une augmentation du taux de micro-explosion selon la taille de la phase dispersée, avec un maximum atteint pour des gouttes dites "diphases", c'est à dire lorsque la phase dispersée aqueuse est présente sous la forme d'une goutte unique. Cet impact de la coalescence peut être expliqué simplement, car la fragmentation de la couche huileuse d'une émulsion est déclenchée par la libération d'énergie induite par la vaporisation d'une (ou plusieurs) gouttelettes d'eau dispersées. On visualise donc aisément que les grosses gouttelettes d'eau coalescées libéreront une quantité d'énergie importante lors de la vaporisation.

Nous nous proposons, dans cette partie, d'étudier l'impact de ce phénomène sur l'occurrence de la micro-explosion. Le montage expérimental présenté au début du chapitre nous permet d'obtenir une information quantitative de l'évolution temporelle du diamètre moyen de la phase dispersée.

2.4.1 Composition des émulsions et configurations étudiées

Pour cette étude, deux configurations et deux émulsions seront étudiées. La composition des deux émulsions sera la même, à savoir 7%_m d'eau déminéralisée, 0.4 %_m de SPAN 83 et une phase continue de tétradecane. La différence entre les deux émulsions se situe dans la granulométrie de la phase dispersée, contrôlée par la durée et l'intensité de l'agitation. Il y a donc une émulsion dite "grossière" avec un diamètre moyen de la phase dispersée de 20 μm, et une émulsion "fine", avec un diamètre moyen de 12μm.

Configuration	Diamètre moyen de la phase dispersée (μm)	emplacement de la source radiative
A	20	Basse
B	20	Haute
C	12	Basse
D	12	Haute

TABLE 2.1 – Configurations étudiées

2.4.2 Calibration initiale de la température des panneaux

Afin d'obtenir un flux total équivalent dans les deux configurations de chauffage présentées au paragraphe précédent, une calibration préliminaire de la température du panneau est nécessaire. En effet, lorsque le panneau est situé en dessous de la goutte, le flux de chaleur total reçu par la goutte est à la fois convectif (de part la présence d'une masse d'air entre le panneau et la goutte) et radiatif, tandis que lorsque le panneau est situé au dessus de la goutte, le flux total reçu par la goutte est essentiellement radiatif, avec une faible contribution conductive. Nous étudierons ce point par la suite à l'aide d'une modélisation simplifiée du problème, permettant de remonter jusqu'à une estimation de la contribution de chacun des types de transferts de chaleur.

Pour cette calibration préliminaire, nous nous proposons d'étudier la vitesse d'évaporation d'une goutte de n-tétradecane pure en fonction de la température imposée sur le panneau radiatif. Bien évidemment cette calibration souffrira d'imperfections puisque nous utilisons du tétradecane pure à la place de l'émulsion lors de l'expérience. Ce choix s'impose à nous puisque la calibration à l'aide d'une goutte d'émulsions serait rendu délicat de par le délais très variable de micro-explosion d'un essai à l'autre, ainsi que des puffings intermédiaires.

L'étude de l'évaporation de gouttes de carburants pures est très répandue, et sa représentation se fait souvent sous la forme de la loi D^2 , qui représente l'évolution du rapport $(\frac{D}{D_0})^2$ de façon linéaire avec le temps, D_0 étant le diamètre de la goutte au temps initial.

La figure 2.12 représente l'évolution du rapport $(\frac{D}{D_0})^2$, pour plusieurs températures et configuration du panneau radiatif (au dessus et en dessous de la goutte). On observe une superposition des courbes "700°C TOP" et "430°C BOT", qui traduit l'égalité du flux total reçu par la goutte. La différence de température entre les deux configurations s'explique par le type de flux

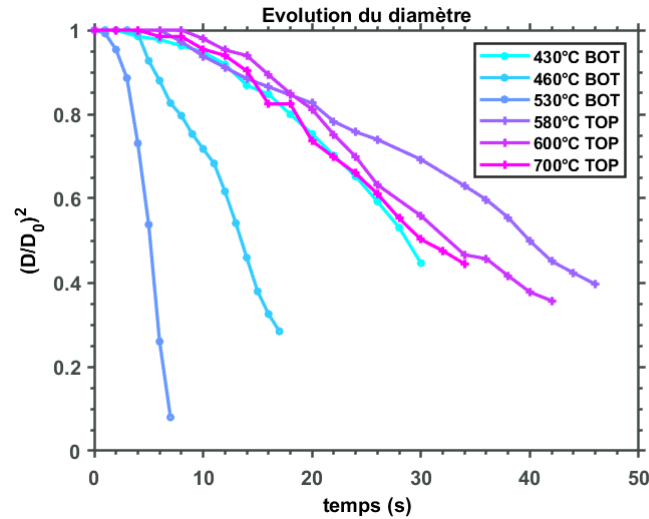


FIGURE 2.12 – Mesure de l'évaporation d'une goutte de n-tétradecane en fonction de la température

reçu par la goutte. En effet, comme déjà mentionné, lorsque la source de chaleur est positionnée en dessous de la goutte, le flux est à la fois convectif et radiatif, tandis que lorsque la source de chaleur est située au dessus de ladite goutte, le flux est uniquement radiatif (nous verrons plus tard que la contribution de la conduction thermique est négligeable). Il est donc nécessaire d'augmenter la température lorsque le flux est uniquement radiatif pour compenser la part liée à la convection naturelle.

Les deux configurations résultant en une égalité du flux seront donc retenues pour le début de la campagne expérimentale.

2.4.3 Mesure de l'évolution du diamètre moyen de la phase dispersée

Nous nous intéressons ici à la mesure de l'évolution temporelle du D_{moyen} des gouttelettes de la phase dispersée. Cette information nous permettra de mesurer le niveau de coalescence d'émulsions en fonction de différents paramètres, notamment la dispersion initiale.

Pour chaque cas étudié, les images enregistrées sont traitées et l'identification des gouttes est rendue possible à l'aide des différents outils présentés section 2.3.

Les configurations étudiées sont celles présentées dans le tableau 3.1 à savoir une émulsion grossière ($D_{moy} = 20\mu m$), une plus fine ($D_{moy} = 12\mu m$) et deux positions du panneau radiatif (en haut et en bas de la goutte d'émulsion).

La figure 2.13 montre l'évolution temporelle du diamètre moyen des gouttes détectées pour

les différentes configurations d'intérêt. Ce tracé représente la moyenne d'une série de 16 mesures (4 par configuration). Ce choix de 4 mesures par configuration a été motivé par la volonté d'obtenir un minimum de données afin de pouvoir réaliser un traitement "statistique" (moyenne et dispersion des résultats), tout en évitant d'avoir une quantité de données trop grande à traiter. Pour chaque point, la moyenne des écarts entre les séries et la série dite "moyenne" est calculée et est représentée sous la forme de barres d'erreurs verticales.

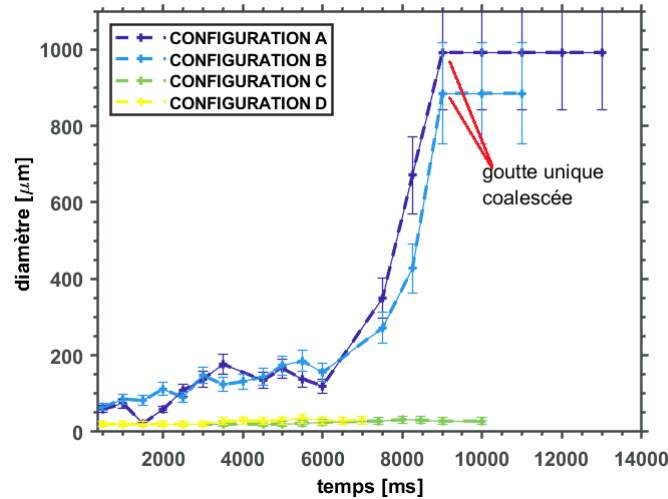


FIGURE 2.13 – Évolution temporelle du diamètre moyen de la phase dispersée

On peut donc voir, que les configurations A et B (émulsions grossières) présentent le plus haut taux de coalescence, résultant en une goutte unique ou quelques gouttes dont la taille est toujours supérieure à $500 \mu\text{m}$. Ces configurations présentent les taux de micro-explosion les plus élevés, qui seront mesurés section 2.4.4.

Concernant les émulsions fines (configurations C et D), on observe un degré de coalescence quasiment inexistant qui traduit un très faible taux de micro-explosion. Nous verrons, par la suite, que pour ces configurations, les mouvements de la phase dispersée sont très importants, et qu'ils limitent grandement la coalescence. L'intensité de ces mouvements sera quantifiée à l'aide d'un indicateur mesurant les vitesses et tailles de ces micro-gouttelettes d'eau.

2.4.4 Mesure du taux et du délai de micro-explosion

Il semble pertinent de relier les niveaux de coalescence de chaque configuration au taux de micro-explosion, afin de voir si il s'agit bien d'un facteur favorisant cette dernière et de le quantifier.

Pour chaque configuration, un total de 25 points de mesure a été effectué. L'objectif de cette mesure est de comprendre si des différences entre les deux configurations (position basse et haute du panneau radiatif) sont observées. Ces différences pourraient en effet être induites par le type de flux de chaleur fournit à la goutte; en effet comme nous l'avons vu précédemment, le flux est principalement radiatif lorsque le panneau est situé au dessus de la goutte.

Taux de micro-explosion

Le taux de micro-explosion a été mesuré pour les 4 configurations nous intéressant ici (voir également section 2.4.1). Les résultats sont présentés dans le tableau 2.2. La configuration A (émulsion grossière - chauffage par le bas de la goutte) est celle qui présente le taux de micro-explosion le plus haut. Comme nous l'avons vu précédemment, cette configuration présente le plus haut degré de coalescence, se concluant le plus souvent par une goutte d'eau unique. Cette configuration est la plus propice à l'obtention de la micro-explosion, de part la quantité d'énergie importante libérée lors de la vaporisation de cette goutte.

Ensuite, la configuration B (même granulométrie, chauffage radiatif), présente un taux d'atomisation plus faible (50 %). Cette différence pourrait provenir du type de flux apporté à la goutte d'émulsion. En effet, dans le cas de la configuration B, le flux est principalement radiatif, tandis qu'il est à la fois convectif et radiatif pour la configuration A.

Concernant les configurations C et D, on voit que le taux de micro-explosion est nul, avec seulement des "puffings" observés. Comme montré par la figure 2.13 ; la coalescence est quasiment inexistante pour ces configurations. En effet dans ces cas, l'intensité des mouvements de la phase dispersée est la plus forte, comme nous le verrons de manière quantitative par la suite. Tous ces éléments tendent donc à confirmer la prépondérance du facteur coalescence sur la réalisation de la micro-explosion.

Configuration	taux de micro-explosion (%)
A	80
B	50
C	0
D	0

TABLE 2.2 – taux de micro-explosion pour les différentes configurations étudiées

Délais de micro-explosion

Pour mesurer avec précision le délais de micro-explosion des gouttes, la fréquence d'acquisition de la caméra a été placée à 5000 FPS. Cela nous permet d'enregistrer avec précision le moment exact de l'atomisation. La figure 2.14 montre les délais de micro-explosion obtenus pour les différentes configurations. Les deux configurations principales (configuration haute - température = 700°C et configuration basse - température = 430°C) ainsi que deux températures intermédiaires ont été étudiées.

On peut constater que, pour la configuration **BOT**, le délais de micro-explosion diminue lorsque la température (et donc le flux de chaleur apporté à la goutte) augmente. Si l'on compare maintenant les deux configurations ayant donné le même résultat lors de la calibration préliminaire via la loi D^2 , à savoir **430°C BOT** et **700°C TOP**, on observe le même type de fourchette concernant les résultats obtenus. Cependant, étant donné le large spectre des valeurs obtenues (les valeurs peuvent varier du simple au triple pour la même configuration), il semble nécessaire d'apporter des explications supplémentaires quant à cet écart-type important.

- Tout d'abord la micro-explosion est un phénomène stochastique, dépendant de la différence de température de changement de phase entre les deux liquides composants l'émulsion. Dans certains cas, l'eau peut atteindre un niveau de métastabilité relativement élevé. Dans la présente expérience, la présence des fils pour suspendre la goutte créé une zone où la nucléation hétérogène est susceptible de se développer. D'un cas à l'autre, le niveau de métastabilité peut être relativement haut, retardant ainsi le délais de micro-explosion,

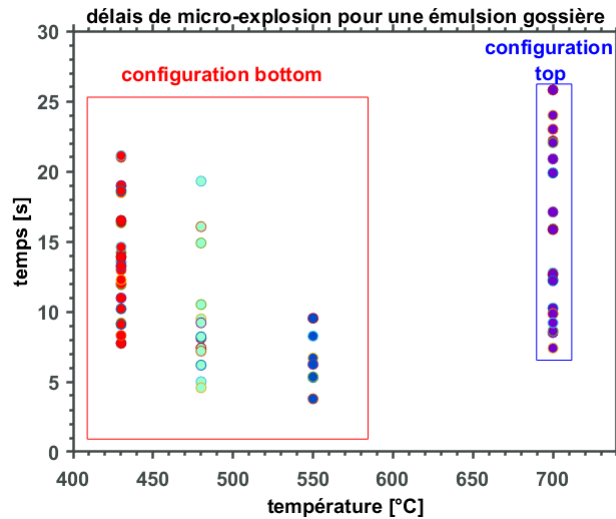


FIGURE 2.14 – Délais de micro-explosion pour plusieurs configurations

ou bien la nucléation hétérogène peut précipiter le changement de phase, réduisant ainsi le délais avant micro-explosion.

- D'une goutte à l'autre, la quantité d'eau injectée peut varier sensiblement. Bien que l'émulsion ai été agitée de manière continue afin de ne pas obtenir des variations de la granulométrie, il se peut que la quantité d'eau d'une goutte l'autre varie légèrement. Cela pourrait donc avoir une influence concernant la dispersion des délais de micro-explosion.

2.5 Analyse des trajectoires des gouttelettes d'eau au sein de l'émulsion

L'objectif est ici de démontrer l'existence des mouvements de convection naturelle lors du chauffage de l'émulsion, permettant un transport des gouttelettes d'eau au sein de l'émulsion et d'en mesurer la vitesse.

2.5.1 Analyse qualitative

Dans un premier temps, nous nous proposons de réaliser une analyse qualitative des images obtenues à l'aide du montage LIF, afin d'appréhender le phénomène qui sera par la suite approfondi par des analyses quantitatives.

Dans l'exemple qui suit, le panneau radiatif est situé en bas de la goutte d'émulsion, et est fixé à une température de 430 °C. Cette température permet d'éviter un taux de nucléation hétérogène trop important au niveau des fils, source de perturbation importante en rapport au phénomène étudié.

La figure 2.15 représente la trajectoire d'une gouttelette d'eau isolée sur une période de 20 ms.

On constate une trajectoire ascendante de la goutte sur cette période, s'éloignant progressivement de la source de chaleur. Nous pouvons donc naturellement émettre l'hypothèse que la gouttelette d'eau est "charriée" par les mouvements de convection naturelle de la phase continue. La goutte d'émulsion est injectée à l'aide d'une seringue manuelle au niveau de l'intersection des deux fils présentés ci-avant. Il était donc important d'écarter l'hypothèse que les mouvements

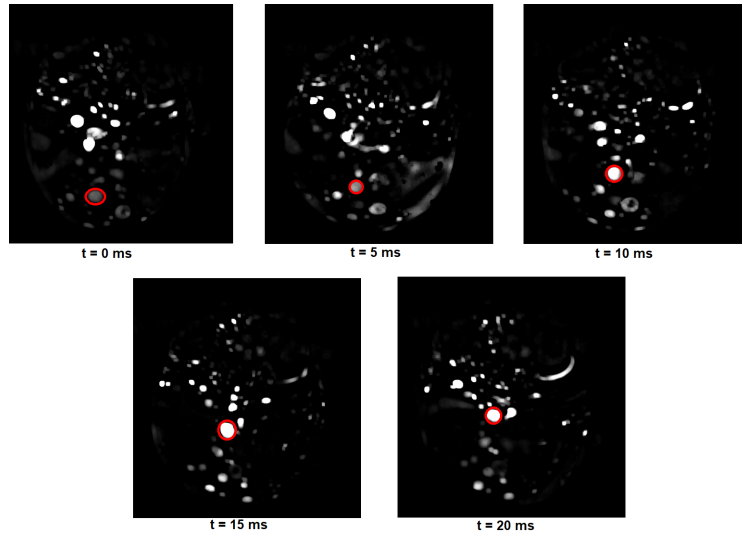


FIGURE 2.15 – Suivi de la trajectoire d'une goutte d'eau isolée

des gouttes d'eau étaient induits par une impulsion d'origine mécanique lors de l'injection. Plusieurs éléments de réponses ont donc été apportés.

Premièrement, le montage expérimental LIF permet de vérifier que les mouvements des gouttelettes d'eau lors de l'injection sont absents en absence de chauffage. En effet, l'expérience de l'injection d'une goutte d'émulsion à température ambiante a été réalisée et seule de la sédimentation a été observée. De plus, les mouvements convectifs visualisés sont globaux, à savoir qu'un nombre important de gouttelettes dispersées suivent les mêmes trajectoires, ce qui est un indice de plus en faveur de la convection naturelle.

Expérience de convection naturelle dans une goutte pure

Afin de vérifier l'hypothèse de l'existence du phénomène de convection naturelle lors du chauffage d'une goutte d'émulsion, une étude annexe a été conduite dans une goutte de n-tétradécane pure. L'objectif de la présente expérience est de visualiser, de manière qualitative, si le chauffage d'une goutte d'huile pure induit des mouvements du fluide qui pourraient résulter en un transport des gouttes d'eau dispersées au sein d'une émulsion.

Pour ce faire, du tétradécane pure a étéensemencée avec des billes de carbone, de diamètre $D_{moy} = 40\mu\text{m}$. L'intérieur de la goutte est observée par ombroscopie à l'aide d'une lampe à halogène. La surexposition de la goutte à la lumière permet de visualiser les particules de carbone en mouvement durant le chauffage (figure 2.16). L'expérience est réalisée pour les deux

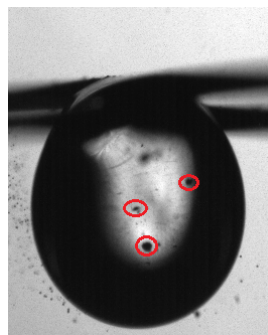


FIGURE 2.16 – Visualisation de particules de charbon disséminés dans une goutte de tétradécane

configurations nous intéressant ; à savoir la source de chaleur radiative située respectivement au-dessus et en-dessous de la goutte.

Dans les deux-cas présentés, des mouvements des particules de charbon ont été observés.

Lorsque la source de chaleur est située en-dessous de la goutte, l'observation d'une convection naturelle semble faire sens. En effet, la partie basse de la goutte étant plus proche de la source de chaleur, on observera un gradient de température entre cette partie basse et la partie haute de la goutte. Ce gradient de température, induit un gradient de densité (la densité diminue lorsque la température augmente) dans la goutte. C'est ce gradient de densité qui est le moteur du phénomène de convection naturelle. La figure 2.17 est une représentation schématique des premiers instants du chauffage de la goutte enclenchant le brassage du fluide. Dès lors que le fluide est situé proche de la source de chaleur, il verra sa température augmenter localement, avant de remonter (de part sa densité plus faible), se refroidir, et voir sa densité augmenter à nouveau, et ainsi redescendre et se rapprocher de la source de chaleur, de manière cyclique. Ce phénomène est évidemment rendu possible de part la présence de la gravité terrestre.

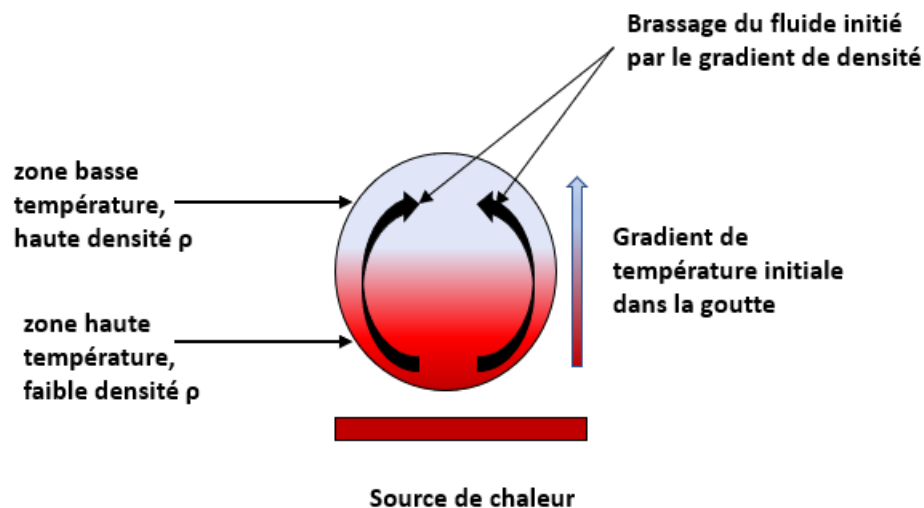


FIGURE 2.17 – Schématisation du phénomène de convection naturelle au sein d'une goutte

Lorsque la source de chaleur est située au-dessus de la goutte, des mouvements internes du fluides (également détectés grâce aux billes de charbon au sein du fluide) ont également été observés.

Dans ce cas de figure, étant donné la position de la zone de haute température et de faible densité (partie haute de la goutte), il semble improbable que les mouvements observés soit liés à de la convection naturelle (la partie de faible densité stagnerait en partie haute de la goutte, proche de la source de chaleur sans brassage quelconque).

Cependant, un autre type de convection naturelle pourrait être à l'origine de ces mouvements. En effet, comme présenté dans le Chapitre 1, les gradients locaux de tension de surface peuvent induire un "brassage liquide" important, et parfois dominant sur la convection *thermogravitaire*. La quantification de la contribution de l'effet Marangoni et de la convection *thermogravitaire* sera traitée dans les Chapitres 3 et 4. Nous nous intéresserons, dans la suite du présent Chapitre, aux comportements de la phase dispersée et aux écoulements internes observés.

2.6 Analyse des trajectoires à l'aide d'un algorithme de PTV

Description de l'algorithme de PTV

Nous décrivons ici succinctement le fonctionnement de l'algorithme PTV utilisé pour le suivi des trajectoires des gouttes de la phase dispersée. Cet algorithme est celui développé par Bendicks et al. [129], et employé par la suite par Tarlet et al. [130] pour des mesures d'écoulements 3D.

Dans un premier temps, un programme identifie les coordonnées et les rayons des gouttes d'eau à chaque instant d'une séquence d'image définie, puis les sauvegarde dans une matrice de taille $[n \times 3]$, les 3 colonnes de la matrice représentant les coordonnées x,y ainsi que le rayon des gouttes.

Cette identification est rendue possible par les outils tels que la transformée de Hough couplés aux méthodes de traitements d'images présentées dans la section 2.3.

La détermination du déplacement d'un objet est obtenu par la méthode suivante : le déplacement (passage des coordonnées (x,y) depuis le pas de temps t à l'instant t_{+1}) le plus plausible est recherchée parmi la multitude de déplacement possibles à l'intérieur d'une "fenêtre d'interrogation définie au préalable. Pour ce faire, un *critère de pénalisation* est défini selon le principe de l'accélération minimale [130]. Le(s) voisin(s) le plus proche d'une particule entre les deux instants (images) successifs du traitement est recherché ; pour se faire, une distance R_{max} de déplacement pour une particule d'une image à une autre est choisie. R_{max} est choisie de manière à être un peu plus longue que le déplacement moyen des traceurs entre les images successives. Ce critère R_{max} permet de délimiter une zone de déplacement maximale des particules entre t et t_{+1} afin de réduire le nombre de particules candidates.

Pour les pas suivants, le critère d'accélération minimal est utilisé : ce paramètre vise à chercher la solution qui minimise la différence de vitesse d'une particule entre les instants t et t_{+1} :

$$\phi_{i,j} = \sum_{i=1}^{\min(N_1, N_2)} \|V_i^{t_2} - V_i^{t_1}\|^2 \quad (2.1)$$

Ce critère est ensuite minimisé entre l'instant t à l'instant t_{+1} :

$$\sum_{i,j} \phi_{i,j} \rightarrow \min \quad (2.2)$$

Le traitement des coordonnées des particules par l'algorithme à l'aide des différents critères est résumé sur la figure 2.18.

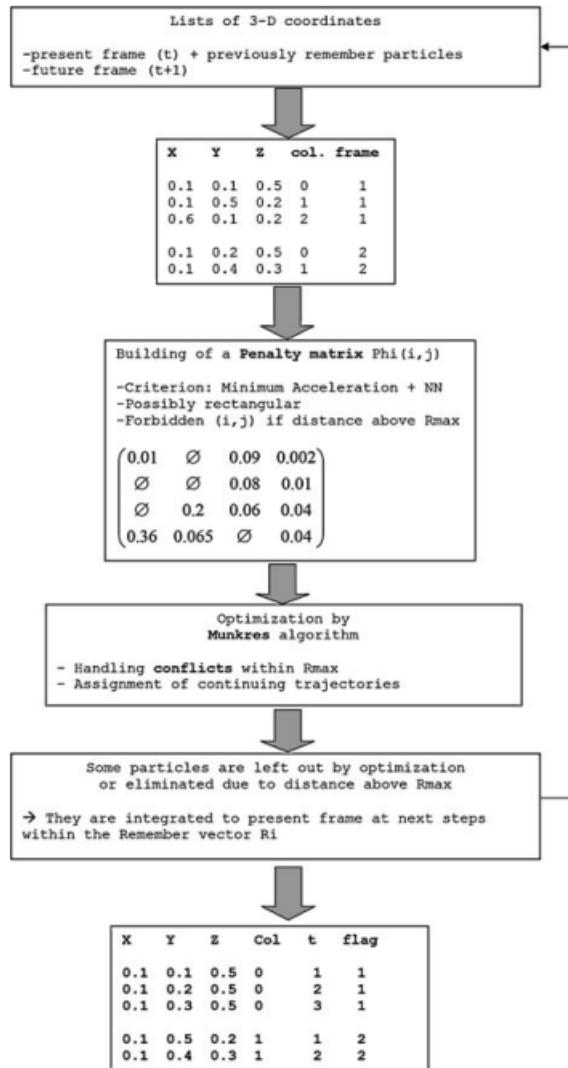


FIGURE 2.18 – Diagramme représentant la traitement des coordonnées par l’algorithme de PTV à l’aide de 3 critères [130]

Étude des trajectoires des gouttelettes de la phase dispersée par PTV

Dans cette section, nous présenterons plusieurs configurations de chauffage d’une goutte d’émulsion induisant des mouvements de la phase dispersée. Plusieurs cas seront présentés, en fonction notamment de la position de la source radiative. Pour tous les résultats présentés ci-après, le type d’émulsion est le même à savoir :

- Une composition de 7%_m d’eau, 0.4%_m de surfactant (SPAN 83), dans une phase continue de n-tétradecane.
- une dispersion "fine", à savoir un D_{moyen} de la phase dispersée de 12 μm

Source radiative située en bas de la goutte d’émulsion

Nous présenterons ici plusieurs cas représentatifs des trajectoires des gouttelettes d’eau durant une période d’échantillonnage de 200 à 300 millisecondes, avec la source de chaleur située en dessous de la goutte d’émulsion. Le temps caractéristique de circulation d’une gouttelette d’eau (temps nécessaire à la réalisation d’un tour complet à l’intérieur de la goutte mère) a été calculé à environ 80 millisecondes.

Premièrement, il est important d'expliciter la durée d'échantillonnage des trajectoires par PTV. En effet, la durée totale de chauffe de la goutte d'émulsion est de plusieurs secondes (durée pouvant être variée en fonction de la température de la source), mais les trajectoires ne sont identifiées que pour des fenêtres de quelques centaines de millisecondes. Cette durée relativement restreinte s'explique par la caractéristique purement transitoire du phénomène étudié :

- Aux premiers instants de la montée en température, la goutte d'émulsion a un aspect "laiteux", les gouttelettes dispersées étant de très petites tailles, avec une répartition homogène à l'intérieur de la goutte mère. Ces premiers instants rendent la visualisation et l'identification (taille et position) extrêmement difficile.
- Une fois l'aspect laiteux de l'émulsion disparu au profit d'un aspect plus transparent permettant la visualisation, le caractère purement transitoire des transferts de chaleurs et de quantité de mouvement ne permet pas la mise en place d'un régime de convection naturel unique et établi durant la durée restant avant l'atomisation. Plusieurs événements vont venir perturber l'écoulement interne des gouttelettes d'eau :
 - les puffings intermédiaires induisent des déformations ainsi que des déplacements de la goutte d'émulsion, résultant en des fortes perturbations du régime convectif internes (on observe un arrêt voir parfois une inversion des déplacements des gouttelettes d'eau).
 - le mode de suspension de la goutte (fils croisés), engendre la création de sites de nucléations hétérogènes, facilitant les puffings et donc les perturbations de l'écoulement.

Malgré les phénomènes perturbateurs présentés ici, il est possible d'observer des régimes de convection naturelle à travers une phase continue suffisamment transparente, avec une topologie de l'écoulement bien caractérisée, pendant une durée de 200 à 400 ms et ce de manière répétitive au cours d'une durée totale de chauffage de l'ordre de 3 à 6 secondes. Bien débridement, le mouvement d'ensemble des gouttelettes d'eau est dans le présent cas la projection sur une image 2-D d'une réalité tri-dimensionnelle sphérique.

Il en ressort un mouvement d'ensemble des gouttes, dont la forme est toroïdale (ou en "Donuts") en trois dimensions (cette conclusion est basée sur un résultat 2D ainsi qu'une observation dite "à l'oeil nu" en 3D, la reconstruction des trajectoires en 3D nécessitant l'utilisation de deux caméras par stéréo-PIV).

Néanmoins, ce résultat nous permet de confirmer l'existence de mouvements de convection naturelle de la phase dispersée durant le chauffage. De plus, les mouvements observés, montrent que les gouttelettes auront tendance à ne pas se croiser et donc à ne pas se percuter (et coalescer) de part le parallélisme de leurs trajectoires. Ce résultat est important car il met en évidence le fait que la convection naturelle semble défavoriser le phénomène de coalescence, qui est un des éléments fondamentaux permettant l'obtention de la micro-explosion.

La figure 2.19 représente trois résultats issus de trois périodes d'échantillonnage différentes. Les trois cas sont des extraits les plus représentatifs de 15 cas étudiés et qui résultent en des visualisations des trajectoires les plus optimales. Malgré une certaine variabilité dans la direction empruntée par les gouttes (notamment sur la verticalité des trajectoires d'un cas à l'autre), on observe à chaque fois que les gouttelettes d'eau sont advectées dans un mouvement d'ensemble en suivant l'un des schémas présentés sur la figure 2.19. De plus, pour les 15 cas traitées par PTV, les plages de vitesses mesurées sont toujours identiques, avec un maximum situé à 70 mm/s.

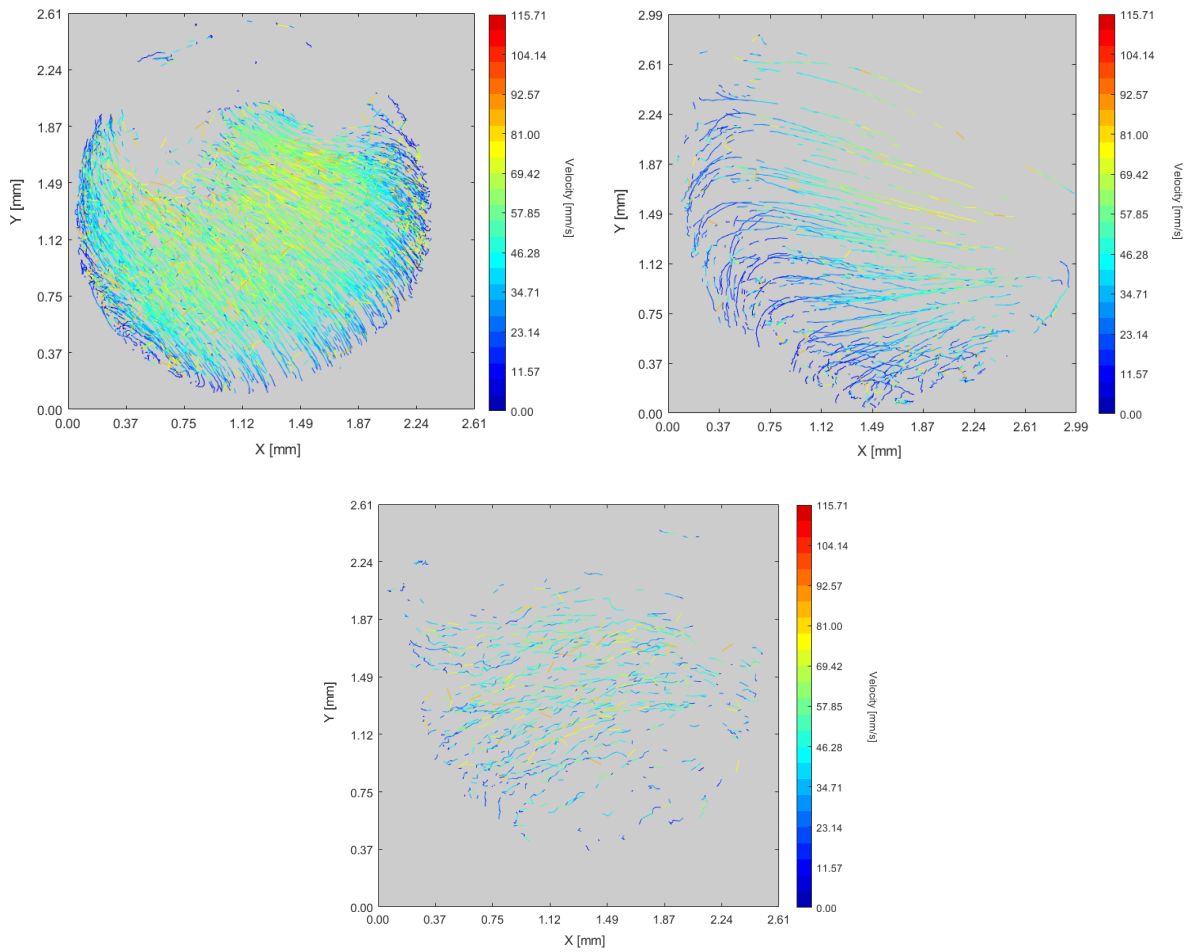


FIGURE 2.19 – analyse des trajectoires des gouttelettes d’eau sur une plage de 200 ms pour 3 périodes d’échantillonnage - **configuration BOT**

Source radiative située en haut de la goutte d’émulsion

La figure 2.20 représente les résultats de 3 analyses PTV issues de 3 périodes différentes lorsque la source de chaleur est située au-dessus de l’émulsion. Pour chaque résultat, la durée d’échantillonnage était également comprise entre 200 et 300 ms. On peut constater leur caractère beaucoup plus vertical des trajectoires, correspondant à un mouvement de bas en haut des gouttelettes d’eau. Cette différence est notable par rapport aux cas pour lesquels la source de chaleur est située en dessous de la goutte d’émulsion, où les trajectoires des gouttes possèdent une composante horizontale importante.

La différence en nombre de trajectoires identifiées sur les trois images de la figure 2.20 s’explique par la quantité de gouttes visibles et identifiables pour chaque cas.

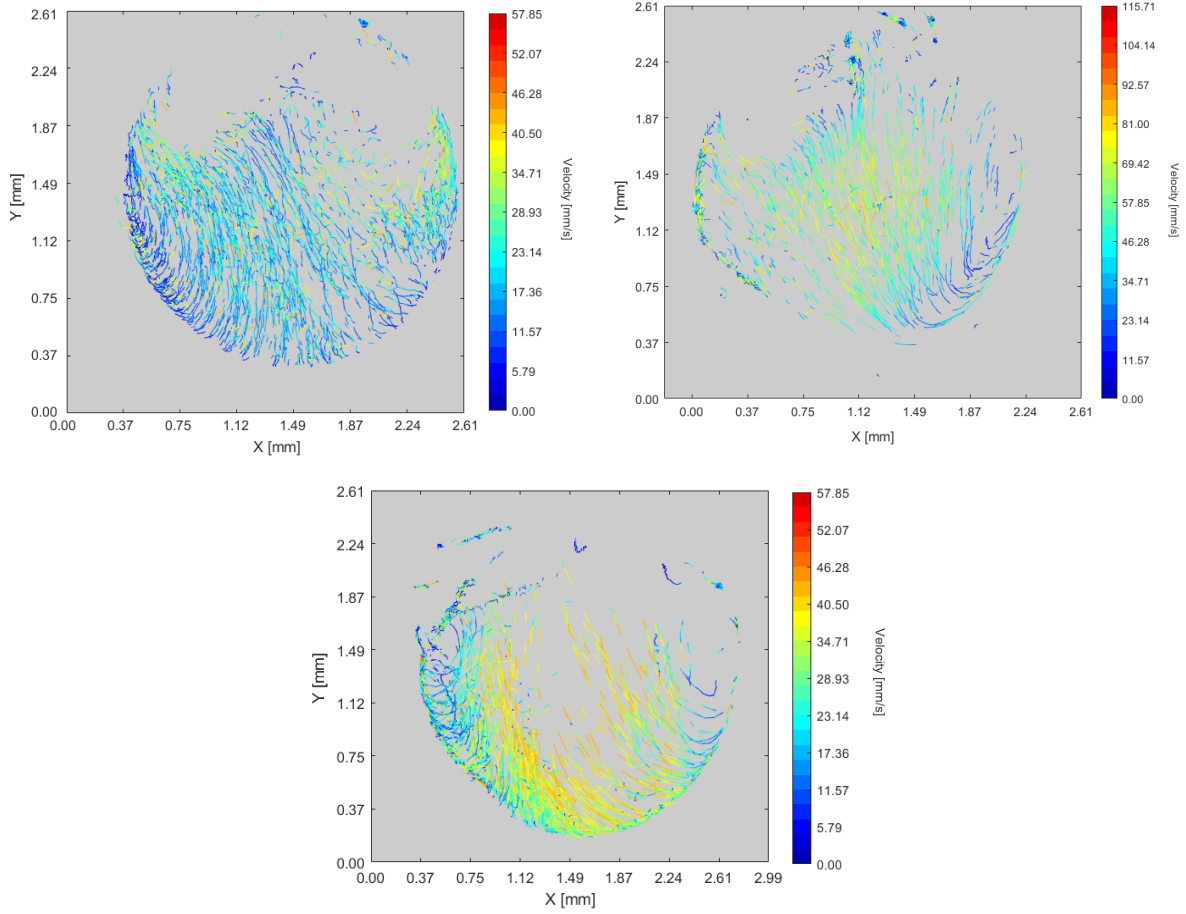


FIGURE 2.20 – analyse des trajectoires des gouttelettes d’eau sur une plage de 200 ms pour 3 cas - **configuration TOP**

2.6.1 Hypothèse sur la vitesse de l’écoulement de la phase continue par le nombre de Stokes

Les données récoltées ont permis d’obtenir des informations sur la vitesse des gouttelettes d’eau dispersées. Cependant, la vitesse de la phase continue (n-tétradécane), reste inconnue et ne peut pas être mesurée directement en l’état. Nous nous proposons donc d’émettre l’hypothèse que les micro-gouttes d’eau se comportent comme des traceurs parfaits (Nombre de Stokes « 1) et d’utiliser les valeurs des vitesses obtenues par PTV afin de calculer ce nombre adimensionnel. Le nombre de Stokes étant donné par :

$$St = \frac{1}{18} \frac{\rho_p d_p^2 v}{\rho_f \nu_f l_c} \quad (2.3)$$

Avec respectivement ρ_p et d_p la densité et le diamètre des particules (ici des micro-gouttes d’eau), ρ_f la densité de la phase continue, ν_f sa viscosité et v la vitesse de l’écoulement.

Une fois l’hypothèse que les micro-gouttes d’eau de la phase dispersée se comportent comme des traceurs adoptée, le calcul du nombre de Stokes est réalisé en prenant comme donnée d’entrée la plage de vitesses des dites gouttelettes d’eau. Les résultats sont présentés sur la figure 2.21. On peut donc constater que pour la plage de vitesses étudiées (allant de 5 à 70 mm/s), le nombre de Stokes est de plusieurs ordres de grandeurs inférieur à 1 et ce pour plusieurs diamètres de gouttelettes et longueurs caractéristiques de l’écoulement (même lors de l’évaporation de la

goutte mère) représentés par les paramètres L_{part} et L_{flow} . Ceci nous permet donc d'affirmer que les gouttelettes d'eau se comportent comme des traceurs parfaits, et ainsi que la vitesse de ces gouttes mesurées par PTV sont très proches de la vitesse de l'écoulement interne de la phase continue huileuse.

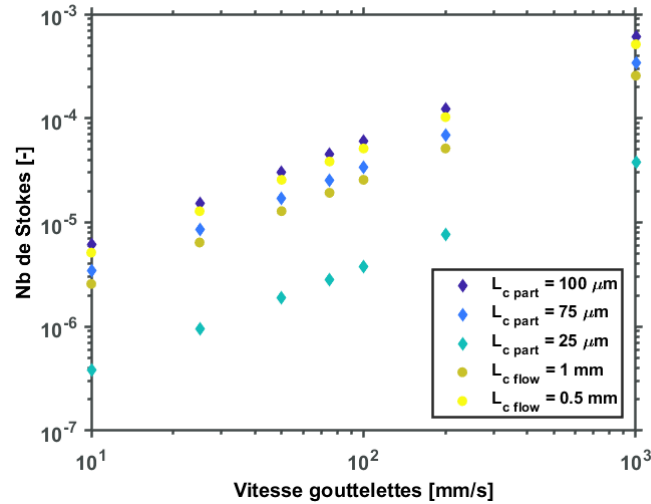


FIGURE 2.21 – Evolution du nombre de Stokes selon la vitesse des gouttelettes d'eau (traceurs)

Cette vérification nous permet donc de remonter jusqu'à une approximation de la vitesse de l'écoulement interne de la phase continue à partir des vitesses des gouttes d'eau dispersées qui ont été utilisées comme des traceurs ensemencés au sein de cet écoulement. De plus, ces résultats seront confirmés lors d'une étude du champ de vitesses au sein de la phase continue prise seule dans le Chapitre 4.

En outre, le calcul du nombre d'Archimède permet de caractériser la sédimentation de la phase dispersée au sein de la goutte mère. Il est défini par l'équation suivante :

$$Ar = \frac{gd_p^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f)}{\mu_f^2} \quad (2.4)$$

Le tableau 2.3 répertorie l'évolution du nombre d'Archimède en fonction du diamètre des gouttelettes d'eau de la phase dispersée. Ce tableau permet d'affirmer que pour des diamètres de gouttelettes d'eau supérieurs à $100 \mu m$, la sédimentation deviendra non négligeable, entraînant ainsi la coalescence de la phase dispersée, comme nous l'avons vu au préalable dans le cas d'émulsions grossières. En dessous, la sédimentation sera faible voir inexistante et les microgouttes d'eau seront advectées par l'écoulement comme démontré par le nombre de Stokes ainsi que les trajectoires de PTV.

Ainsi, ces calculs des nombres adimensionnels de Stokes et d'Archimède nous permettent de faire une hypothèse quant à la vitesse de l'écoulement interne au sein de la goutte d'émulsion depuis la vitesse de la phase dispersée extraite par PTV. De plus, on obtient un diamètre limite de la phase dispersée au-delà duquel la sédimentation deviendra importante et se traduira par une force coalescence (se traduisant par un taux de micro-explosion plus élevé).

Diamètre des gouttelettes (μm)	Nb d'Archimède
25	0.032
50	0.26
75	0.87
100	2
200	16

TABLE 2.3 – Nombre d'Archimède en fonction du diamètre des particules

2.7 Relation entre convection naturelle et micro-explosion

Il a été possible d'identifier des régimes intermittents de convection au sein d'une goutte d'émulsion lors de sa montée en température. Néanmoins, il est maintenant nécessaire de quantifier à quel point ce phénomène est favorable où non à l'obtention de la micro-explosion.

Cette section présente un indicateur permettant de faire le lien entre l'étude des mouvements convectifs au sein d'une goutte d'émulsion et le taux de micro-explosion. En effet, il a été observé expérimentalement, que les émulsions grossières, possédant un D_{moyen} élevé, ont un taux de micro-explosion élevé de part la coalescence rapide de la phase dispersée en une ou quelques gouttes de tailles importantes. Ces gouttes de tailles importantes sont peu ou pas soumises aux "brassage" liquide interne.

Par opposition, les émulsions possédant un D_{moyen} faible, voient leur phase dispersée fortement advectée par l'écoulement, et ne subissent donc que très peu la coalescence résultant en un taux de micro-explosion plus faible.

L'observation ainsi que les résultats reliant la coalescence au taux de micro-explosion présentés section 2.4 nous ont emmené à tirer une première conclusion sur l'impact négatif des mouvements de la phase dispersée sur l'atomisation d'une goutte d'émulsion. Il serait donc pertinent de trouver un indicateur quantitatif permettant d'explicitier cet impact. Les indications à notre disposition sont la vitesse des gouttes à un instant donné et le diamètre correspondant. Nous définissons donc l'indice suivant :

$$I = \frac{D_{ref}}{\|\vec{v}_{ref}\|} \times \left(\frac{\|\vec{v}_i\|}{D_i} \right) \quad (2.5)$$

Où D_{ref} est un diamètre de la goutte mère de référence pris à $2.5 \cdot 10^{-3}$ m, v_{ref} une vitesse de référence prise à $2 \cdot 10^{-2}$ m/s, $\|\vec{v}_i\|$, la vitesse de la gouttelette d'eau identifiée, D_i son diamètre. Le ratio $\frac{D_{ref}}{v_{ref}}$ peut être vu comme un temps caractéristique de circulation pour une gouttelette d'eau.

L'indicateur prend en compte un total de 200 images pour l'échantillonnage. Pour chaque cas, un total de 1000 à 10 000 échantillons sont pris en compte et analysés. Les valeurs hautes de l'indicateur I montrent une circulation interne intense, tandis que les faibles valeurs de I démontrent la présence de gouttelettes d'eau plus grosses avec de faibles vitesses, traduisant un taux de coalescence beaucoup plus important. Le tableau 2.4 répertorie 16 cas pour lesquels l'indicateur I a été mesuré ainsi que la réalisation ou non de la micro-explosion.

On observe que la micro-explosion est obtenue pour des valeurs de I allant jusqu'à 15. Ces valeurs basses représentent des cas pour lesquels les vitesses des gouttelettes dispersées sont

faibles et les diamètres relativement grands. Par opposition, pour des valeurs supérieures à 19 (représentant des mouvements intenses de la phase dispersée et peu de coalescence), la micro-explosion n'est jamais observée. On notera la présence d'une zone dite "grise" entre 15 et 19. Cet indicateur nous permet donc de quantifier l'intensité des mouvements des gouttelettes de la phase dispersée et de confronter cette intensité à l'apparition du phénomène de micro-explosion. La relation entre l'indicateur I et l'apparition ou non de la micro-explosion est présentée graphiquement sur la figure 2.22.

Type d'émulsion	Position de la source de chaleur	Indicateur I	M-E Oui/Non
Grossière	BOT	7.1	Oui
Grossière	BOT	9.4	Oui
Grossière	BOT	15	Oui
Fine	BOT	22.2	No
Fine	BOT	44	Non
Fine	BOT	47.2	Non
Fine	BOT	54.8	Non
Fine	BOT	70.9	Non
Grossière	TOP	6.6	Oui
Grossière	TOP	7	Oui
Grossière	TOP	8.8	Oui
Grossière	TOP	19	Non
Fine	TOP	32	Non
Fine	TOP	47.6	Non
Fine	TOP	51.7	Non
Fine	TOP	54.2	Non

TABLE 2.4 – Mesure de l'intensité de l'advection de la phase dispersé par le critère adimensionnel I

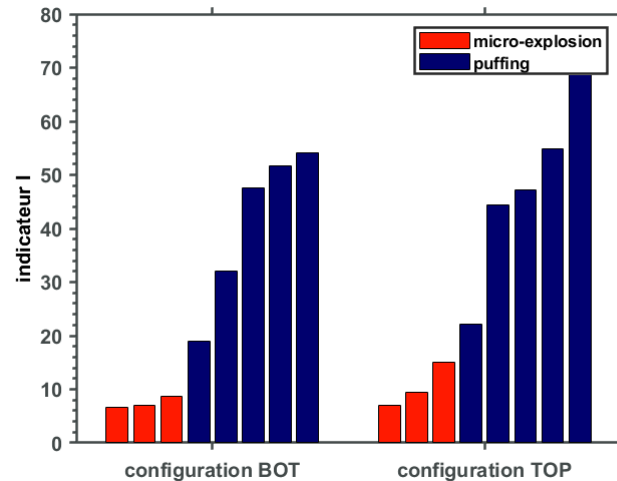


FIGURE 2.22 – Micro-explosion/Puffing en fonction de l'indicateur I

2.8 Conclusion

L'objectif de ce chapitre consistait en l'étude de l'impact du comportement de la phase dispersée d'une émulsion W/O sur la réalisation de l'atomisation de la goutte mère. Afin de rendre possible l'observation de cette phase dispersée à l'intérieur de la partie huileuse continue, la Fluorescence Induite par Laser est utilisée. Couplée au traceur adéquat, cette technique permet de "traquer" les gouttelettes d'eau afin de mesurer l'évolution de leurs positions et tailles au cours du temps.

Les résultats de l'étude ont permis de dégager deux tendances distinctes. In fine, pour les émulsions grossières une coalescence très importante est observée, résultant souvent en une unique goutte d'eau de diamètre $>$ à $500 \mu\text{m}$. Cette configuration permet d'obtenir le taux de micro-explosion le plus élevé. Par opposition, les émulsions fines ne connaissent quasiment aucune coalescence, et les gouttelettes dispersées subissent d'importants mouvements enclenchés par un mécanisme de convection naturelle.

L'intensité de ces mouvements a pu être quantifiée à l'aide d'un indicateur adimensionnel calculé à partir d'un algorithme de Particle-Tracking-Velocimetry. Cette procédure a permis d'observer les trajectoires empruntées par les gouttes d'eau. On y observe des mouvements d'ensemble, avec des gouttes ayant des trajectoires parallèles les unes aux autres, limitant grandement les collisions et donc la coalescence. L'indicateur adimensionnel I caractérisant l'intensité de ces mouvements a permis de trouver une plage limite au-delà de laquelle la micro-explosion ne se produisait plus car la phase dispersée est animée de mouvements trop intenses réduisant grandement le taux de coalescence.

"L'histoire thermo-mécanique" (avec ses aspects non-linéaires, stochastiques nous obligeant à plusieurs essais de reproductibilité) de la phase dispersée durant la montée en température d'une goutte d'émulsion a donc pu être observée et plusieurs grandeurs quantifiées. Le chapitre suivant est consacré à l'étude du champs de température de gouttes de tétradécane, constituant la phase continue de l'émulsion à l'aide d'une méthode basée sur la LIF à deux couleurs. L'objectif sera de rechercher la présence ou non d'éventuels gradients de températures à l'intérieur de la goutte, et ainsi de caractériser les variations de densité à l'échelle locale pouvant créer l'apparition un régime convectif.

Chapitre 3

Mesure du champ de température interne de gouttes de n-tétradécane par LIF2c

3.1 Introduction

L'objectif du présent chapitre consiste en l'étude du champ de température de la phase continue (partie huileuse) d'une goutte d'émulsion soumise à un chauffage radiatif à l'aide d'une méthode basée sur la Fluorescence Induite par Laser à deux couleurs (LIF2c). L'objectif ici est double :

- Premièrement, la mise au point d'un banc expérimental basé sur la mesure de température par LIF2c au sein du combustible n-tétradécane (pour rappel, il a été sélectionné pour sa proximité au diesel).
- Dans un second temps, la méthode développée sera appliquée pour la quantification du champ de température à l'intérieur d'une goutte de n-tétradécane soumise à un chauffage radiatif infrarouge. Le but est de constater la présence (ou non), de gradients de température internes pouvant être induits par ce type de chauffage.

L'intérêt de la LIF à deux couleurs pour la mesure de la température au sein des gouttes réside, comme pour tous les diagnostics optiques, dans son caractère non intrusif couplé à la possibilité d'obtenir un champ complet de température, par opposition à une mesure ponctuelle. Le principe de mesure de température par LIF2c a été introduit dans le Chapitre 1 section 1.7.

L'étude du champ de température de gouttes de n-tétradécane par LIF2c n'ayant, au meilleur de notre connaissance jamais été réalisée, il a été nécessaire de réaliser un développement complet de la méthode expérimentale, depuis la caractérisation d'un traceur fluorescent adéquat jusqu'à son application au chauffage radiatif des gouttes.

Dans un premier temps, une caractérisation complète d'un traceur fluorescent soluble uniquement dans les hydrocarbures est donc proposée, comprenant notamment la mesure du spectre d'absorption de la lumière dans le domaine du visible, la mesure de la lumière émise par fluorescence pour plusieurs longueurs d'ondes d'excitation et la réponse du signal de fluorescence en fonction de la température.

3.2 Caractérisation des propriétés optiques du traceur

La première étape consista en la sélection d'un traceur fluorescent soluble uniquement dans les hydrocarbures. Ici, notre choix s'est porté sur le BOD-Me (de nom complet **Difluoro3-ethyl-5-[1-(4-ethyl-3,5-dimethyl-2H-pyrrol-2-ylidene-N)ethyl]-2,4-dimethyl-1H-pyrrolato-Nboron**), également connu sous le nom de pyrrométhène 567. Il possède la caractéristique d'avoir une très forte solubilité dans les phases huileuses ainsi qu'une forte réponse de fluorescence. En général, le traceur le plus utilisé dans la même famille est le pyrrométhène 597. Cependant, ses spectres d'absorption et d'émission pourraient créer des conflits aux longueurs d'ondes qui nous intéressent. Nous avons ainsi opté pour une caractérisation totale du pyrrométhène 567 afin de voir si ses spectres d'absorption et d'émission de fluorescence sont compatibles avec le dispositif expérimental à notre disposition.

3.2.1 Mesure du spectre d'absorption du traceur

Présentation de l'instrument de mesure

La mesure du spectre d'absorption de l'échantillon est réalisée à l'aide d'un spectrographe *Agilent 8453*, pouvant émettre de la lumière dans les domaines des ultraviolets et du visible. Son principe de fonctionnement simplifié est présenté sur la figure 3.1.

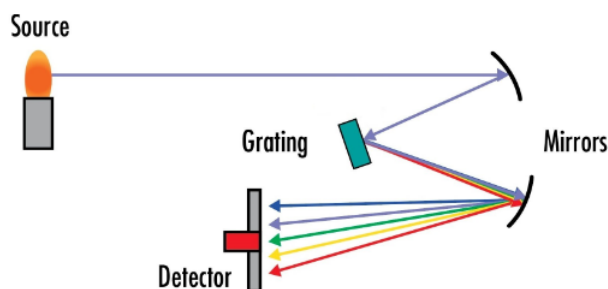


FIGURE 3.1 – Principe de fonctionnement du spectrographe [131]

Le système est composé principalement d'une source lumineuse, de l'échantillon à caractériser, et d'un système de mesure de l'intensité lumineuse transmise en fonction de la longueur d'onde. La source lumineuse pour le spectre visible (objet de notre intérêt) est une lampe en tungsten dont la gamme d'émission est comprise entre 370 et 1100 nm. La lumière est envoyée vers l'échantillon à caractériser, dont l'absorbance est donnée par l'équation suivante :

$$A = \log_{10}\left(\frac{I_0}{I_t}\right) \quad (3.1)$$

Avec I_0 l'intensité de la source lumineuse et I_t l'intensité transmise.

Dans le cas d'un spectrographe, l'objectif est de déterminer l'absorbance du milieu en fonction de la longueur d'onde. Pour ce faire, la lumière transmise d'intensité I_t sera "découpée" en bandes de longueurs d'ondes par diffraction. La pierre angulaire du système est un élément nommé film de réseau de diffraction holographique (concave holographic grating) qui a pour rôle "diffracter la lumière", à savoir projeter la lumière dans des directions diverses selon la longueur d'onde. Son principe de fonctionnement est présenté sur la figure 3.2.

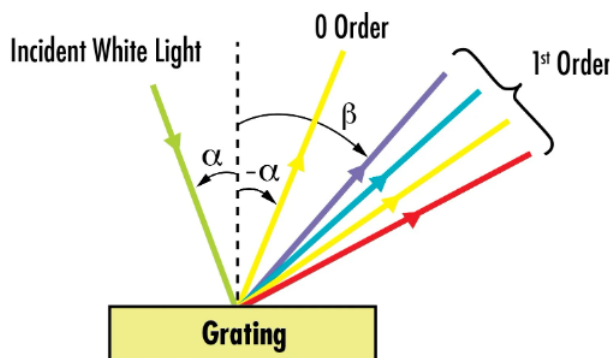


FIGURE 3.2 – Distribution de la lumière par un réseau de diffraction [131]

Le réseau de diffraction comporte de multiples rainures microscopiques, dont l'espacement détermine les angles auxquels la lumière est diffractée (3.2). Ainsi, la longueur d'onde de la lumière diffractée est donnée par l'équation 3.2 :

$$m\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (3.2)$$

Où m est l'ordre de diffraction, λ la longueur d'onde correspondante, d l'espacement entre les rainures, α l'angle entre la lumière incidente et le réseau de diffraction, et β l'angle de diffraction.

Une fois diffractée, la lumière est dirigée vers une rangée de photodiodes dont le rôle est de convertir l'intensité lumineuse en signal électrique. Ces photodiodes, au nombre de 1024, mesurent chacune une gamme de longueur d'onde particulière avec un intervalle d'échantillonnage de 0.9 nm.

Mesure

L'étape suivante consiste en la caractérisation du traceur. Pour ce faire, l'absorption du n-tetradecane seul est réalisé au préalable (échantillon de référence). Son absorption est ensuite soustraite à celle obtenue par l'échantillon n-tetradecane + traceur afin de ne conserver uniquement le comportement de ce dernier. Le traceur est dilué dans une solution de n-tétradecane avec une concentration de 2.5 mg/L, qui représente la concentration optimale permettant d'obtenir la meilleure réponse du système sans saturer la mesure. Le spectre d'absorption du traceur entre 420 et 600 nm est représentée sur la figure 3.3.

La caractérisation résulte en un pic d'absorption à 522 nm, se situant donc très proche de la longueur d'onde d'excitation du laser continu prévu dans le système expérimental ($\lambda_{laser} = 532$ nm). On constate également qu'il n'y a plus d'absorption au-delà de 550 nm, ce qui, nous le verrons plus tard, peut s'avérer utile afin d'éviter les conflits spectraux pour la méthode LIF2c.

3.2.2 Fluorescence

Description de la méthode et mesures de la fluorescence

La mesure de fluorescence est réalisée à l'aide d'un fluoromètre *Perkin Elmer LS 50B*. Cet appareil permet de réaliser des mesures de fluorescence d'échantillons pour des longueurs d'ondes d'excitation s'étendant des ultraviolets jusqu'à la fin du domaine du visible (de 200 à 800 nm). La source lumineuse est une lampe à décharge au xénon, générant une lumière comprenant toutes les longueurs d'onde de l'intervalle de mesure. Deux types de mesures sont alors réalisables :

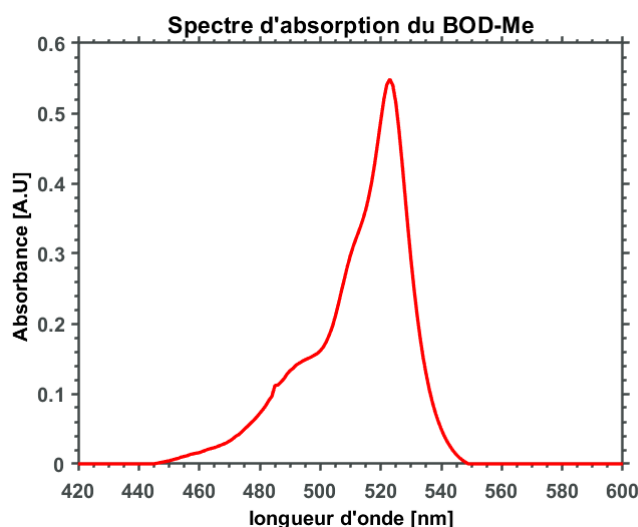


FIGURE 3.3 – Spectre d’absorption du traceur BOD-Me

- Mesure de la fluorescence spectrale. Ce type de mesure est utilisé de manière classique afin de caractériser un échantillon, car il permet de visualiser l’absorption et l’émission de fluorescence sur tout le spectre.
- Mesure de fluorescence pour une excitation monochromatique. Ce type de mesure permet d’exciter l’échantillon à l’aide d’une lumière monochromatique et d’en mesurer la réponse. Il s’avère utile pour obtenir la réponse de fluorescence d’un échantillon à une excitation à une longueur d’onde spécifique, comme c’est le cas pour les méthodes LIF dont la source est un laser monochromatique. Dans ce cas, un monochromateur est placé après la source lumineuse afin sélectionner seulement une longueur d’onde à partir de la source multi-longueurs d’ondes. Le fonctionnement du monochromateur est analogue au réseau de diffraction présenté dans la section précédente pour la mesure de l’absorption, à savoir une séparation de la lumière selon des angles diverses en fonction de la longueur d’onde.

Une mesure de référence de fluorescence du n-tétradécane seule est réalisée avant la mesure dans la solution diluée. La concentration utilisée précédemment à 2.5 mg/L étant encore trop élevée par rapport à la sensibilité de l’appareil, cette dernière a été diluée jusqu’à 0.025 mg/L. Une première mesure a été réalisée avec plusieurs longueurs d’ondes d’excitations correspondantes à des points de fonctionnement des lasers les plus communément utilisés (Ar^+ laser : 488 nm et 514 nm ; Nd-YAG laser : 355 nm et 532 nm). Les résultats sont présentés sur la figure 3.4.

Enfin, la fluorescence avec une excitation à 532 nm (correspondant à la longueur d’onde du laser utilisée) est présentée sur la figure 3.5. Le spectre de fluorescence s’étend donc de 520 nm jusqu’à 650 nm pour un $\lambda_{excitation}$ à 532 nm, ce qui nous laisse plusieurs possibilités de couple de longueurs d’ondes de collection de fluorescence dans cette gamme.

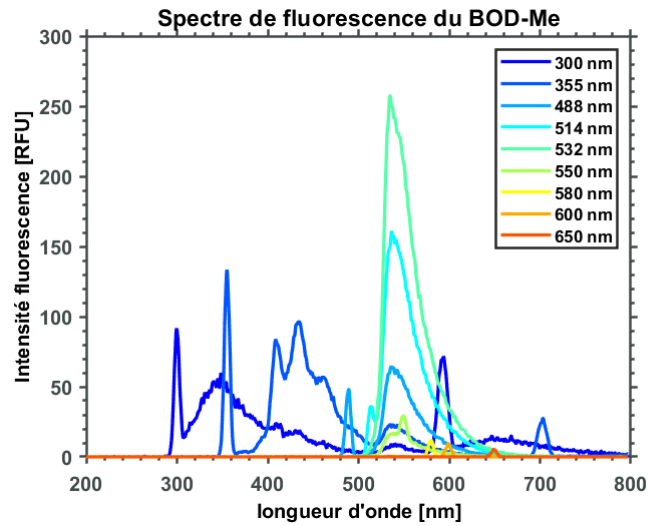


FIGURE 3.4 – Spectre de fluorescence du BOD-Me pour diverses longueurs d’ondes d’excitation

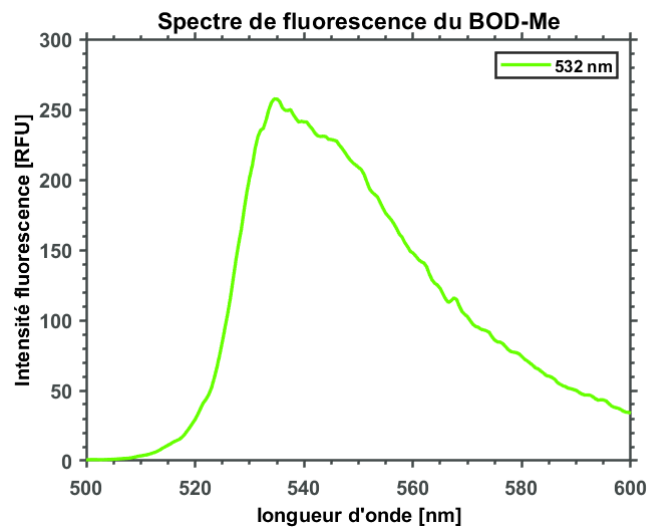


FIGURE 3.5 – Spectre de fluorescence du BOD-Me pour $\lambda_{excitation} = 532$ nm

3.3 Dispositif expérimental de LIF2C et calibration initiale de la fonction $R_f(T)$

Le montage expérimental LIF à 2 couleurs est présenté sur la figure 3.6.

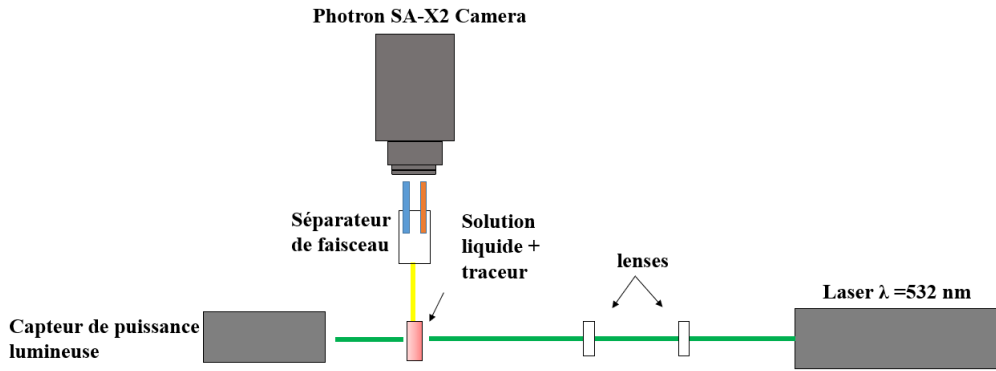


FIGURE 3.6 – Schéma du montage expérimental

Il est composé d'un laser continu de longueur d'onde $\lambda=532$ nm (*Spectra-Physics*), d'un couple de lentilles sphérique et cylindrique permettant de transformer le faisceau en un plan laser, d'un capteur de puissance (*Thorlabs S350C*) permettant de mesurer l'intensité lumineuse transmise, d'un séparateur d'images (*Hamamatsu W-View*) permettant de séparer la fluorescence émise par l'objet en deux canaux distincts dont la longueur d'onde peut être variée selon les filtres sélectionnés, et d'une caméra rapide (*Photron SA-X2*) qui récupère l'image à la sortie du séparateur d'images, obtenant ainsi deux images à deux longueurs d'ondes différentes.

Il est nécessaire de présenter de manière plus détaillée le fonctionnement du séparateur d'images afin de comprendre comment est réalisée la mesure sur deux longueurs d'ondes distinctes. Le dispositif, présenté sur la figure 3.7, est composé d'un miroir dichroïque qui réfléchit ou transmet les longueurs d'ondes se situant respectivement en-dessous et au-dessus de sa longueur d'onde de coupure. La lumière transmise passe ensuite par un filtre passe-bande, tandis que la lumière réfléchie emprunte un chemin optique différent afin d'être envoyée sur le deuxième canal où se situe l'autre filtre passe-bande. Les longueurs d'ondes des deux filtres doivent être choisies de manière à obtenir une cohérence du comportement du couple de longueurs d'ondes, comme nous le verrons ci-après. Ainsi, selon la combinaison de filtres choisie, il est possible d'effectuer

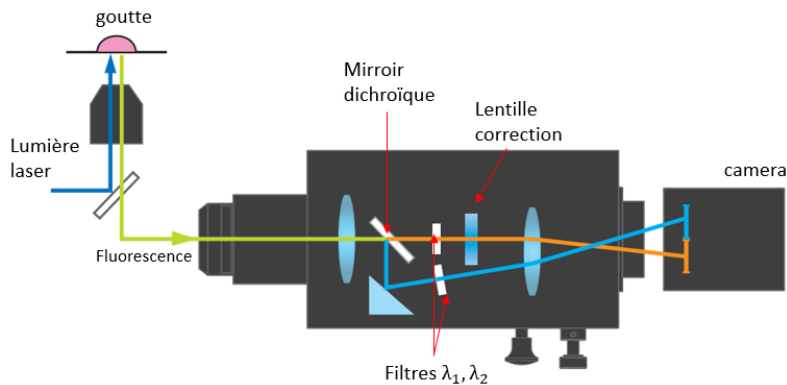


FIGURE 3.7 – Schéma du séparateur de faisceau Hamamatsu

des mesures sur différentes bandes de collections, afin de sélectionner le couple présentant la meilleure réponse (sensibilité à la température et intensité du signal).

3.3.1 Calibration initiale du traceur

La première étape de la mise en place de ce protocole expérimental consiste en une calibration initiale du traceur, à savoir la caractérisation de la réponse du signal de fluorescence en fonction

de la température. Ici, c'est la fonction $R_f(T)$ qui est l'objet d'intérêt, qui est pour rappel définie comme suit :

$$R_f(T) = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_{\lambda 1} C V_C I_0 e^{s_{\lambda 1} T}}{K_{\lambda 2} C V_C I_0 e^{s_{\lambda 2} T}} \quad (3.3)$$

Dans le cadre d'une mesure à un traceur unique, les paramètres C , V_c et K sont donc éliminés.

Ici, une calibration initiale du traceur est réalisée au sein d'une cuvette en quartz de dimension 10x10x50mm, qui permet d'avoir un volume liquide suffisant afin d'éviter une éventuelle photo-dégradation du traceur, qui peut subvenir lorsque ce dernier est excité trop longtemps et intensément. Afin de s'assurer que cette photo-dégradation n'influera pas nos mesures, une précaution est prise en quantifiant l'importance de cette dégradation temporelle.

Dégradation temporelle du traceur

Afin de quantifier le niveau de dégradation du traceur avec le temps, une mesure de l'intensité absorbée par le colorant a été effectuée. Pour ce faire, le bain liquide coloré est excité par le faisceau laser à une puissance constante de 500 mW pendant une heure, et la puissance transmise est mesurée à l'aide du capteur de puissance *Thorlabs S350C*. Une diminution temporelle de plus de 30% de l'intensité absorbée par le traceur en une heure a été observée lors de ce premier test. Cette dégradation importante nous indique donc que plusieurs précautions doivent être prises :

- Le colorant sera excité par le faisceau laser seulement durant les périodes de mesures (qui sont de l'ordre de la dizaine de secondes).
- Un volume de liquide suffisamment grand par rapport à la surface du plan laser sera utilisé. Le bain liquide pourra également être changé au besoin.

Ainsi, ce traceur subit une dégradation en grande partie irréversible aux temps longs. Ceci-dit, cette propriété caractérisée n'est pas problématique pour nos essais puisque les durées d'excitations sont relativement courtes et qu'il est également possible de changer l'échantillon.

Afin de s'en assurer, un essai est réalisé avec un échantillon neuf sur une durée de vingt secondes (ordre de grandeur des mesures qui nous intéresse). Le résultat est observé sur la figure 3.8. On obtient sur cette durée de temps une diminution de 0.3%, ce qui nous permet de conclure que la photo-dégradation du colorant est négligeable sur les échelles de temps qui nous intéressent. De plus, la puissance fixée dans le protocole expérimental sera 5 à 10 fois plus faible que la puissance de 500 mW sélectionnée pour cet essai, minimisant encore plus la dégradation du traceur.

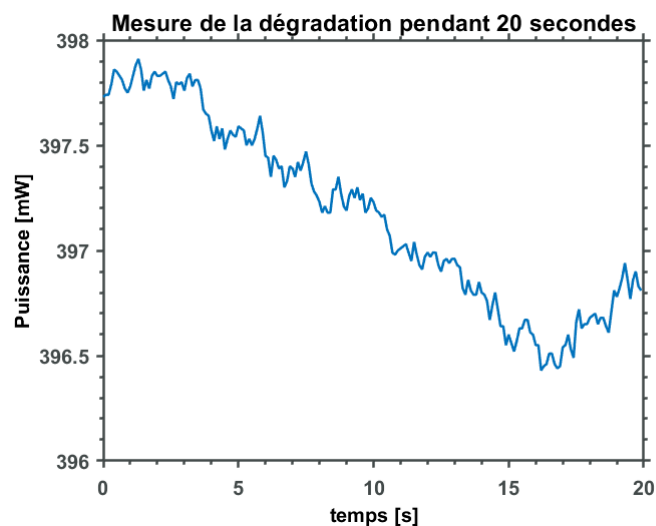


FIGURE 3.8 – Mesure de la dégradation sur une période de temps de 20 secondes

Mesure de la ré-absorption de la fluorescence le long du chemin optique

La caractérisation d'un nouveau traceur fluorescent passe par une quantification de tous les paramètres intervenant lors de la mesure. Il est nécessaire de bien décrire les phénomènes d'absorption, d'émission et de ré-absorption par la traceur fluorescent à caractériser. La figure 3.9 est une représentation schématique de la cuvette afin de comprendre les phénomènes intervenant. L'axe des abscisses x représentant l'axe du faisceau laser incident, et l'axe en ordonnée y sera le chemin optique jusqu'au capteur (composé du séparateur de faisceau ainsi que de la caméra).

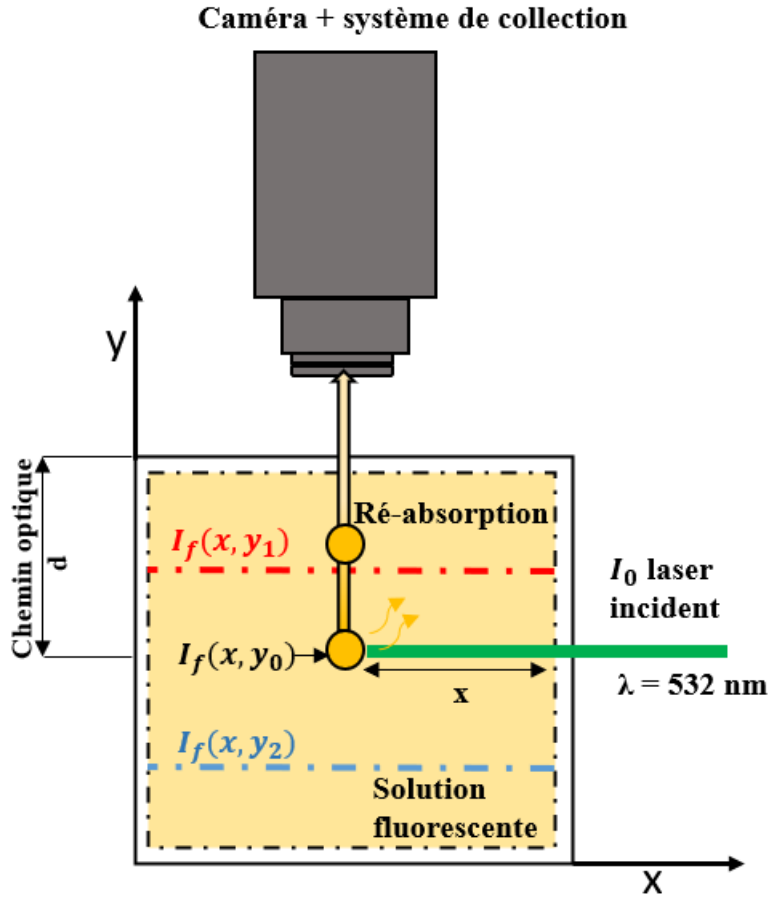


FIGURE 3.9 – Représentation de la ré-absorption de la fluorescence le long de l’axe y

Il semble important de comprendre et de quantifier la part de la fluorescence ré-absorbée le long du chemin optique. La figure 3.10 est un schéma présentant le phénomène de ré-absorption. Le faisceau laser est envoyé le long de l’axe x à une ordonnée y_0 fixée. L’intensité lumineuse dans le bain liquide, nette de la partie réfléchi aux deux interfaces (parois externe et interne de la cuvette) est égale à I_0 . Cette intensité entrante est absorbée tout au long de l’axe x selon la Loi de Beer-Lambert :

$$I(x, y_0) = I_0 e^{-kx} \quad (3.4)$$

Entre cette ordonnée et la fin de la cuvette, la lumière émise par fluorescence doit parcourir un chemin de plusieurs millimètres à travers le bain liquide. Durant ce chemin, cette lumière peut être en partie ré-absorbée par d’autres molécules du traceur. Il est donc important de vérifier l’effet de ré-absorption, afin d’avoir un signal mesuré le plus proche possible de l’intensité de fluorescence émise. La lumière absorbée en y_0 est donnée par l’équation suivante :

$$I_{abs}(x_0, y_0) = I(x_0, y_0) \epsilon_{\lambda_{laser}} V_c C_0 \quad (3.5)$$

Nous nous proposons donc de quantifier cette ré-absorption. Pour ce faire, la cuvette en Quartz de dimension intérieure 10x10 mm est utilisée. Plusieurs ordonnées correspondant à des chemins optiques plus ou moins longs sont fixées, respectivement $y_0 = 5 \text{ mm}$, $y_1 = 1 \text{ mm}$ et $y_2 = 9 \text{ mm}$ (y_0 étant pris comme la référence sur l’axe y). Les résultats sont présentés sur la figure 3.10.

On observe que plus le chemin optique est grand, plus l’intensité lumineuse mesurée diminue ($I_{mes}(y_2) < I_{mes}(y_0) < I_{mes}(y_1)$). Cette diminution n’est pas négligeable, puisque l’on observe

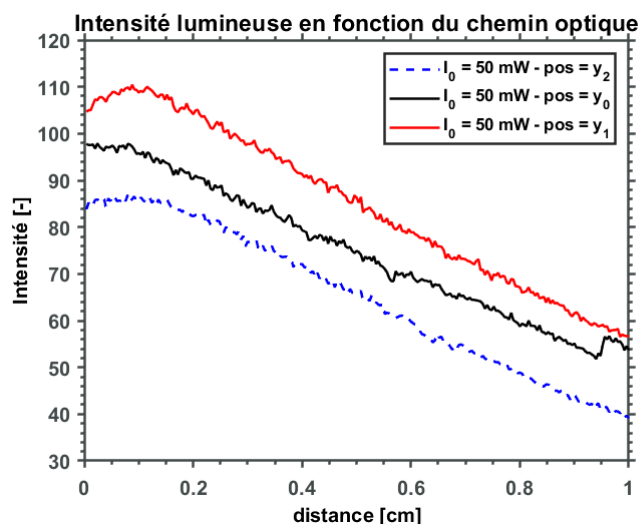


FIGURE 3.10 – Quantification de la ré-absorption selon la longueur du chemin optique

un écart de +/- 10% entre les deux positions situées aux extrémités et la valeur de référence y_0 .

Néanmoins, ce problème est contré par l'utilisation de la méthode ratiométrique. En effet, en mesurant l'intensité sur deux longueurs d'ondes différentes, cet effet apparaît de manière égale et ainsi s'annulera lors du calcul du ratio des deux intensités. De plus, l'objet de notre étude étant des gouttes de diamètre millimétrique, la longueur du parcours optique est largement diminuée.

Mesures initiales du ratio de fluorescence en fonction de la température

La présente section introduit les résultats concernant la mesure de la fluorescence en fonction de la température. Les résultats ont été réalisés dans une cuvette de section 10x10 mm. L'échantillon liquide contenant le traceur fluorescent est chauffé par le biais d'une plaque chauffante. La température du bain est contrôlée à l'aide d'une sonde PT100 directement intégrée au système expérimental, auquel vient ajouté un thermocouple type K afin d'effectuer un double contrôle sur la température. Pour chaque palier de température imposé, suffisamment de temps est laissé au bain afin de s'homogénéifier le plus possible. Une estimation de cette durée a été réalisée à l'aide du thermocouple placé en plusieurs points de la cuvette, et un temps de 10 minutes fut considéré comme suffisant pour obtenir le bain suffisamment homogène. Pour chaque palier de température, l'image de la fluorescence sur les deux longueurs d'ondes est réalisée à l'aide du séparateur d'images (*Hamamatsu V-View*) présenté en figure 3.7. Après plusieurs essais initiaux, le choix des longueurs d'ondes s'est porté sur le couple $\lambda_1=550$ nm et $\lambda_2=580$ nm. En effet, pour ces deux longueurs d'ondes, le signal de fluorescence est élevé (montré en figure 3.5) tout en se situant au delà du domaine d'absorption du fluorophore, empêchant ainsi le phénomène de ré-absorption. Le miroir dichroïque associé (cf. figure 3.7) possède une longueur d'onde de coupure à 560 nm.

La figure 3.11 représente l'évolution de l'intensité de fluorescences sur les deux longueurs d'ondes le long du chemin optique et pour plusieurs températures comprises entre 30°C et 180°C le long de l'axe horizontal de la cuvette.

On observe premièrement une tendance décroissante de l'intensité de fluorescence avec la température, ainsi qu'une diminution de l'intensité de fluorescence le long du chemin optique, et ce sur les deux longueurs d'ondes. L'objectif étant d'obtenir une fonction $R_f(T)$ strictement monotone avec la température afin que à chaque valeur de R_f corresponde une seule et unique

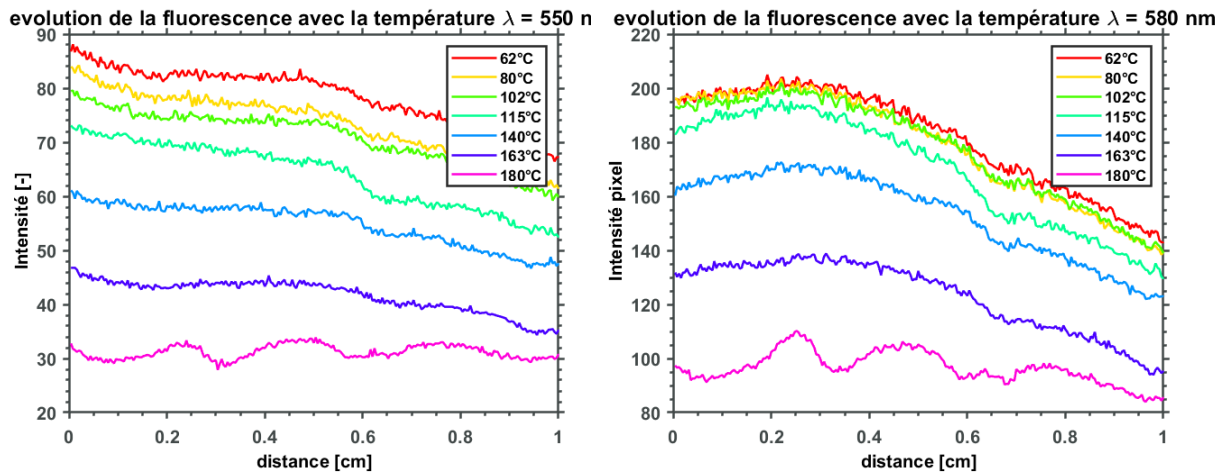


FIGURE 3.11 – Intensité de fluorescence pour les deux longueurs d’ondes sélectionnées le long du chemin optique pour plusieurs températures

température (autrement dit la fonction $R_f(T)$ doit être bijective). Ainsi, nous présentons ci-après le mode opératoire permettant d’obtenir le ratio des deux longueurs d’ondes à partir de l’image brute acquise par la caméra.

Une fois l’image prise sur les deux longueurs d’ondes séparées, il est nécessaire de réaliser le ratio entre les deux images. Pour ce faire, l’image brute a été découpée numériquement en deux images distinctes de mêmes dimensions (matrice carrée de taille $n \times n$ dans notre cas) représentant les deux longueurs d’ondes, puis, une superposition est effectuée le plus précisément possible entre les deux images. L’algorithme réalisant ces opérations est inspiré de celui utilisé par Moussa. [7] pour la mesure de la température dans la phase **aqueuse** de gouttes d’émulsions. L’incertitude sur la superposition des deux images est estimée à ± 1 pixel soit 10 microns.

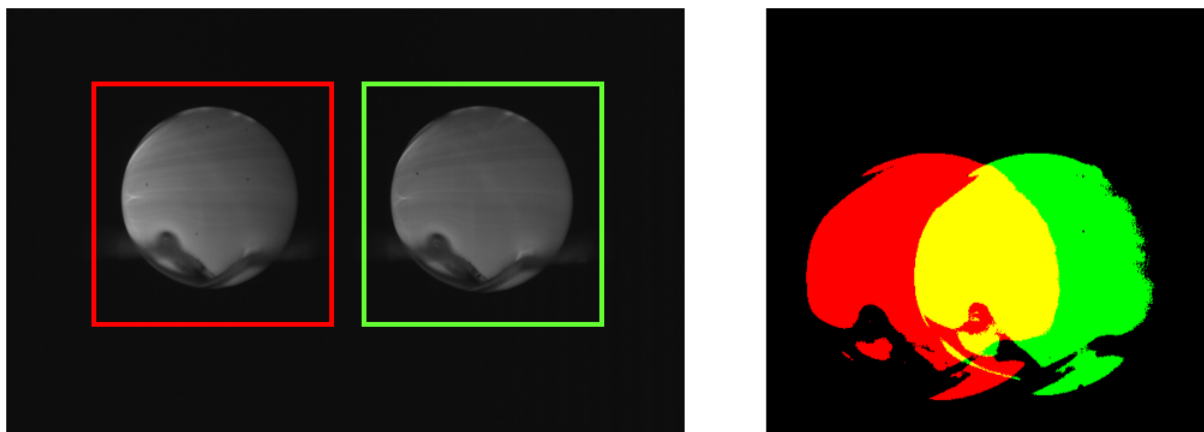


FIGURE 3.12 – illustration du traitement des images brutes pour la superposition des deux longueurs d’ondes

Sur la figure 3.13 est tracé le rapport $R_f = \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$ pour plusieurs paliers de température imposés. On observe donc une diminution du rapport de fluorescence dès lors que la température augmente. Par ailleurs, on observe également une augmentation de l’amplitude des oscillations des valeurs de R_f le long du volume de mesure avec la température. Cela s’explique par la non-homogénéité du bain liquide. En effet, une importante convection interne a lieu, et la température dans la cuvette n’est jamais strictement homogène.

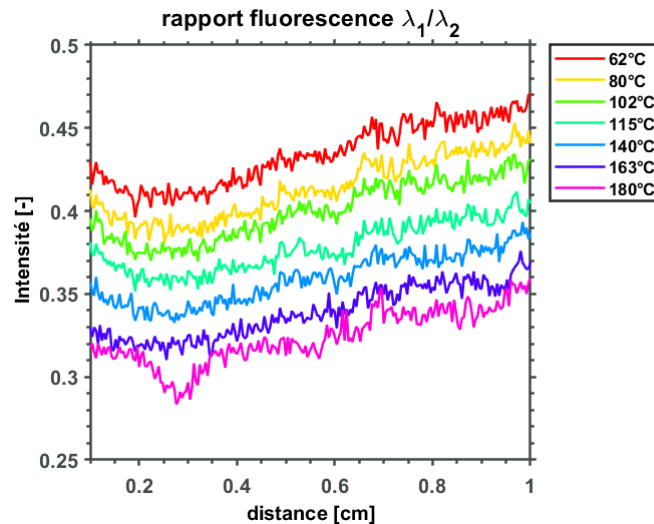


FIGURE 3.13 – Mesure du ratio de fluorescence le long de la cuvette pour plusieurs températures

Pour limiter ce phénomène, une cuvette de dimension réduite a été utilisée (10x10mm). De plus, un temps suffisant est laissé afin d’homogénéiser le bain. Cependant, bien que l’hypothèse de l’homogénéité du système soit adoptée, ce n’est jamais vraiment le cas. En effet, il est observable, à l’œil nu, des motifs de volutes ascendantes et descendantes. Ces volutes sont créées par des gradients de température dans le volume liquide qui entraînent des variations de densité locales. L’indice de réfraction variant également avec la température, il rend possible l’observation du phénomène, car la lumière sera réfractée de manières différentes en ces points. Néanmoins, la calibration de la fonction $R_f(T)$ nous permet d’obtenir une fonction monotone, avec une variation du signal suffisante sur l’intervalle de température qui nous intéresse (qui s’étend de 20 à 250°C).

Correction de température

Comme nous avons pu le constater dans la section précédente, la température au sein de la cuvette d’étalonnage n’est jamais homogène et ce malgré les précautions prises. Nous proposons donc d’ajouter un thermocouple type K que nous plaçons dans la cuvette au plus proche de la zone de collection du signal de fluorescence afin d’apporter une correction sur la température mesurée. La mesure par le thermocouple est représentée sur la figure 3.14. On observe donc un écart moyen de l’ordre de 15°C entre la consigne et la température mesurée par le thermocouple. De cette manière l’incertitude sur la température de calibration est grandement diminuée grâce à la correction apportée suite à la mesure par thermocouple.

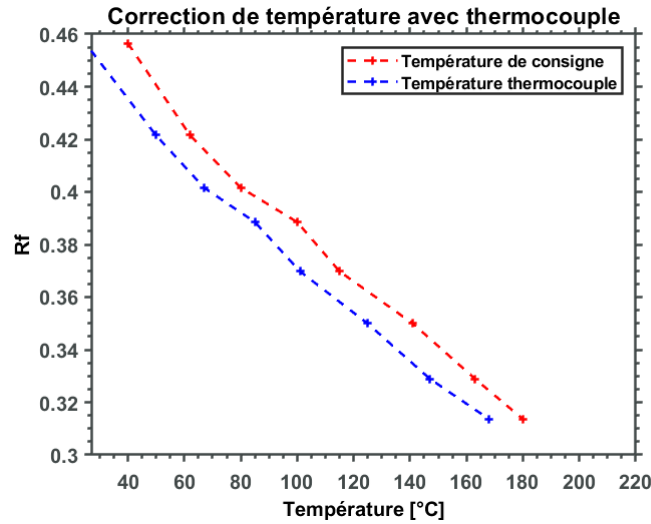


FIGURE 3.14 – Différence entre la température de consigne et la température réelle mesurée par le thermocouple

Calibration du ratio de fluorescence

La figure 3.15 représente la calibration du ratio de fluorescence sur 4 essais représentatifs et la courbe moyenne correspondante. L'incertitude correspondante sur la température est de $\pm 7^\circ\text{C}$.

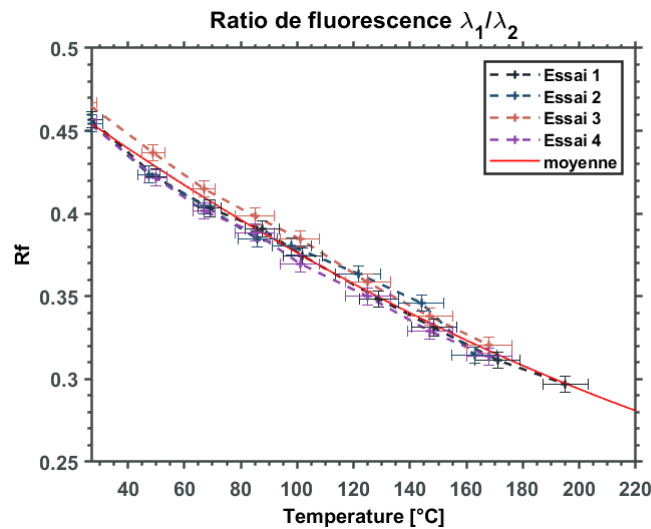


FIGURE 3.15 – Calibration du ratio de fluorescence

Ainsi, la sensibilité du ratio de fluorescence sur les deux longueurs d'ondes sélectionnées est de $-0.15\%/^\circ\text{C}$.

3.4 Application à la mesure de température au sein de gouttes

Une fois la calibration initiale de la fonction $R_f(T)$ réalisée en cuvette, l'application à la mesure de température au sein de gouttes de tétradécane est réalisée. L'objectif principal étant de visualiser le champ de température au sein de ces gouttes lorsqu'elles sont soumises à un chauffage radiatif et de potentiellement établir un lien entre les champs de température observés et les écoulements internes induits par convection naturelle étudiés précédemment.

Le traceur fluorescent ayant été caractérisé et la dépendance du ratio de fluorescence à la température $R_f(T)$ mesurée expérimentalement avec robustesse (cf. répétabilité des mesures, figure 3.15), l'application à la mesure du champ de température au sein des gouttes semble assez directe.

3.4.1 Vérification initiale de la fluorescence au sein de la goutte

Lors de la vérification du comportement de fluorescence (répartition spatiale de l'intensité lumineuse), une divergence a été observée par rapport à la calibration réalisée au sein de la cuvette. Nous nous proposons de vérifier la répartition de l'intensité de fluorescence à l'intérieur de la goutte à température ambiante, afin de comprendre si la goutte et sa géométrie ont un effet sur cette répartition. La figure 3.16 représente cette répartition d'intensité lumineuse au sein de la goutte. Le plan laser incident arrive sur la partie droite de la goutte. Comme nous pouvons le voir, il survient un effet de concentration de la lumière sur le côté opposé à celui du laser incident.

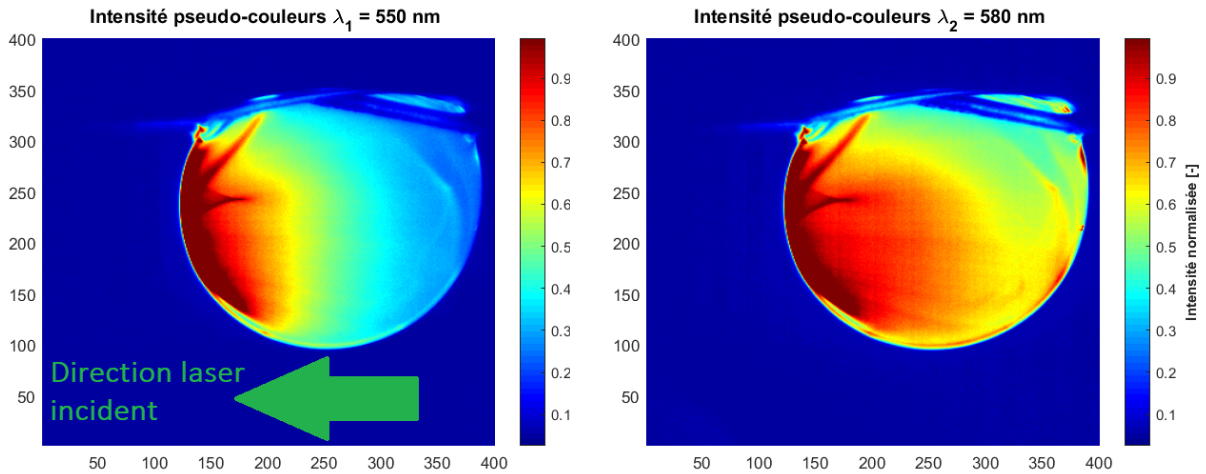


FIGURE 3.16 – intensité de fluorescence normalisée dans la goutte sur les deux longueurs d'ondes de collection

Cet effet est mesuré quantitativement et l'influence de la température est également considéré. Pour ce faire, une goutte est placée au-dessus du panneau radiatif à haute température. Plusieurs images sont analysées durant la phase de montée en température et d'évaporation de la goutte. L'évolution temporelle du signal de fluorescence sur les deux longueurs d'ondes le long de l'axe horizontal est représentée sur la figure 3.17. Les différents temps correspondent à différents instants d'une goutte durant sa montée en température, depuis son injection à t_{inj} .

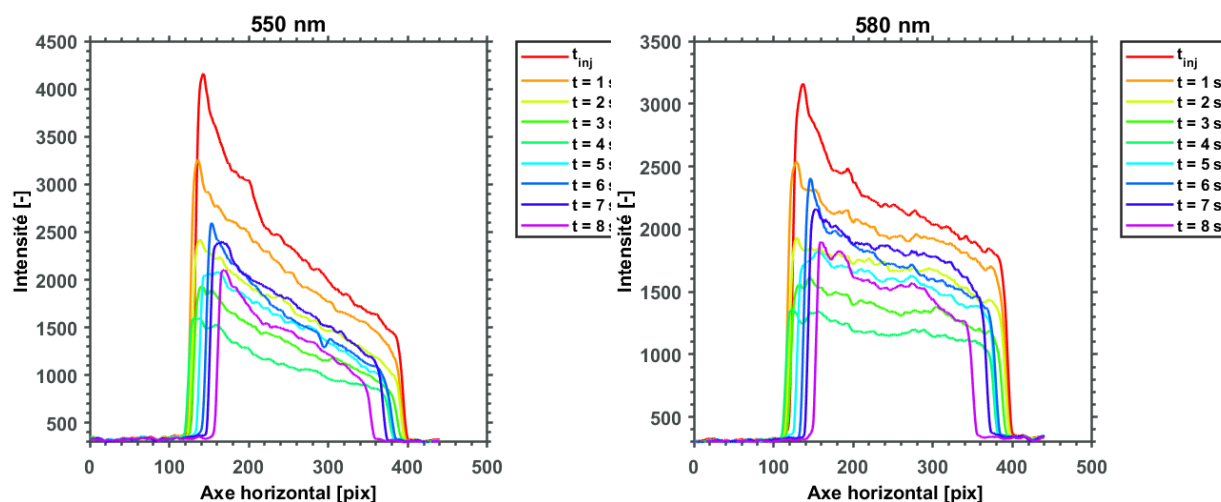


FIGURE 3.17 – Variation des signaux de fluorescence horizontaux sur les deux longueurs d’ondes et pour plusieurs températures

Il en ressort deux informations principales :

- La température n’influence pas l’allure des courbes, qui possèdent une pente similaire tout au long de la montée en température et de l’évaporation. Ainsi, une correction sera proposée comme nous le verrons ci-après.
- Après un certain temps, ici $t = 5\text{s}$, on observe une ré-augmentation de l’intensité du signal de fluorescence et ce pour les deux longueurs d’ondes. Cet effet est lié à l’évaporation de la goutte de tétradecane, qui induit une augmentation de la concentration en traceur par rapport à la concentration initiale, élevant ainsi l’intensité du signal émis. Ceci dit, cet effet étant identique sur les deux longueurs d’ondes, il sera éliminé lors du calcul du ratio $I_{\lambda 1}/I_{\lambda 2}$.

Recherche de l’origine physique du phénomène de concentration lumineuse

Nous venons de constater l’existence d’une répartition spatiale inégale de l’intensité du signal de fluorescence au sein de la goutte (à température ambiante, si bien qu’il n’existe pas de gradient de température pouvant induire ce phénomène). Ainsi, il semblerait qu’un effet optique soit à l’origine de cette répartition spatiale inégale du signal de fluorescence.

Nous nous proposons donc de quantifier cette répartition de l’intensité lumineuse en réalisant une expérience subsidiaire. Une goutte d’eau dans laquelle est disséminée une très faible quantité de lait (créant ainsi une émulsion O/W) est éclairée par la lame laser ; ainsi cette très faible dispersion de gouttelettes de lait permettra de diffuser la lumière à l’intérieur de la goutte, et d’observer sa répartition. L’intensité lumineuse le long des axes verticaux et horizontaux sont reportés sur la figure 3.18.

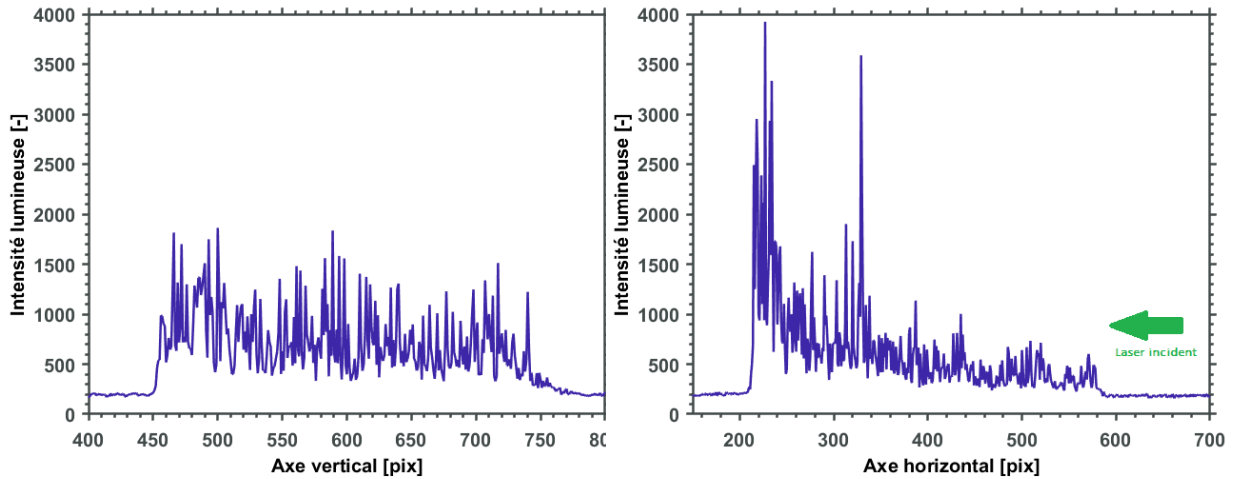


FIGURE 3.18 – Mesure de la diffusion de la lumière incidente le long des axes verticaux et horizontaux

On observe donc que l'intensité lumineuse diffusée reste constante le long de l'axe vertical, tandis qu'on observe une augmentation de l'intensité lumineuse diffusée en partie "arrière" de la goutte. En effet, l'intensité lumineuse incidente I_0 est multipliée par un facteur pouvant aller jusqu'à 10 dans la zone arrière. Ainsi, il est fort probable que l'intensité de fluorescence suivant la même loi que l'intensité lumineuse diffusée- le régime de fluorescence soit au moins en partie en régime dit "non-linéaire" et ainsi, que l'affranchissement à la dépendance de l'intensité du faisceau laser I_0 permis par les méthodes radiométriques ne soit plus valable, du moins dans cette zone où la lumière issue du laser est concentrée.

Cette concentration du faisceau laser est expliquée par la géométrie de la goutte, qui agit comme une lentille dite "épaisse", dont l'illustration est présentée sur la figure 3.19. On observe sur l'illustration que les rayons incidents se concentrent de plus en plus à mesure que l'on se déplace le long de l'axe horizontal, avant d'arriver au point dit de focalisation situé légèrement en dehors de la sphère. La distance de focalisation du faisceau incident peut être ainsi calculée suivant

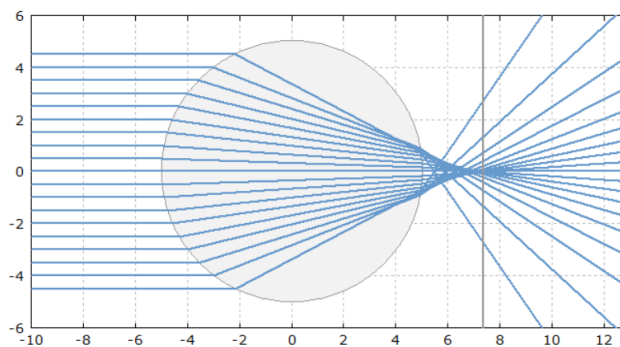


FIGURE 3.19 – Concentration d'un faisceau par une lentille sphérique [132]

l'équation donnée par les fabricants de lentilles optiques :

$$\frac{1}{f} = (n - 1) \left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} + \frac{(n - 1)d}{nR_1R_2} \right) \quad (3.6)$$

Où f est la distance focale, n l'indice de réfraction du matériau, R_1 et R_2 les rayons de courbures des deux faces de la lentille (dans notre cas $R_1 = R_2$ puisque la goutte est sphérique) et le

diamètre dans notre cas.

Ainsi, dans le cas d'une goutte de n-tétradécane de diamètre 2mm à température ambiante, le point de focal sera situé à 4.4 mm du point d'entrée du faisceau laser, soit environ 2 mm après la goutte.

Prenant en compte l'évaporation de la goutte, une diminution du diamètre entrainera une augmentation du rayon de courbure et rapprochera ainsi le point de focalisation des rayons à 1 mm de la goutte s'évaporant, accentuant encore plus cet effet.

3.4.2 Re-calibration de $R_f(T)$ au sein de la goutte

Ce comportement très différent de la goutte par rapport au volume liquide contenu dans la cuvette de Quartz, nous oblige à réaliser une autre calibration *in situ* de la fonction $R_f(T)$ (ici notée R_{12}). Pour ce faire, la goutte est chauffée par le panneau radiatif est un thermocouple nu de 75 microns est placé en son sein.

La mesure de R_{12} est réalisée à la fois le long des axes horizontaux et verticaux de la goutte mais également au plus proche de la tête du thermocouple afin d'avoir une valeur au plus près du point de prise de température.

La concentration en traceur sélectionnée pour les mesures est de 12.5 mg/L.

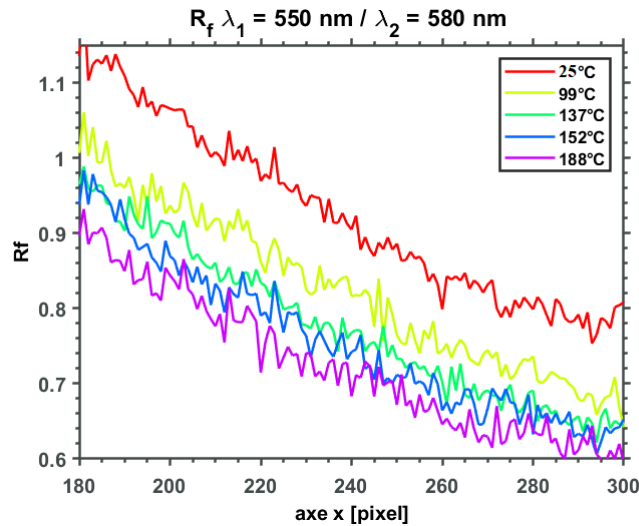


FIGURE 3.20 – Variation spatiale du rapport de fluorescence suivant l'axe horizontal au sein de la goutte

Si l'on observe l'évolution du rapport de la goutte le long de l'axe des abscisses d'une extrémité à l'autre, il en résulte une variation de R_{f12} comme le montre la figure 3.20, de manière analogue aux longueurs d'ondes prises séparément (figure 3.17). Comme nous l'avons vu précédemment, ce comportement étant identique sur les deux longueurs d'ondes et constant même lorsque la température augmente, il est donc possible d'effectuer une normalisation afin de s'affranchir de cet effet. Pour rappel, l'équation donnant le rapport entre les deux bandes de détection de fluorescence s'écrit comme suit :

$$R_{12} = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_{\lambda_1} C V_c I_0}{K_{\lambda_2} C V_c I_0} e^{\frac{\beta_{12}}{T}} \quad (3.7)$$

Et une fois normalisée par le rapport à température ambiante R_{12_0} :

$$\ln\left(\frac{R_{12}}{R_{12_0}}\right) = \beta_{12}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) \quad (3.8)$$

Où β_{12} est calculé à partir des mesures expérimentales.

La normalisation de R_{12} est représentée sur la figure 3.21. Ainsi, une fois normalisé, le ratio

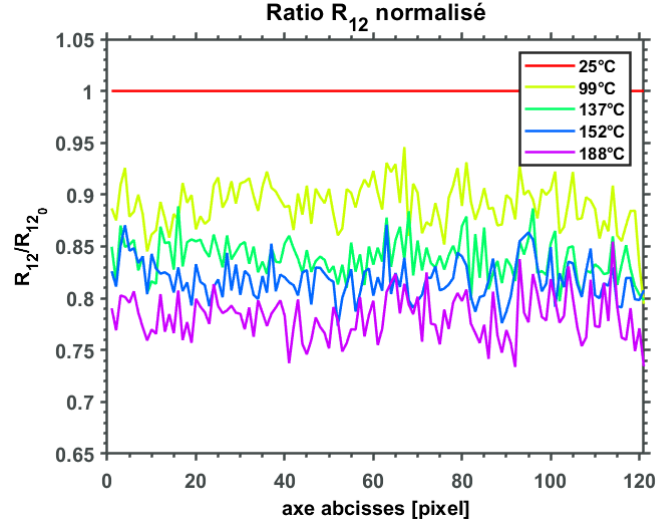


FIGURE 3.21 – Rapport normalisé tracé suivant l’axe horizontal au sein de la goutte

de fluorescence ne présente plus de dépendance à la position au sein de la goutte. Dans notre cas, la fonction $R_f(T)$ égale à R_{12}/R_{12_0} est la suivante :

$$R_f = -0.0015T + 1.04 \quad (3.9)$$

3.5 Mesure du champ de température au sein des gouttes

Une fois les interactions entre la goutte et la lumière prises en compte afin de corriger la variation spatiale du rapport de fluorescence, le champ de température interne de la goutte durant sa montée en température peut être étudiée.

Visualisation du champ de température 2D

Dans cette section, nous nous intéresserons à la visualisation du champ de température bi-dimensionnel à divers instants de la montée en température de la goutte. Trois configurations sont présentées ici, à savoir le panneau radiatif situé respectivement en dessous, au dessus et sur un côté de la goutte. Ces trois configurations sont étudiées afin de comparer l’influence d’un chauffage purement radiatif (lorsque le panneau est situé au dessus de la goutte -configuration TOP-), et un chauffage convecto-radiatif (lorsque le panneau est situé en dessous de la goutte, le flux d’air ascendant chauffé par le panneau participant ainsi au chauffage du système -configuration BOT-). Comme montré dans le Chapitre 2, les températures des différentes configurations ont été sélectionnées afin d’obtenir un flux thermique total équivalent pour les différents cas (mesuré à travers la vitesse d’évaporation par la loi D^2). Ici, un cas supplémentaire est ajouté, à savoir le panneau radiatif disposé sur le côté de la goutte (et toujours à la même distance de son centre). L’objectif de cette comparaison entre les configurations est d’étudier si le type de flux de chaleur envoyé à la goutte a une incidence (ou non) sur le champ de température interne. Par exemple, il s’agit de vérifier si le flux radiatif infrarouge reçu par la goutte est concentré dans une zone préférentielle de la goutte, de manière analogue au faisceau laser comme montré au paragraphe 3.4.1.

Le tableau 3.1 regroupe les champs de température internes de la goutte à plusieurs instants dans les trois configurations d'intérêt. Les images présentées correspondent uniquement à la phase de montée en température de la goutte antérieure à son évaporation, car lors de son évaporation (qui ne correspondent qu'aux derniers instants du cycle total), les oscillations de la goutte suspendue aux fils et la diminution rapide de son diamètre rend difficile le traitement des images pour l'obtention du champ de température complet. De plus l'effet de concentration du faisceau laser incident par la goutte augmente plus le diamètre se rétrécit, et pourrait ainsi fausser la recalibration de R_f réalisée. Par ailleurs, ces images sont une première approche du champ de température dite "globale", car les profils de températures à l'intérieur de la goutte seront étudiés plus en détails ci-après. Ici, les temps présentés sont respectivement 1, 3 et 5 secondes après l'injection. Ces temps ont été pris de manière arbitraire afin d'illustrer le champ de température à plusieurs instants de la phase de montée en température, avant d'être étudié plus en détails ci-après par le biais des profils de température unidimensionnels.

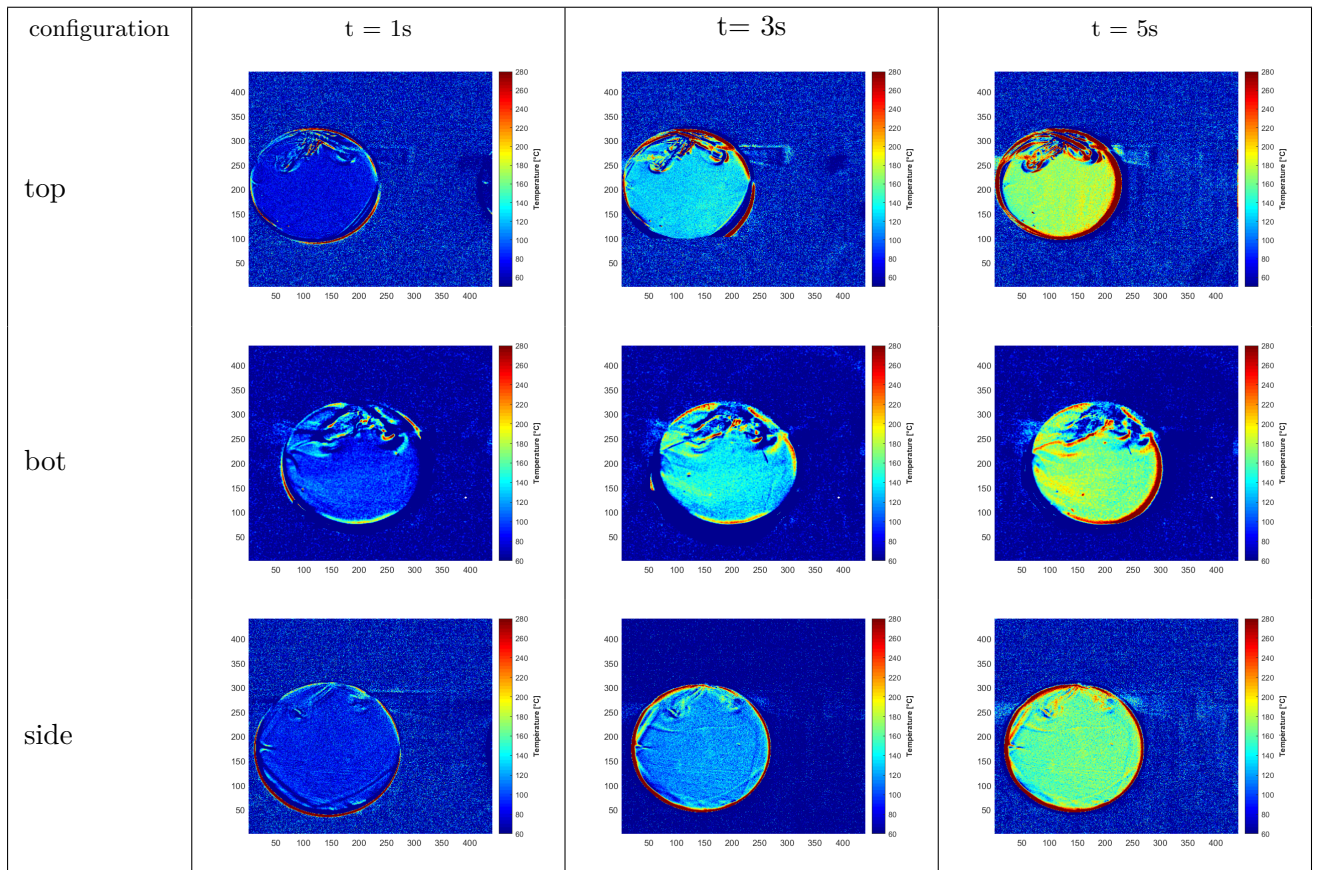


TABLE 3.1 – Champ de températures obtenus à divers instants de la phase de chauffage pour les 3 configurations étudiées

Il ressort de ces cartographies 2D que la température semble relativement homogène au sein de la goutte, et ce à chaque instant et quelque soit la configuration étudiée. Cette relative homogénéité s'explique par la très grande intensité du brassage interne du fluide par convection naturelle, induit par une potentielle combinaison des forces de Marangoni et de la gravité. L'objectif de la suite de l'ouvrage sera donc de quantifier l'importance de ces deux forces et la prédominance (où non) de l'une par rapport à l'autre.

Analyse du profil de température le long de l'axe vertical

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, il semble que le profil de température au sein de la goutte durant sa montée en température reste relativement homogène, et ce quelque soit la position de la source radiative. Toutefois, nous nous proposons d'étudier plus en détails les profils de températures internes pour les différentes configurations afin de rendre compte de l'existence (ou non) d'une tendance sur les gradients de températures. Pour ce faire, le gradient de température vertical est étudié durant toute la phase de montée en température de la goutte. Une bande de 3 pixels de largeur traversant la goutte verticalement en son centre est prise et la moyenne est réalisée sur ces 3 pixels afin d'obtenir un profil. Les différentes configurations sont étudiées et les résultats sont présentés sur la figure 3.22.

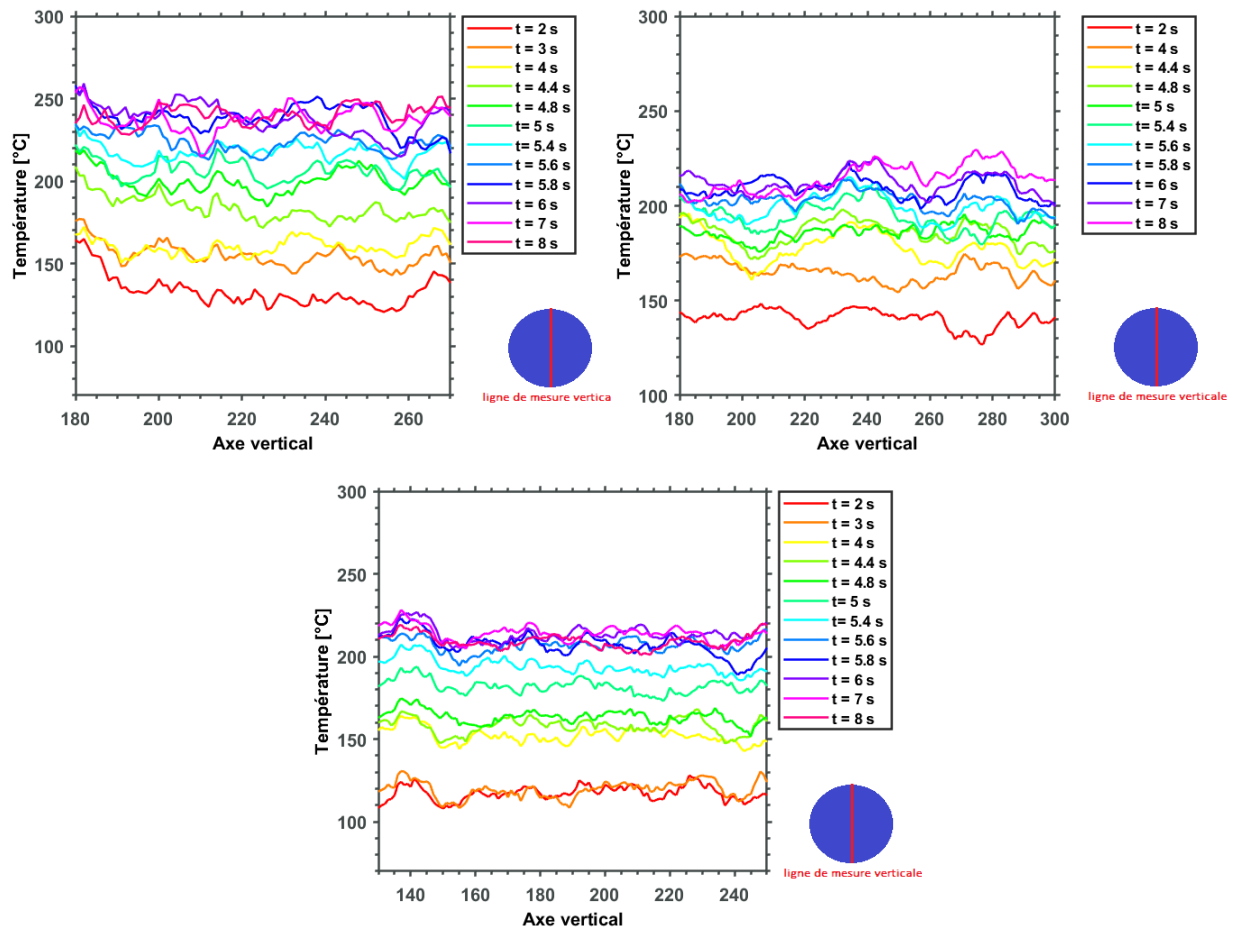


FIGURE 3.22 – Profil de température vertical au sein de la goutte durant sa montée en température, cas **BOT**, **TOP** et **SIDE**

Ainsi, on constate que, pour chacune des configurations étudiées, le profil de température à chaque instant de la mesure est relativement horizontal au sein de la goutte, et qu'il n'y a pas d'évolution marquée de la température d'un côté à l'autre. Cette mesure est en accord les observations réalisées grâce aux champs de température 2D, où l'on observait déjà une goutte à la température relativement homogène. Cependant, même si l'allure tend à dire que la température est relativement homogène, cela ne signifie pas l'absence complète d'un gradient de température, aussi faible soit-il. Nous nous proposons donc, de quantifier, dans la suite de ce chapitre, la valeur du gradient maximal de température observé dans la goutte, et ce, afin de mettre en évidence ou non l'existence des phénomènes de convection naturels.

Quantification de la convection induite par gravité

Nous avons pu démontrer que les différences de température au sein de la goutte sont relativement faibles, ce qui s'explique à la fois par un chauffage homogène mais également un très fort mélange du fluide à l'intérieur par re-circulation. Cette re-circulation interne est induite par un effet conjugué des forces de Marangoni et de la convection *thermogravitaire*. L'objectif ici est de démontrer l'existence de cette convection naturelle induite par la gravité, avant d'être comparée à la convection induite par effet Marangoni, comme nous le verrons au chapitre suivant.

Afin de quantifier cette convection "gravitaire", le nombre de Rayleigh est introduit comme suit :

$$Ra = \frac{g\beta}{\nu\alpha}(T_2 - T_1)L_c^3 \quad (3.10)$$

Où g représente l'accélération de pesanteur, β le coefficient de dilatation thermique, ν la viscosité cinématique, α la diffusivité thermique, T_2 et T_1 les températures prises en deux points, L_c la longueur caractéristique.

Afin de calculer le nombre de Rayleigh dans la goutte, il est nécessaire de prendre deux températures. Ainsi, deux zones sont prises respectivement en haut et en bas de la goutte, comme montré sur la figure 3.23 (gauche).

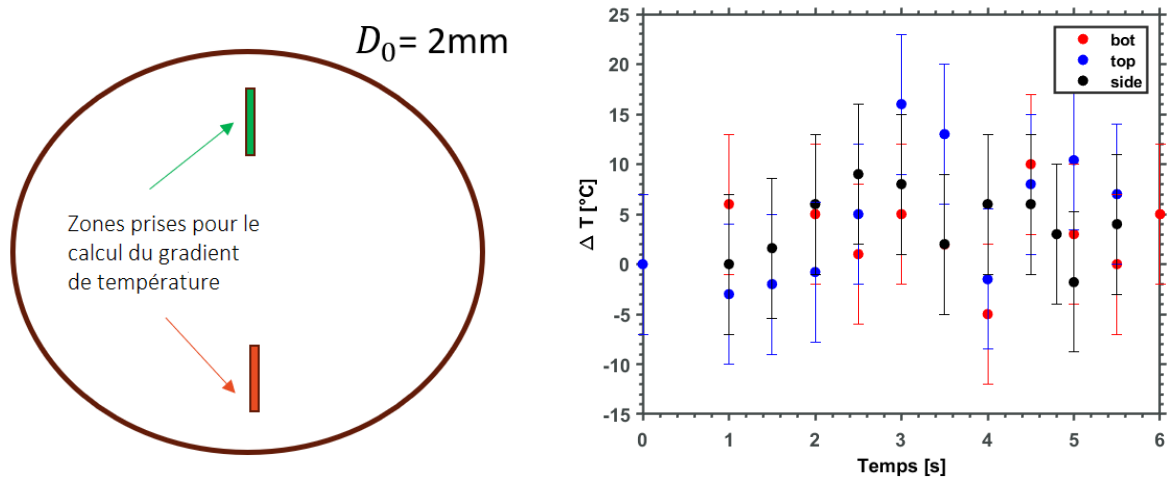


FIGURE 3.23 – Schéma des zones prises en compte pour le calcul du gradient vertical (gauche) et gradients mesurés (droite)

Les variations des propriétés physiques du fluide avec la température (β , μ et α) sont également prises en compte dans le calcul de Ra . Comme le démontre la figure 3.23 (droite), l'écart de température entre les zones supérieures et inférieures de la goutte est relativement faible, et de même ordre de grandeur que l'incertitude sur la mesure par LIF2c, indiqué par les barres d'erreurs verticales. Ainsi, on obtiendrait un écart maximum d'une quinzaine de degrés et ce quelque soit la position de la source de chaleur par rapport à la goutte.

Par la suite, le nombre de Rayleigh en fonction du diamètre de la goutte (tracé de façon décroissante, de manière à représenter son évaporation) est tracé sur la figure 3.24. Ainsi, on trouve un nombre de Rayleigh compris entre 5000 et 10 000 durant la phase de montée en température, puis diminuant en dessous du Rayleigh critique de 1700 ([133]) en dessous duquel aucune convection naturelle induite par la gravité ne s'établit. Cela signifie que les mouvements liés aux variations de densité sont inhibés lors de la "fin de vie" de la goutte. L'importante incertitude sur les résultats est simplement liée à l'incertitude sur le gradient de température calculé, car une différence de quelques degrés entraîne de relativement grandes répercutions sur le calcul du Ra .

Ainsi, cette évaluation de l'évolution du nombre de Rayleigh durant le chauffage et la vaporisation de la goutte nous permet d'estimer la contribution de la convection dite "thermogravitaire" dans les mouvements internes de la goutte. La littérature est assez peu fournie sur le sujet, car dans la majeure partie des cas, il est démontré une pré-dominance des forces de Marangoni par rapport à la gravité [44], comme nous le verrons dans Chapitre 4. Il paraît donc pertinent, de quantifier la contribution de l'effet Marangoni sur les mouvements internes du fluide, qui consistera en l'objet du Chapitre 4.

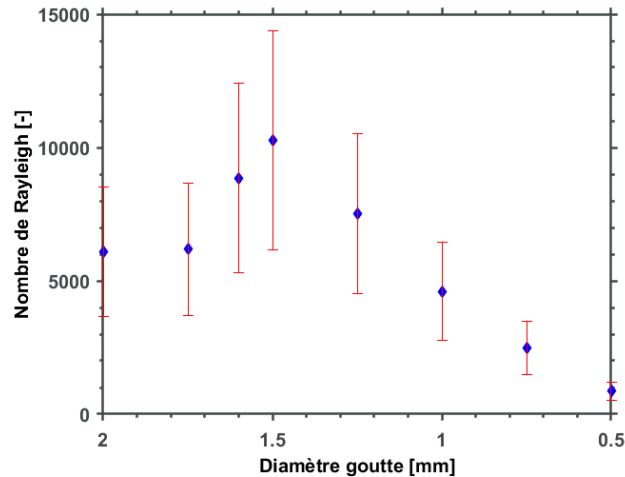


FIGURE 3.24 – Nombre de Rayleigh en fonction du diamètre de la goutte

3.6 Conclusion

L'objectif du présent chapitre consistait en la mise en place d'une méthode de mesure du champ de température interne d'une goutte de tétradécane soumise à différentes configurations de chauffage radiatif. Pour ce faire, une méthode basée sur la Fluorescence Induite par Laser à deux couleurs a été développée, depuis la caractérisation d'un nouveau traceur fluorescent adapté à l'étude proposée jusqu'à son application sur le banc expérimental mis en place.

La source de chaleur radiative est placée à divers emplacements par rapport à la goutte (au dessus, en dessous et sur un côté, toujours à la même distance de son centre), afin de considérer la contribution des différents modes de transferts thermiques.

Le champ de température est étudié à différents instants de l'expérimentation, de l'injection de la goutte jusqu'à son évaporation. Le champ de température est mesuré afin d'obtenir une cartographie bidimensionnelle permettant une lecture claire des résultats, puis les profils de températures mono-dimensionnels suivant les axes verticaux et horizontaux sont étudiés afin de vérifier l'existence ou non de potentiels gradients de températures ou zones chaudes.

Il ressort principalement que le champ de température au sein de la goutte reste relativement homogène et qu'aucune zone chaude "préférentielle" n'est présente.

Cette homogénéité du champ de température à chaque instant s'explique principalement par l'important brassage interne du fluide par convection naturelle. Une quantification de la contribution de la convection induite par la gravité est également proposée à l'aide du calcul du nombre de Rayleigh interne.

Par ailleurs, nous avons vu, lors du chapitre précédent que les mouvements intenses des gouttelettes d'eau constituant la phase dispersée de l'émulsion (et pouvant être considérés comme des traceurs pour la mesure des vitesses du fluide) pouvaient atteindre plusieurs dizaines de millimètres par seconde, donnant un temps de re-circulation très faible et donc un "brassage" homogénéisant la température au sein de la goutte. L'objectif de la suite de cet ouvrage constituera en l'étude de l'effet Marangoni, et de son importance relative grâce à des expériences réalisées en laboratoire ainsi qu'en situation de micro-gravité.

Chapitre 4

Étude des écoulements à l'intérieur d'une goutte en l'absence de gravité

4.1 Introduction et objectifs

Le présent chapitre traite de l'étude du comportement de gouttes de n-tétradécane ainsi que d'émulsions en situation de micro-gravité. L'objectif premier est d'étudier les mouvements internes du liquide au sein de la goutte dans des conditions où la gravité est inhibée, afin de mettre en lumière l'effet Marangoni et sa contribution au "brassage liquide". En effet, nous avons vu, lors du Chapitre 2 traitant des émulsions W/O, que les mouvements des fines gouttelettes d'eau dispersées induits par ce brassage au sein de la goutte mère étaient un frein à la coalescence et ainsi un facteur limitant la micro-explosion. Nous avons également pu quantifier, lors du chapitre sur la mesure du champ de température de gouttes de n-tétradécane par LIF à 2 couleurs de faibles variations de température (15 °C au maximum) au sein de la goutte. Ces écarts pouvaient permettre le démarrage d'une convection naturelle dont l'une des composantes est due aux différences locales de densité (et donc à la gravité). De plus, une évaluation du nombre de Rayleigh a également été proposée afin de quantifier la contribution de ce type de convection sur les mouvements internes.

Néanmoins, il a jusqu'à lors été impossible d'isoler l'un des deux mécanismes de convection (gravitaire ou Marangoni) par rapport à l'autre. La micro-gravité permettrait donc de bloquer la convection naturelle provoquée par la gravité et ainsi les seuls mouvements pouvant être observés dans cette configuration seraient induits par de potentiels gradients de tension de surface (Effet Marangoni). De plus, nous pourrions caractériser l'importance de ce phénomène relativement à l'effet thermogravitaire.

Le second objectif est l'étude du comportement des gouttes d'émulsions en situation de micro-gravité et d'observer si, dans ces conditions, la coalescence détectée lors du Chapitre 1 est inhibée.

4.2 Effet Marangoni et gouttes dans la littérature

Nous avons abordé, lors de la synthèse bibliographique de ce manuscrit, le cas de l'effet Marangoni dans les gouttes et de sa contribution potentielle aux transferts de masse internes

ainsi qu'à l'interface liquide/vapeur. Néanmoins, il semble pertinent de présenter de manière plus détaillée les résultats les plus significatifs dans le cadre de l'étude proposée. La question principale restant en suspend concerne la "séparation" de la convection liée à la gravité de celle liée à l'effet Marangoni. En effet, en condition normales, les deux modes sont combinés et le seul moyen à disposition et d'effectuer des études en situation de micro-gravité, ou bien des simulations numériques. Il est également possible d'effectuer des estimations de la contribution de chacun de ces deux effets en calculant notamment les nombres adimensionnels de Rayleigh et de Marangoni, afin de constater si l'un prédomine sur l'autre.

Savino et Fico [134] ont démontré numériquement, en étudiant des gouttes d'eau et d'huile s'évaporant en présence ou non de la gravité, que l'effet Marangoni avait un très grand impact à la fois sur la fluidodynamique interne de la goutte mais également sur la vitesse d'évaporation et la température à l'interface. Les résultats obtenus tendent à montrer une contribution mineure de la gravité sur la convection interne. Les cellules convectives internes à la goutte observées dans cette étude semblent également pertinentes par rapport à l'étude que nous nous apprêtons à mener. On citera également l'étude de Mandal et Bashki [135], qui ont démontré expérimentalement pour des gouttes suspendues allant de l'eau jusqu'à l'éthanol (en évaporation à l'air libre) que le nombre adimensionnel de Marangoni dominait toujours celui de Rayleigh.

Quantitativement, le nombre de Marangoni minimal permettant l'enclenchement des mouvements convectifs a été estimé à ~ 80 [136]. La littérature sur les nombres de Rayleigh critiques dans les cas qui nous intéressent est quant à elle assez peu fournie. On citera notamment un nombre de Rayleigh critique aux alentours de 1700 lorsque le liquide est pris entre deux frontières rigides afin d'observer le développement de cellules convectives [133]. Lorsque les deux modes convectifs coexistent, on parle aussi de convection Rayleigh-Bénard-Marangoni (RBM). Enfin, il semble important de préciser notamment qu'il existe deux configurations pouvant induire la convection de Marangoni à savoir :

- L'effet Marangoni *thermique*, induit par des variations locales de la tension de surface elles-mêmes induites par des variations de température. Cet effet se caractérise dans les fluides par la dépendance de la tension de surface à la température, représentée par un coefficient, noté ici σ_T [$N/m.K$].
- L'effet Marangoni *solutal*, qui survient dans les mélanges binaires/ternaires de liquides, lorsque la concentration du soluté varie à l'échelle locale (durant par exemple l'évaporation préférentielle d'un composant par rapport à l'autre). Ce cas de figure ne sera pas traité ici, car nous nous intéressons soit à un liquide pur, soit à une émulsion qui par définition est une inclusion d'une phase au sein d'une autre, toute deux immiscibles.

4.3 Contexte de l'étude et présentation de l'installation "Drop-Tower"

La collaboration entre les laboratoires du *LTeN* à Nantes et du *STEMS* à Naples a permis le développement de nouvelles activités dans le domaine de la recherche spatiale et de la micro-gravité. Parmi ces activités, s'est vue proposée la possibilité de réaliser des manipulations au sein de la tour de chute libre de Brêmes (ZARM Drop Tower). C'est dans cette perspective que le développement d'un banc de test automatisé comprenant un total de 3 cellules (2 cellules portant sur des expériences de combustion, développée par le *STEMS*, et une cellule portant sur les émulsions et la fluide-dynamique interne des gouttes, collaboration entre les deux laboratoires) a été initié lors du début de ces travaux de thèse.

Ainsi, un total de 10 tests (ou essais, également appelés "vols" par abus de langage) a été commandé auprès de l'Agence Spatiale Européenne, sous le nom de projet *STUDY 0G STudying Unsteady Droplet DYnamics in Microgravity*.

Dans cette section, nous présentons plus en détail la tour de chute ZARM permettant de réaliser des expériences en situation de micro-gravité.

Le centre de recherche est principalement composée de la tour de chute principale d'une hauteur de 146 mètres (figure 4.1), et d'une tour de chute annexe d'une quarantaine de mètres.

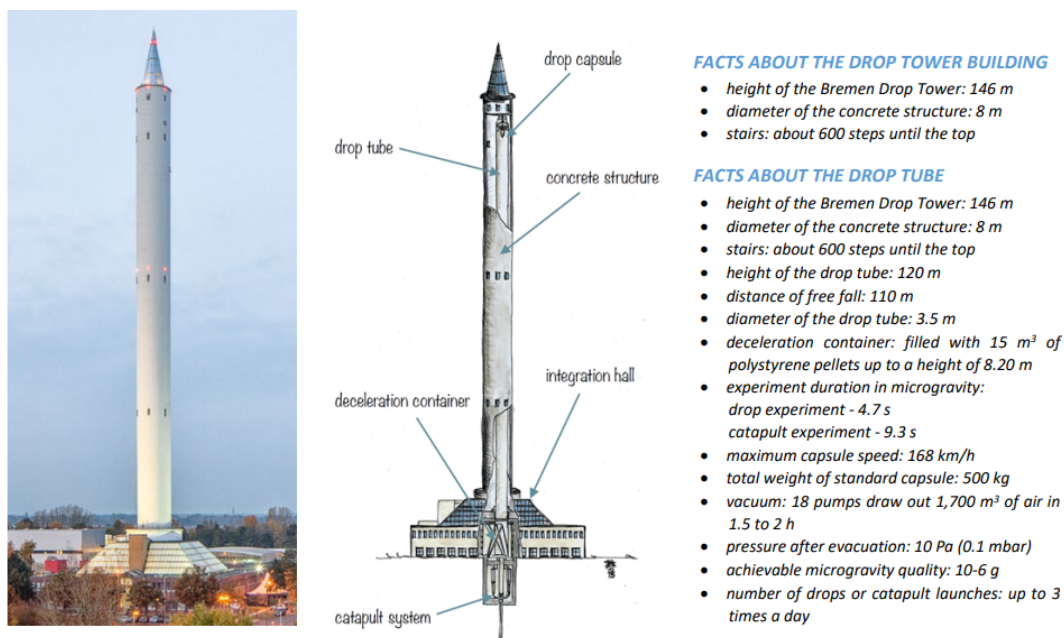


FIGURE 4.1 – Tour de Chute de l'ESA à Brêmes

La tour "principale" propose deux types de configurations :

- Chute libre depuis le haut de la tour, offrant une durée de micro-gravité d'environ 4.5 secondes avec une contrainte allant jusqu'à 35 g_0 en phase de décélération. Cette configuration sera nommée configuration 1 dans la suite du chapitre.
- Catapultage depuis le sol, portant la durée totale de micro-gravité à 9.5 secondes (cette configuration est celle qui sollicite le plus les bancs d'essais, avec une accélération avoisinant les 45 g_0). Cette configuration portera le numéro 2.

Afin de pouvoir créer les conditions de micro-gravité, les bancs expérimentaux embarqués sont insérés à l'intérieur de capsules (figure 4.2) qui sont ensuite arrimées à un système de catapulte permettant d'expulser le système au point haut de la tour. A la fin de la phase de descente, la capsule est freinée à l'intérieur d'un bassin amovible rempli de billes de polystyrène. Un système de pompage permet de réaliser le vide au préalable à l'intérieur de la tour et donc de supprimer les frottements entre l'air et la capsule. Ainsi, la qualité de la micro-gravité assurée oscille entre 10^{-3} et $10^{-6}g_0$ selon la qualité du vide obtenu dans l'enceinte.



FIGURE 4.2 – Capsule contenant les bancs expérimentaux

4.4 Description du système expérimental développé

Comme expliqué dans la section précédente, la campagne expérimentale est menée en collaboration avec le laboratoire STEMS. Ainsi, la cellule expérimentale utilisée dans ce chapitre est intégrée avec deux expériences de combustion dans le même châssis (on parlera, dans la suite de *payload* pour désigner la structure abritant les 3 expériences, et de *cellule* pour décrire le réacteur servant à réaliser une expérience). L'ensemble développé devait répondre à un certain nombre d'exigences, parmi lesquelles une automatisation complète des séquences expérimentales, de façon à pouvoir fonctionner de manière autonome une fois placé dans la tour et la séquence de micro-gravité initiée. Ainsi, il semble pertinent de proposer dans un premier temps, une description détaillée de l'expérience développée.

Cellule expérimentale

Le prototype devait permettre de réaliser l'injection de gouttes de combustibles liquides (purs mais également d'émulsions) et de chauffer les gouttes injectées de manière analogue aux expériences réalisées précédemment (et donc à l'aide d'un chauffage radiatif) le tout de manière automatisée. La cellule désignant l'expérience "émulsion" est présentée sur la figure 4.3 et est composée des éléments suivants :

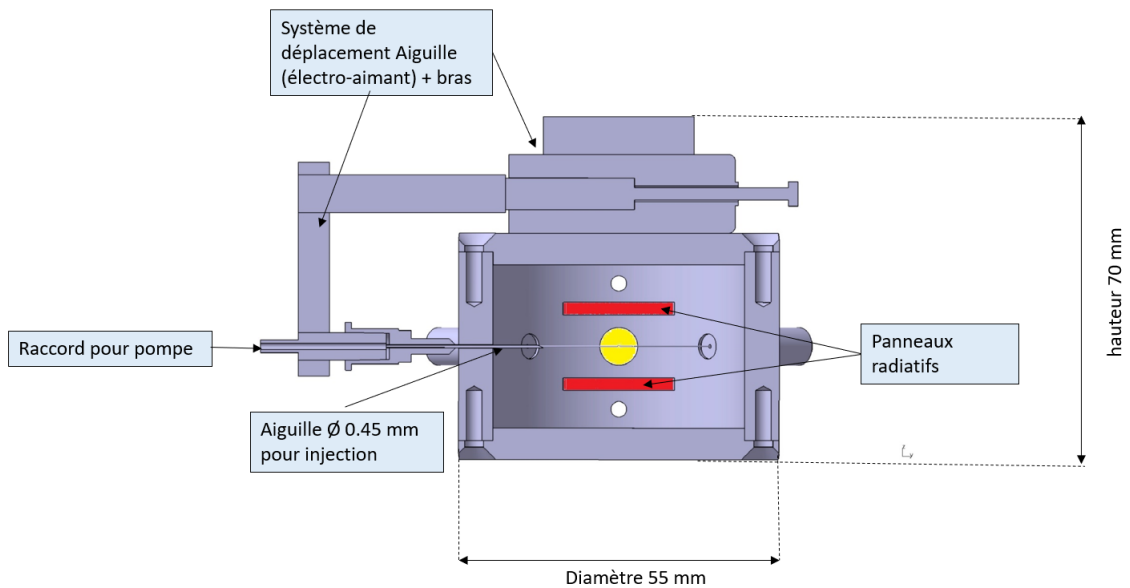


FIGURE 4.3 – Schéma de coupe de la cellule

- Deux fils en fibre de carbure de silicium de diamètre $150\ \mu\text{m}$ sur lesquels sera attachée la goutte d'émulsion
- Une micro-pompe *Bartels mp6-liq* (figure 4.4) permettant de faire circuler le liquide depuis le réservoir jusqu'au point d'attache de la goutte. Son débit pouvant être réduit jusqu'à $6\ \mu\text{L}/\text{min}$, elle permet de réaliser des injections goutte à goutte. Un micro-contrôleur fournit et relié à un Arduino permet de régler la quantité de liquide injecté en jouant sur la durée de pompage.

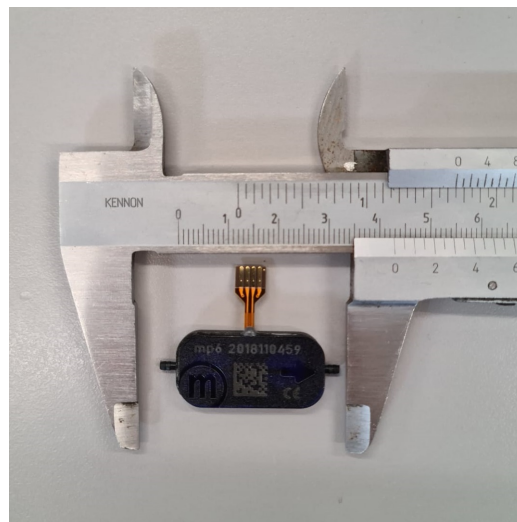


FIGURE 4.4 – micro-pompe à membranes utilisée dans le montage expérimental

- Un ensemble électro-aimant + aiguille (diamètre 2.5 mm) permettant de déplacer la pointe de l'aiguille jusqu'au point d'injection (le croisement des deux fils) avant de se retirer. Lorsque un courant passe à travers l'électro-aimant, un champ magnétique se crée dans la bobine et l'aimant est attiré, permettant de déplacer l'ensemble d'environ 1 cm. Ici, l'électro-aimant ne possède que deux positions "ON"/"OFF". Il fut donc nécessaire de positionner l'aiguille de façon à ce que la course totale disponible permette son positionnement

au croisement des deux fils.

- Deux panneaux radiatifs (*Bach Resistor Ceramics GmbH*, de diamètre 11 mm), égaux à ceux utilisés dans les montages expérimentaux utilisés en laboratoire dont la puissance peut-être régulée jusqu'à 15 W, correspondant à une température maximale de 750°C. Ces panneaux étant composés de thermistances (la résistance électrique varie en fonction de la température), la puissance électrique absorbée par le panneau varie durant sa phase de mise en régime. Ici les thermistances sont dites *CTP* (Coefficient de Température Positif), leur résistance augmente quand la température augmente. Le "pic" d'absorption électrique se situe donc au démarrage du panneau lorsqu'il est à température ambiante. Ainsi, il fut nécessaire de tenir compte de ce facteur afin de fixer une température atteignable tout en ne dépassant pas la puissance électrique maximale disponible.
- Une caméra *GoPro Hero 12* sur laquelle est montée un objectif *Nikon TC13040* rendant possible l'observation de gouttes millimétriques. La caméra permet d'enregistrer des vidéos à 240 images par seconde à une définition de 3840x2160 pixels. L'ensemble caméra-objectif repose sur des supports polymères ABS imprimés en 3D renforcés en carbone pour garantir une tenue aux sollicitations mécaniques subies lors des chutes depuis la tour (figure 4.5).
- Un système d'éclairage LED, utilisé lors des phases de test préliminaires pour illuminer la cellule et la goutte.



FIGURE 4.5 – Montage de la caméra et de l'objectif

- Un système de contrôle Arduino Uno permettant de contrôler toute la séquence et changer certains paramètres (température des panneaux, diamètre des gouttes). Les panneaux radiatifs et l'électro-aimant sont contrôlés par les ports digitaux de l'Arduino (ON/OFF uniquement), tandis que la pompe est contrôlée par le port PWM (*Pulse Width Modulation*) qui permet de moduler le débit de la pompe, ici en jouant sur la fréquence d'oscillation des membranes. Ainsi, la pompe peut être contrôlée à la fois en temps d'activation, ainsi qu'en amplitude et en fréquence.
- Le dispositif est alimenté à l'aide de deux batteries portables intégrées dans le châssis et commune avec les autres expériences embarquées.

Le prototype est monté sur une plaque d'aluminium avec la caméra GoPro et son objectif à la distance de focalisation. Un boîtier en polycarbonate (*LEXAN*) est utilisé afin de confiner la vapeur de combustible produite durant l'expérience, tout en permettant la visualisation à l'aide de la caméra. Il est également vissé sur la plaque en aluminium à l'aide d'un joint d'étanchéité (un contrôle d'étanchéité a été réalisé au préalable en pression afin de garantir la sécurité du système).

Implémentation d'un laser pour la visualisation

L'objectif de l'étude étant de visualiser les mouvements du fluide à l'intérieur de la goutte, il a été nécessaire de mettre en place un système de visualisation adapté à l'application désirée. Ainsi, le choix s'est porté sur l'implémentation d'un mini-laser continu à dimensions et puissance réduites (afin de répondre aux exigences de sécurité imposées par la tour). L'implémentation d'un laser permettra ainsi la visualisation de deux types :

- Visualisation des mouvements internes au sein d'une goutte de combustible pure à l'aide de micro-billes creuses en verre servant de traceur. Ici le fonctionnement se base sur la diffusion de la lumière incidente par les micro-billes.
- Visualisation de la phase dispersée (gouttelettes d'eau) d'une émulsion,ensemencée par un traceur fluorescent. Ici le fonctionnement est identique à celui présenté lors du Chapitre 2.

Le laser utilisé (*Q-BAIHE*, 520MD-100-12V, figure 4.6), est un laser de faible coût émettant une lumière continue à $\lambda = 520 \text{ nm}$ à une puissance de 100 mW.

Afin de rendre possible l'implémentation de ce laser sur le châssis contenant les 3 différentes expériences, il a été nécessaire de trouver la configuration permettant le positionnement adéquat des composants, sans entrer en conflit avec les éléments utilisés pour les autres montages expérimentaux.

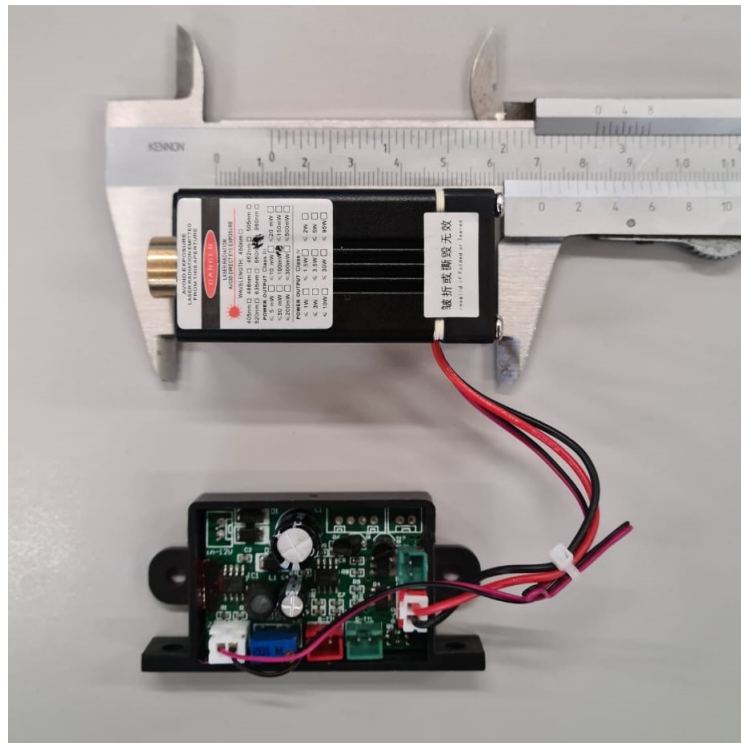


FIGURE 4.6 – Laser miniature embarqué

Pour ce faire, le laser a été placé à côté de la caméra, et le faisceau dévié à 90° à l'aide d'un miroir dont la transmission est de 95% afin d'arriver dans le plan d'observation de la goutte. Une lentille cylindrique permettant de transformer le faisceau incident en nappe laser est placée entre le miroir et la cellule expérimentale, à sa distance de focalisation de 50 mm (voir figure 4.7 et figure 4.8 pour le schéma de principe).

De cette manière, il est possible de reproduire une lame laser d'épaisseur similaire à celle utilisée dans les montages expérimentaux utilisés dans les chapitres précédents, et ainsi de se retrouver dans des conditions d'observations relativement proches, bien que le système optique d'observation (caméra et objectif) soient différents. Une vue du *payload* expérimental complet comportant les différentes cellules expérimentales est proposée en annexe (figure 4.34) afin de rendre compte des enjeux liés à la conception de ce type de système et les contraintes inhérentes à la miniaturisation.

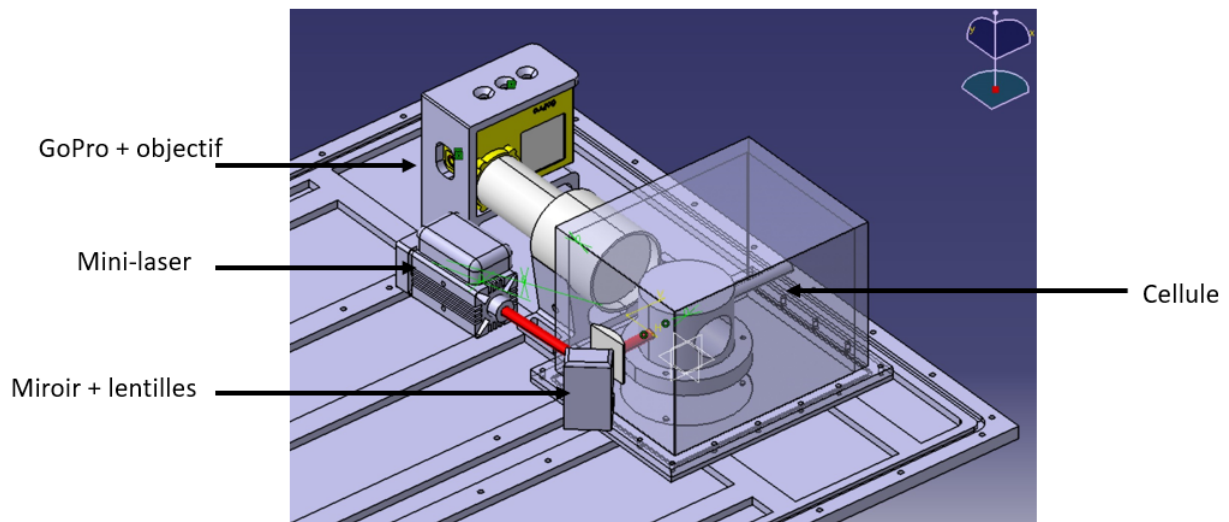


FIGURE 4.7 – Vue 3D de l'ensemble Cellule + système optique

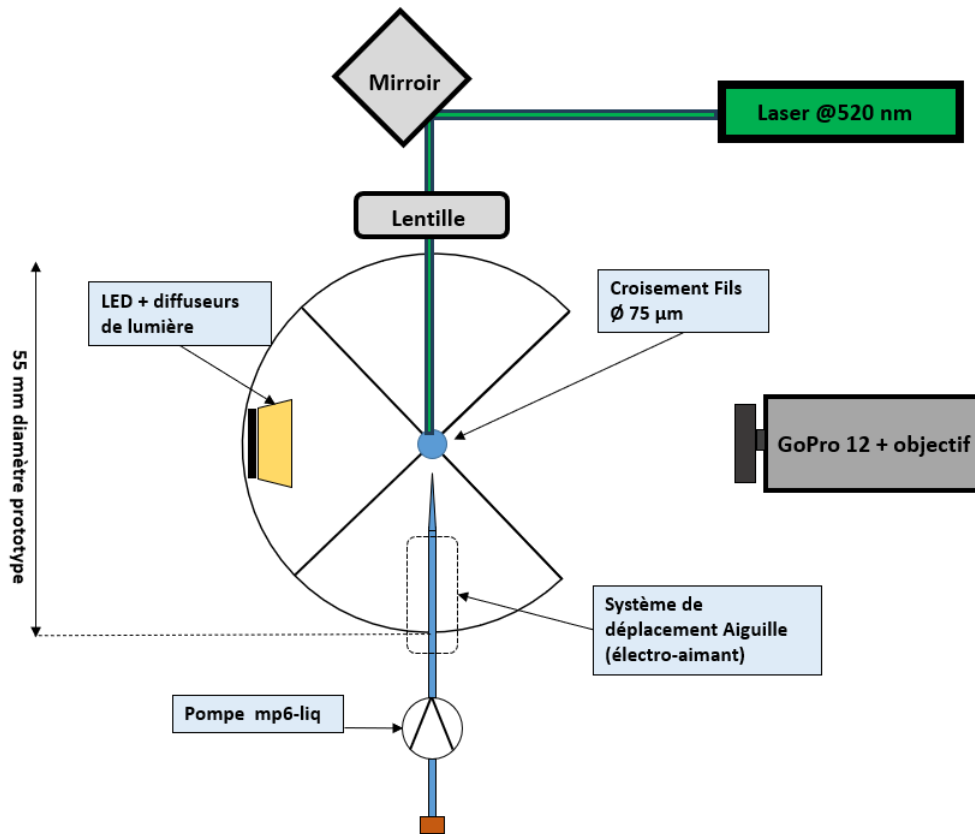


FIGURE 4.8 – Schéma de principe de l'ensemble Cellule et du système optique

Conception mécanique du banc expérimental embarqué

La structure comprenant les 3 cellules expérimentales devant résister à des sollicitations mécaniques importantes lors des phases d'accélération et de décélération au sein de la tour, sa conception a été réalisée en tenant compte de ces contraintes. Le profil de décélération dans le cas d'un lâché depuis le haut de la tour (durée durée μg de 4.5 s) est représenté sur la figure 4.9.

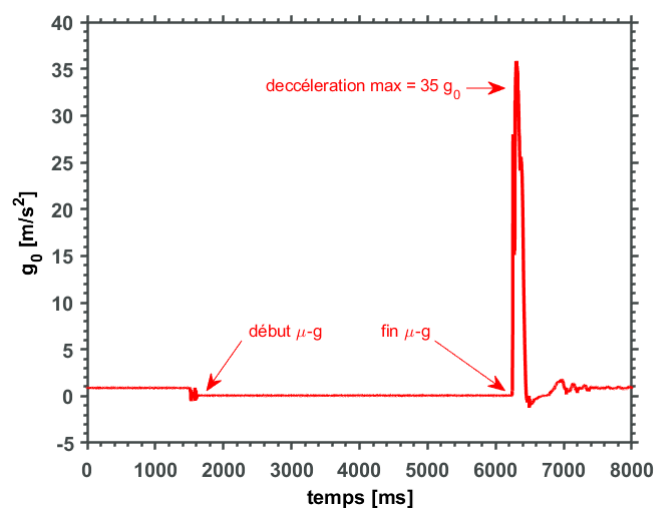


FIGURE 4.9 – Profil d'accélération de la tour lors du lâché depuis le haut de la tour (durée μg 4.5 s)

L'ensemble est donc soumis à des sollicitations allant jusqu'à $35 g_0$ dans la configuration

1 (cas d'une simple chute depuis le haut de la tour) lors de la phase de freinage du système, et jusqu'à $40 g_0$ dans la configuration 2 (catapultage depuis le sol). Une analyse structurale du système à l'aide du logiciel ANSYS a été réalisée au sein du laboratoire afin de simuler les déformations subies et vérifier la bonne tenue des différents composants aux sollicitations.

Fonctionnement de la séquence expérimentale

La tour de chute ZARM peut fournir des durées de micro-gravité allant de 4.5 à 9.5 secondes selon le type de lancement utilisé (chute simple depuis la hauteur maximale où catapultage depuis le sol). Le signal de micro-gravité est donné au système de contrôle électronique dès lors que la chute s'initie. Dans notre cas la séquence est la suivante :

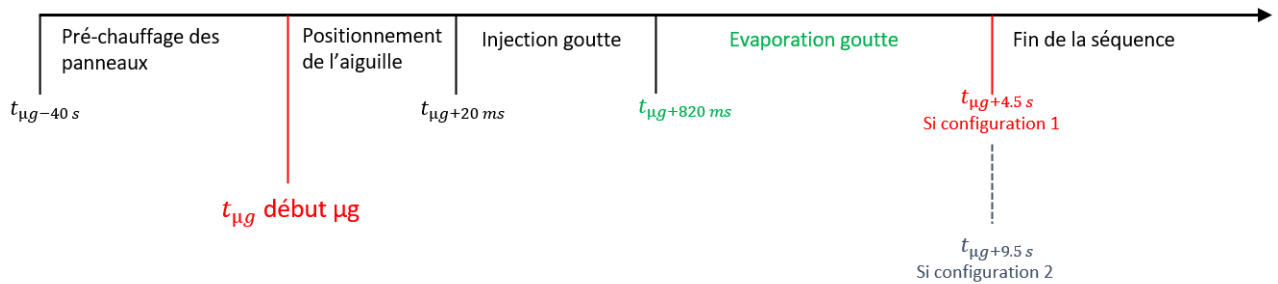


FIGURE 4.10 – Séquence expérimentale μg

Les panneaux radiatifs sont donc pré-chauffés 40 secondes avant le début de la séquence, leur permettant ainsi d'atteindre un régime stationnaire, par un premier signal donné par la tour au PC de contrôle embarqué qui communique avec l'Arduino. Une fois le signal de micro-gravité envoyé, l'aiguille se déplace aux croisements des fils (avec un délai de 50 ms après $t_{\mu g}$). L'injection de la goutte requiert une durée de 500 ms, permettant ainsi une durée de soumission de la goutte au chauffage radiatif de plus de 8.5 secondes, temps suffisant pour mener à terme les différentes expériences proposées. L'acquisition des séquences par la caméra GoPro est synchronisée au signal de pré-chauffage.

4.5 Observations des mouvements internes en conditions normales de gravité

Dans cette section sont présentées les observations de l'écoulement liquide à l'intérieur de gouttes combustibles durant leur phase de montée en température en condition de gravité normale. Nous nous intéressons, ici, aux mouvements internes dans l'huile pure, sans la présence des micro-gouttes d'eau.

Pour ce faire, le n-tétradécane est ensemencé avec des micro-billes de verre creuses de diamètre moyen $40 \mu\text{m}$ (*3M, microsphères de verre K46*) dont la densité est égale à 460 kg/m^3 . Les billes étant vides et ayant une masse volumique inférieures à celles du tétradécane, elles constituent donc d'excellents traceurs avec un nombre de Stokes $\ll 1$ (ici $St_{\text{moy}} = 3.10^{-4}$).

Dans un premier temps, le système expérimental correspondant à celui utilisé en micro-gravité est utilisé. Ainsi, l'expérience est filmée à l'aide de la caméra GoPro. Sa fréquence d'acquisition (240 FPS) étant trop faible par rapport à la vitesse caractéristique des mouvements internes observés, il n'est pas possible d'obtenir des mesures quantitatives des positions des particules à chaque instant dans cette configuration. Cependant, les images nous donnent une trace des trajectoires des particules, comme le montre en exemple la figure 4.11. Ici ce n'est pas la lumière émise par fluorescence mais bien la lumière diffusée par les billes dans toutes les directions qui rendent l'observation possible (on parle alors de diffusion élastique de la lumière).

Une fois les premières images obtenues à l'aide de la caméra GoPro (qui permet également de réaliser un test en vue de l'expérience en micro-gravité), une mesure plus quantitative de l'écoulement est réalisée à l'aide du même système que celui utilisé dans le Chapitre n°2 traitant sur le comportement de la phase interne de l'émulsion, à savoir la caméra rapide couplée à un post-traitement par PTV. ‘

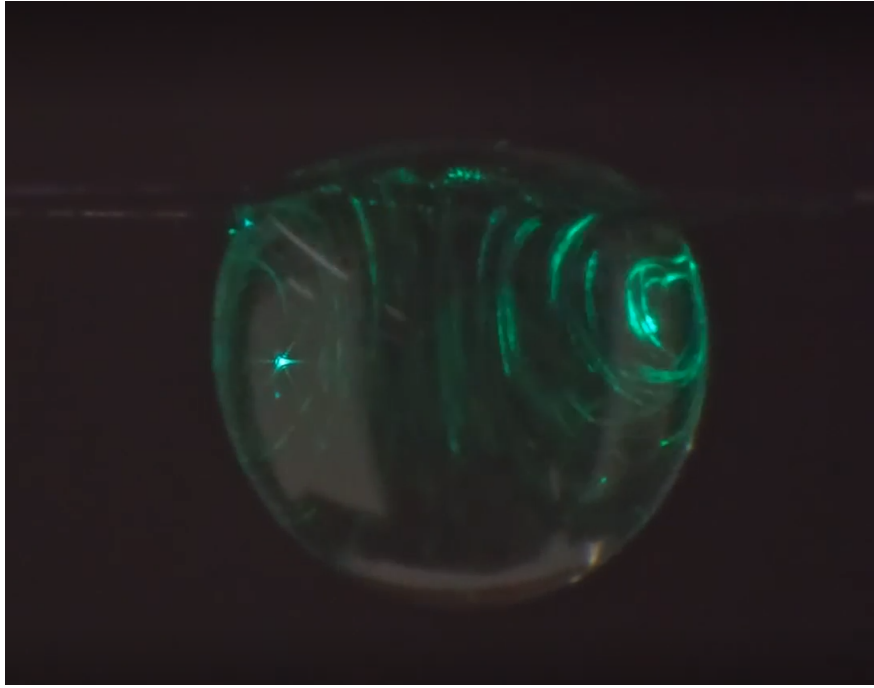


FIGURE 4.11 – Observation qualitative des mouvements internes du liquide, ici dans la configuration de chauffage 'TOP'

Trois différents cas sont étudiés, à savoir le chauffage radiatif par le dessous, le dessus et le côté de la goutte. La fréquence d'acquisition de la caméra rapide est fixée à 5000 FPS, avec une durée d'échantillonnage de 300 ms. Afin de pouvoir comparer les différents cas, les échantillonnages sont réalisés aux mêmes instants pour les 3 cas, à savoir 1, 1.5 et 2 secondes après l'injection de la goutte.

Les résultats de PTV pour les trois cas étudiés sont présentés dans le tableau 4.1 :

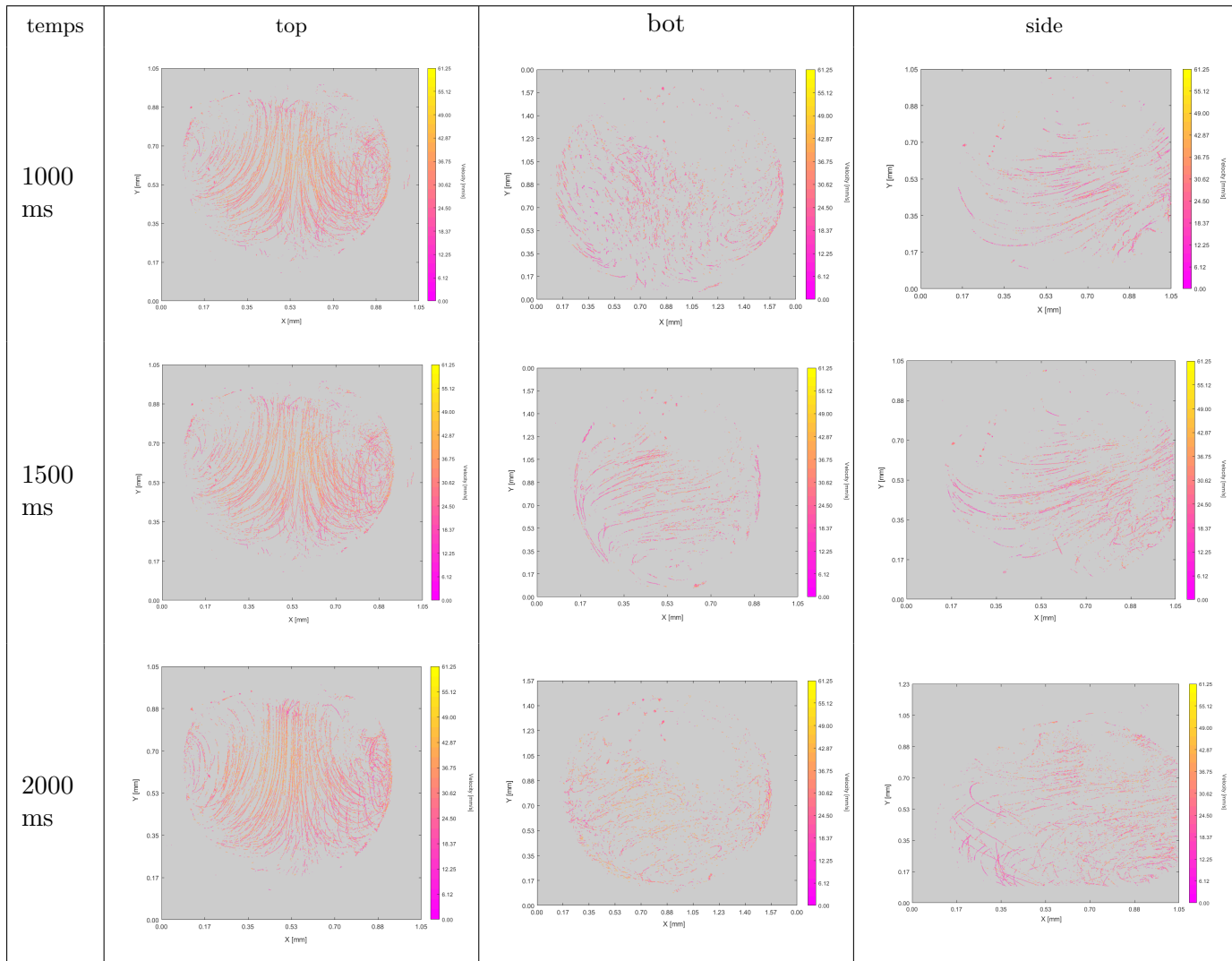


TABLE 4.1 – Trajectoire des micro-billes obtenues par PTV pour les 3 configurations de chauffage étudiées, aux mêmes temps après l'injection

Dans le cas "top", du chauffage par le dessus de la goutte, le flux de chaleur est quasi uniquement radiatif. Ainsi, comme le montre les images de la colonne "top", aux 3 instants présentés, les trajectoires sont identiques. Une image agrandie de ces motifs caractéristiques est présentée en figure 4.12. On distingue ainsi deux recirculations(vortex) quasi-symétrique de part et d'autre de la goutte. Le vortex de droite présente un sens de rotation horaire tandis que le vortex de gauche présente un sens de rotation anti-horaire. Ce type de recirculation est connu dans la littérature et porte le nom de vortex de Hill [137].

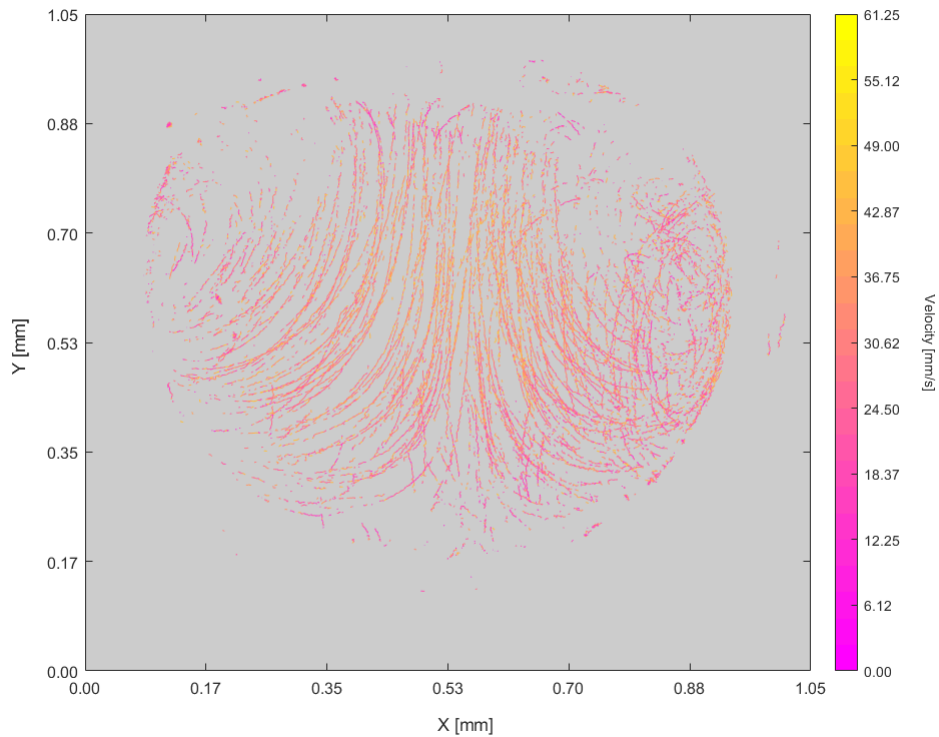


FIGURE 4.12 – Trajectoires caractéristiques obtenues dans le cas "TOP"

Ainsi on observe deux vortex ayant une symétrie d'axe verticale située au milieu de la goutte, avec un mouvement ascendant des particules dans le plan présenté. Comme nous le savons d'après le coefficient de dépendance à la température σ_T du tétradécane, sa tension de surface diminue avec la température. Or, dans le cas d'un gradient de tension de surface, le liquide se déplace depuis les zones où la tension de surface est plus faible (dans le cas du tétradécane les zones les plus chaudes), vers les zones où la tension de surface est plus élevée (zones les plus froides). Nous avons vu lors du Chapitre portant sur la LIF à 2 couleurs que à l'intérieur de la goutte, il ne semble pas y avoir de profil significatif de gradient de température et que cette dernière semble relativement homogène en tout point de la goutte (un gradient maximum de 15°C pourrait exister d'après les mesures effectuées par LIF2c). Il se pourrait cependant, qu'au moins de manière locale, la surface de la goutte soit un peu plus chaude en un point donné, (ici par exemple en partie basse) et, créerait ainsi ces mouvements depuis la zone de basse tension vers les zones à haute tension.

Cet effet est mise en avant lorsque la source de chaleur est placée sur le côté de la goutte. En effet, dans ce cas, les trajectoires des particules deviennent quasiment parfaitement horizontales comme le démontre la figure 4.13 extraite d'une séquence obtenue. On y observe donc deux recirculations de sens de rotation opposé de composante principalement horizontale. Ces trajectoires horizontales sont également retrouvées par le biais de la PTV (figure 4.14). Dans cette configuration, l'écoulement est plus instable que lorsque la goutte est chauffée par le dessus (voir vidéos indiquées ci-après), car des perturbations telles que le flux d'air ascendant induit par l'emplacement de la source de chaleur viennent perturber et dévier les lignes de courant de l'écoulement, contrairement aux résultats de la configuration "TOP". En effet, dans la configuration "TOP", on pourrait qualifier le régime de quasiment établi, avec une symétrie des deux recirculations à chaque instant de l'échantillonnage, à l'abri des perturbations apportées par le flux de chaleur ascendant.

Concernant la configuration "BOT", l'écoulement interne semble être le plus instable, avec des changements complets de régime et de direction entre les différents échantillonnages réalisés. Cela peut être en partie expliqué par le fait que le chauffage est dans ce cas, également convectif, avec un flux d'air ascendant vers la goutte. La température de ce flux étant plutôt instable, il pourrait en résulter des fluctuations de température non négligeables à la surface de la goutte, induisant des variations de tension de surface locales qui à leur tour pourraient perturber l'écoulement interne.

Ces modifications de la direction de l'écoulement interne selon la position de la source radiative, et notamment le fait d'obtenir un écoulement à composante majoritairement horizontale lorsque la goutte est chauffée par le côté, nous donne une indication supplémentaire sur la probable domination des forces de tension de surface sur la gravité. En effet, si l'écoulement était piloté par la gravité, une composante verticale importante aurait dû être observée également dans cette dernière configuration, induite par les variations de densité du liquide selon la température portant successivement le liquide en partie haute puis basse de la goutte.

Par ailleurs, comme nous le verrons dans la section suivante, un calcul du nombre adimensionnel de Marangoni avec pour donnée d'entrée le gradient de température mesurée par LIF2c démontrera que nous sommes bien au-delà de la valeur critique nécessaire à l'amorce du mécanisme de convection induit par gradient de tension de surface. Une évaluation de l'importance de la gravité à travers le nombre de Rayleigh sera également proposé.

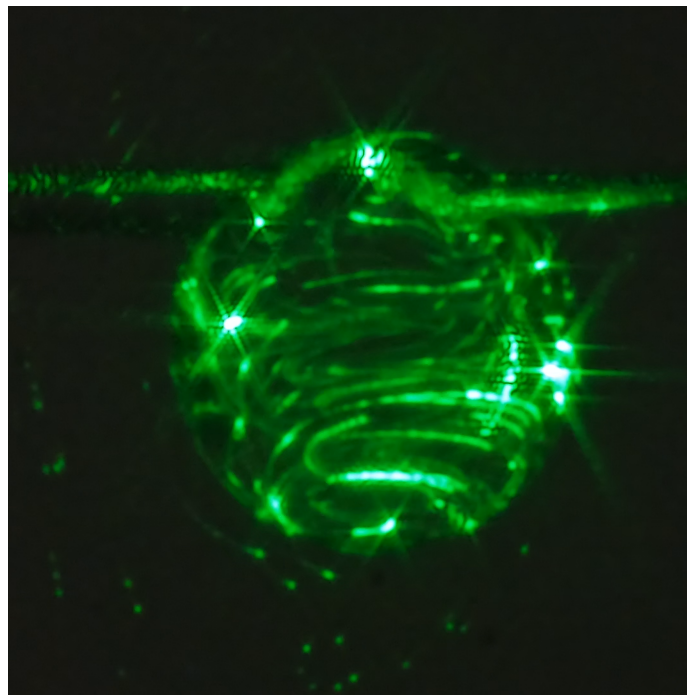


FIGURE 4.13 – Observations des trajectoires - configuration "SIDE"

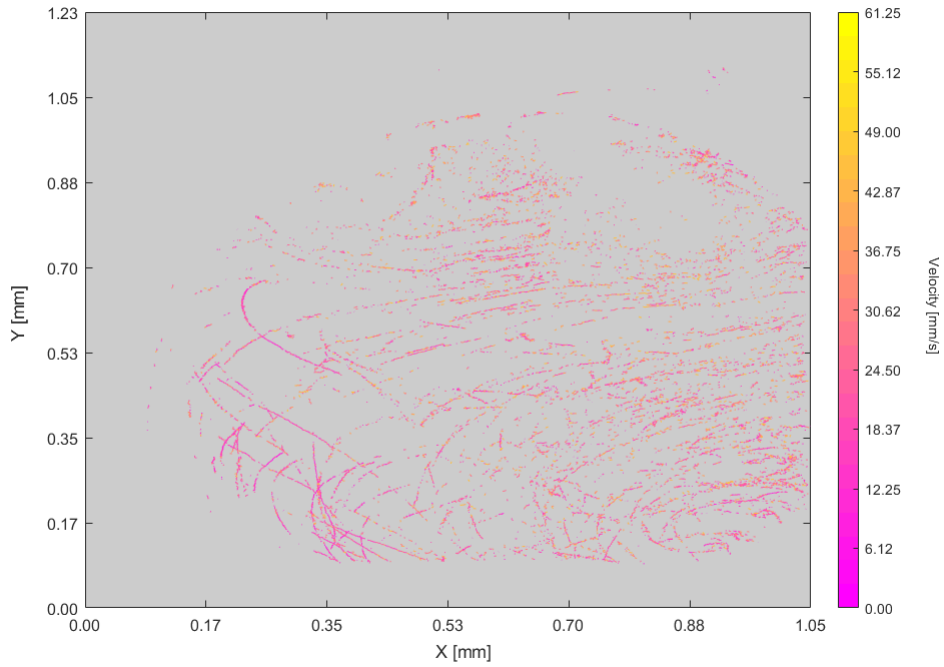


FIGURE 4.14 – Trajectoires caractéristiques obtenues - configuration "SIDE"

Matériel supplémentaire - Vidéos

Les vidéos des expériences réalisées dans les différentes configurations sont répertoriées dans un dossier accessible en cliquant sur ce lien :

<https://uncloud.univ-nantes.fr/index.php/s/DRfyESxnLoJ65WL>.

4.5.1 Première estimation de la contribution de l'effet Marangoni et de la convection thermogravitaire

Nous nous proposons, de réaliser ici une première estimation de la contribution des effets de tension de surface et de la gravité sur l'écoulement liquide au sein de la goutte. Pour ce faire, introduisons dans un premier temps le rapport entre les nombres adimensionnels de Marangoni et de Rayleigh :

$$Ma = \frac{\sigma_T L_c \Delta T}{\mu \alpha} \quad (4.1a)$$

$$Ra = \frac{g \beta \Delta T L_c^3}{\nu \alpha} \quad (4.1b)$$

$$\frac{Ma}{Ra} = \frac{\sigma_T}{\rho g \beta L_c^2} \quad (4.1c)$$

où σ_T est le coefficient de dépendance à la température de la tension de surface, L_c la longueur caractéristique, α la diffusivité thermique et μ la viscosité.

Ce rapport nous permet d'éliminer ΔT et ainsi de s'affranchir du besoin de connaître la différence de température au sein de la goutte.

Par ailleurs, nous nous proposons également de calculer les nombres de Rayleigh et de Marangoni pris seuls en se basant sur les gradients de températures internes de la gouttes trouvés

dans la chapitre sur la LIF à deux couleurs, à savoir un ΔT interne dans la goutte de 15°C. Comme vu précédemment, les valeurs respectives des nombres de Ma et Ra permettant l'enclenchement des mouvements convectifs (valeurs critiques) sont respectivement estimées à 80 et 1700 dans la littérature.

Le rapport des nombres de Ma/Ra peut également se définir comme le rapport de deux vitesses caractéristiques, à savoir [138] :

$$\frac{Ma}{Ra} \sim \frac{U_M}{U_B} \quad (4.2)$$

où U_M est la vitesse caractéristique liée à l'effet Marangoni et U_B la vitesse caractéristique due à la gravité (Buoyancy).

Ici, en plus du rapport des deux nombres adimensionnels, le rapport des deux nombres normalisés par leur valeur critique est réalisé, de la façon suivante :

$$\frac{Ma/Ma_{crit}}{Ra/Ra_{crit}} \quad (4.3)$$

Avec $Ma_{crit} = 80$ et $Ra_{crit} = 1700$.

Les résultats sont présentés sur la figure 4.15. La courbe du rapport des nombres de Marangoni et de Rayleigh normalisés par leurs valeurs critiques et représentée sur à l'aide de la courbe violette (axe de référence vertical à gauche) et les nombres seuls représentés par les nuages de points rouges et verts (axe de référence vertical droit). L'axe horizontal est tracé quant à lui selon le diamètre de la goutte décroissant, représentant l'évaporation de la goutte. L'évolution des propriétés physiques du liquide avec la température est prise en compte à l'aide des références suivantes [139, 140, 141, 142, 143].

On constate ainsi, d'après cette analyse à travers les nombres adimensionnels, que les forces de Marangoni sembleraient piloter les mouvements internes, tant le rapport Ma/Ra est grand. En effet, il commence à une valeur de 68 pour une goutte de 2 mm, avant de dépasser les 200 pour une goutte de 1 mm. Ainsi, cette première analyse tend à nous faire dire que pour des gouttes millimétriques et sub-millimétriques de tétradécane, les transferts de masse internes sont essentiellement pilotés par les gradients de tension de surface, comme le montraient les quelques études présentées lors de la synthèse bibliographique.

L'objectif serait donc maintenant de confirmer ces résultats en situation micro-gravité, où les mouvements induits par les changements de densité seront inhibés.

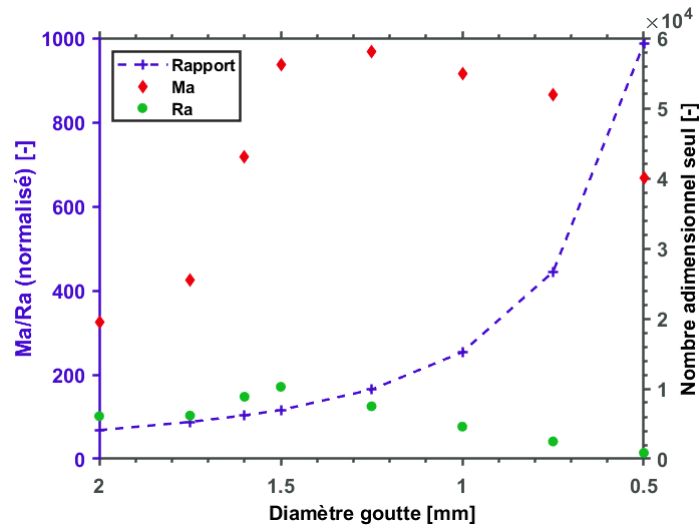


FIGURE 4.15 – Évolution des nombres de Rayleigh et de Marangoni suivant le diamètre de la goutte et rapport correspondant

On citera également le nombre de Bond, qui représente un autre mode d’expression du rapport des forces capillaires sur la force de gravité, défini par $Bo = \frac{\Delta\rho g L_c^2}{\sigma}$. Il est normalement utilisé pour décrire la forme d’une goutte : lorsque une goutte conserve sa forme sphérique, les forces de capillarité (à travers la tension de surface) prédominent, tandis que lorsque la goutte se déforme (i.e s’aplatit), la gravité l’emporte. Quantitativement, lorsque $Bo < 1$, les forces capillaires dominent sur la gravité. Il est donc possible d’adapter ce nombre à notre écoulement interne en prenant comme $\Delta\rho$ la variation induite par le changement de température interne (mesuré dans le chapitre 3) et en prenant également en considération la variation de σ avec la température. Dans notre cas de figure, Bo sera compris entre 0.02 et 0.045, confirmant un effet dominant de la tension de surface.

Variation de la tension de surface du tétradécane avec la température

Il semble donc que les variations de tension de surface avec la température soient assez significatives pour créer les mouvements internes observés. Le coefficient de dépendance à la température de la tension de surface σ_T du tétradécane est égal à -0.0869 mN/(m K) [141]. Ainsi, dans la gamme de température 20-250 °C, la tension de surface de cet alcane diminue de 75%. Même si la température à l’intérieur de la goutte est relativement homogène, une variation locale de la température peut suffire à créer une force motrice suffisamment grande pour entraîner le liquide et créer ces motifs internes. Par ailleurs, ce phénomène, contrairement aux variations de densité, est un phénomène surfacique, et nous n’avons pas d’informations locales sur la température à la surface de la goutte (car la thermométrie par LIF2c dans la configuration utilisée ne nous permettait pas une telle résolution spatiale).

4.6 Résultats obtenus en micro-gravité

Première campagne expérimentale

Une première campagne expérimentale a été réalisée en avril 2023. L’objectif de cette première campagne consistait d’abord en l’adaptation du banc expérimental développé à la structure de la tour de micro-gravité. Il s’agissait donc, d’une phase de test préliminaire afin de vérifier la résistance de la structure aux sollicitations mécaniques ainsi que le bon fonctionnement des différentes expériences (bon déroulement de la séquence, synchronisation avec le signal de micro-

gravité, fonctionnement des caméras). Durant cette première campagne de mesures, le système de visualisation par laser n'étant pas encore intégré au sein du prototype pour la cellule émulsion, la visualisation s'effectuait simplement par un éclairage LED.

Lors de cette première campagne expérimentale, 3 lancers ont pu être effectués (dans la configuration 1, à savoir pour une durée de micro-gravité de 4.5 secondes). L'expérience s'est alors portée sur l'étude du comportement d'une émulsion W/O, ayant une teneur en eau de $7\%_m$. Sur les 3 lancers effectués, 2 ont permis la réalisation de la séquence expérimentale, tandis qu'un s'est soldé par un défaut lors de l'injection de la goutte, qui était très certainement dû à la présence d'air dans les tubes. Toutefois, l'expérience obtenue lors de ces essais préliminaires a permis d'acquérir une certaine maîtrise du fonctionnement du banc expérimental et des procédures à suivre, notamment pour éviter la présence d'air dans les circuits de pompages, qui peut s'avérer fatal en condition de micro-gravité.

Par ailleurs, des premières observations ont pu être effectuées lors de cette première campagne. La figure 4.16 représente l'évolution du ratio $(D/D_0)^2$ (Loi D^2) de la goutte d'émulsion lors des deux essais.

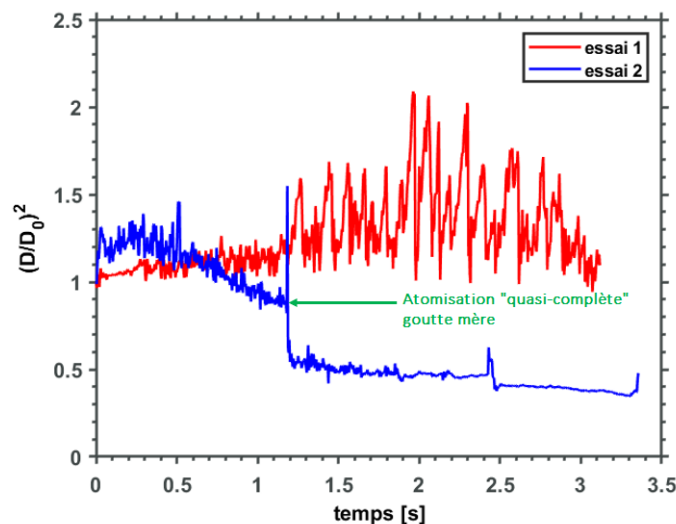


FIGURE 4.16 – Évolution du rapport $(D/D_0)^2$ lors des deux essais

La figure 4.17 quant à elle est une image brute d'un 'puffing' dit intermédiaire de la goutte d'émulsion observé lors du premier essai. Durant cet essai, à part cet événement, aucune autre atomisation n'a été observée. La figure 4.18 représente une image post-traitée de l'atomisation quasi-complète obtenue lors du deuxième essai. Ainsi, pour cette émulsion à $7\%_m$ d'eau une atomisation a été obtenue en situation de micro-gravité. Dans l'état, le système expérimental ne nous permet pas d'observer l'intérieur de la goutte et ainsi de pouvoir assurer avec certitude la présence (ou non) de mouvements internes dans ces conditions.

Cette première campagne expérimentale a donc permis à la fois de tester le fonctionnement de notre banc expérimental en conditions réelles ainsi que d'obtenir des premiers résultats sur la possibilité d'atomisation de gouttes d'émulsion en micro-gravité. Néanmoins, en l'état actuel, l'expérience ne nous permet pas d'étudier le comportement et les possibles mouvements à l'intérieur de la goutte. C'est pourquoi une modification du système a été proposée en vue de la seconde campagne expérimentale.

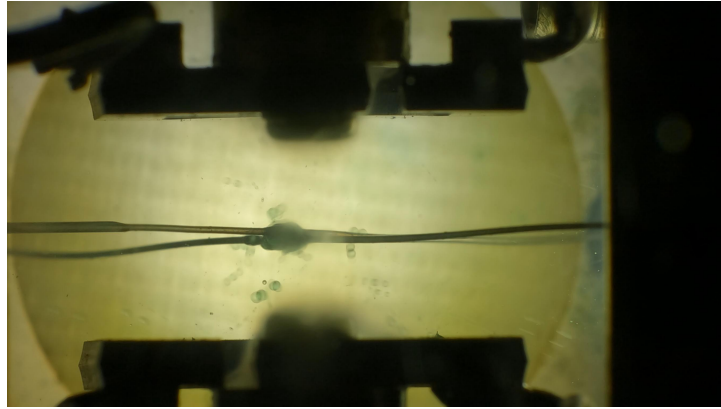


FIGURE 4.17 – Puffing

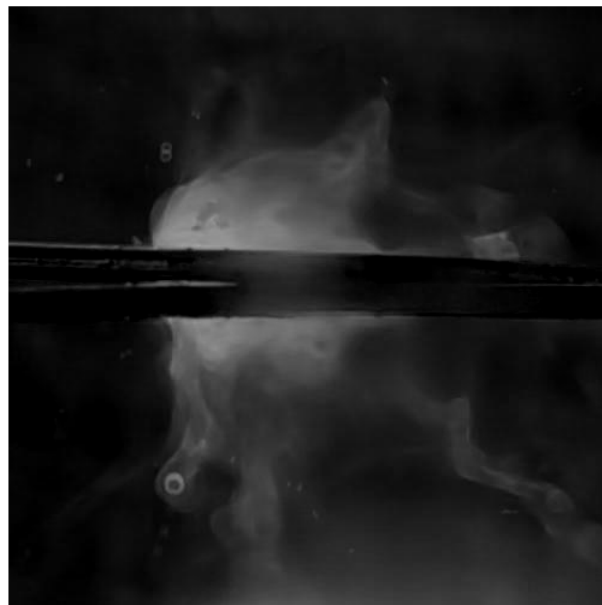


FIGURE 4.18 – Atomisation de la goutte

Seconde campagne expérimentale

La seconde campagne expérimentale, réalisée en février 2024, avait comme objectif principal l'utilisation du banc expérimental dans sa version améliorée (à l'aide du mini-laser), cette fois avec une démarche plus scientifique afin de récolter le plus de données possibles pour l'étude des transferts de mouvements au sein d'une goutte en micro-gravité. Dans cette campagne, le système de visualisation laser présenté section 4.4 a donc été utilisé afin d'observer au mieux les éventuels mouvements internes dans cet environnement.

Un total de 5 *lancers* depuis la Tour de chute a été réalisé durant cette campagne (le nombre de tests réalisables sur la Tour de chute est défini au préalable en accord avec l'Agence Spatiale Européenne).

Principaux résultats obtenus

Nous nous intéressons ici aux principaux résultats obtenus durant la campagne. Un seul des cinq lancers réalisés s'est soldé par un résultat complet, tandis que les autres ont connu des problèmes divers lors de la réalisation de la séquence en micro-gravité. Les causes de ces échecs

seront présentées après ainsi que les potentielles solutions et pistes d'améliorations ainsi que les résultats principaux obtenus.

Sur la seconde campagne expérimentale, l'objectif principal était l'observation des mouvements à l'intérieur de la goutte en situation de micro-gravité, afin d'obtenir une confirmation de l'hypothèse faite sur la prévalence des forces de Marangoni sur ces mouvements de liquide. L'expérience réalisée était donc analogue à celle réalisée en laboratoire (section 4.5) à l'aide des micro-billes de verre ensemencées dans du tétradecane pur afin de réaliser un suivi des lignes de courants fluides. Évidemment, ici une PTV quantitative n'est pas réalisable à cause de la fréquence d'acquisition trop limitée des caméras GoPro embarquées par opposition aux essais réalisés à l'aide de la caméra rapide.

La figure 4.19 représente 2 images brutes extraites de la séquence expérimentale filmée. Au premier abord, les images ne semblent pas être totalement à la distance dite de mise au point optimale. Cet effet est dû à deux facteurs principaux :

- La distance (profondeur) de mise au point de cet objectif est réduite. En effet, le choix s'est porté sur l'optimisation du grossissement afin d'observer au mieux l'intérieur de la goutte, par opposition à l'objectif télécentrique utilisé lors de la première campagne, qui permettait d'avoir un champ de vision plus large et plus profond, mais avec une résolution beaucoup plus limitée (1 pixel = 6 μm pour l'objectif télécentrique contre 1 pixel = 1.5 μm pour le nouvel objectif utilisé).
- La fréquence d'acquisition de la caméra limitée à 240 images par secondes. Cette limitation de la fréquence d'acquisition induit un certain flou supplémentaire dans les images.

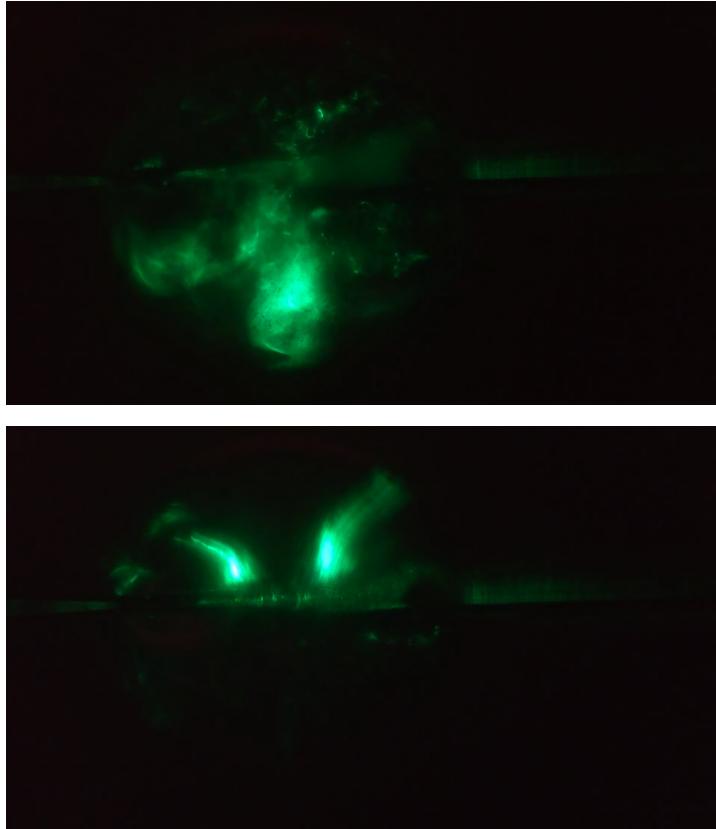


FIGURE 4.19 – Exemple d'images brutes obtenues

Post-traitement des images

Afin d'apporter des éléments de réponse supplémentaires, un post-traitement des images similaire à celui présenté au Chapitre 2 est réalisé.

La figure 4.20 représente une image extraite de la séquence ayant subi un post-traitement (augmentation du contraste, diminution du flou) afin de mettre en évidence les motifs de "recirculations" caractéristiques de ce type d'écoulement. On observe donc deux recirculations symétriques par rapport à l'axe vertical passant par le centre de la goutte, ayant deux sens de rotation inversés. Ce type de vortex est très similaire à ceux observés en laboratoire (figure 4.11) lors d'un chauffage purement radiatif (par le dessus de la goutte).

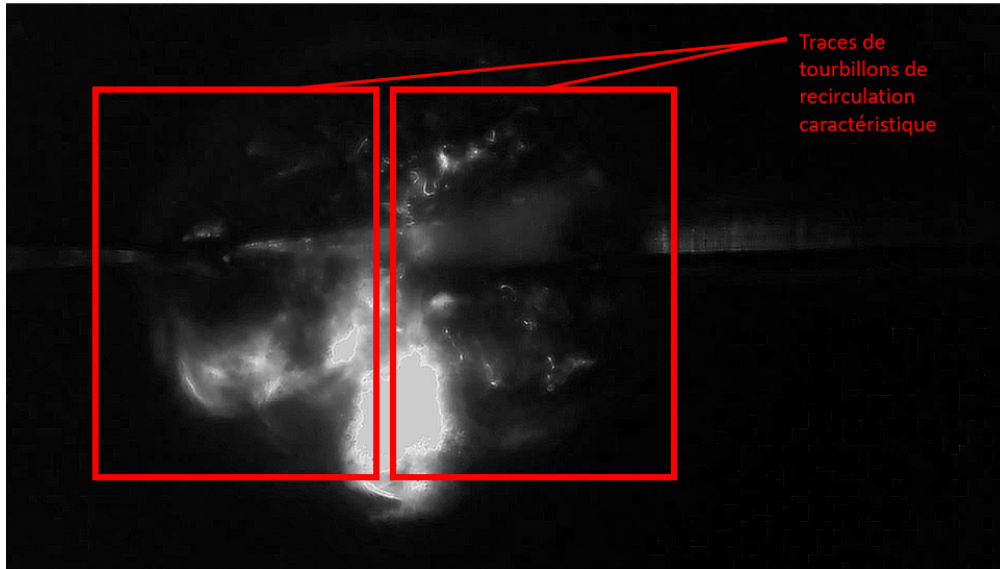


FIGURE 4.20 – Traces des tourbillons de recirculation obtenus en micro-gravité

Comme il n'est pas possible, avec la qualité des images obtenues et la fréquence d'acquisition de la caméra de réaliser un suivi des particules par PTV, une estimation de la vitesse minimale des mouvements observés est proposée. Pour ce faire, des séquences où des particules les plus distinctes possibles sont visibles sont sélectionnées, et leurs coordonnées sont mesurées manuellement entre le début et la fin de la séquence d'interrogation (comme représenté figure 4.21).

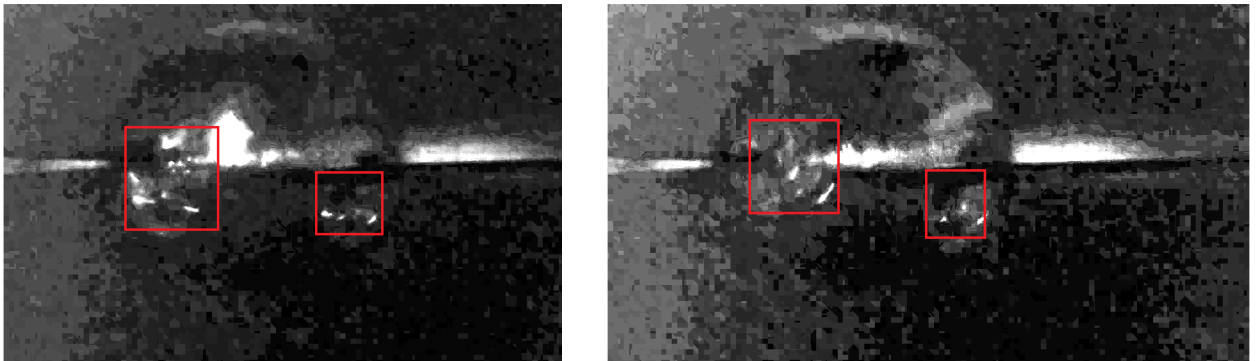


FIGURE 4.21 – Distinction des particules les plus visibles pour une estimation de vitesse

La fréquence d'acquisition étant trop limitée par rapport à la vitesse caractéristique du phénomène étudié, l'incertitude sur la mesure de vitesse basée sur le suivi des particules est trop élevée. En effet, il n'est pas possible de distinguer nettement sur plusieurs images successives des particules, mais plutôt des lignes appelées "stries" correspondant à la trajectoire des dites particules. Nous proposons donc de déterminer la vitesse de ces particules en analysant la longueur des stries, représentant les trajectoires

Dans notre cas, les paramètres de la caméra sont les suivants :

- Une résolution de 3840*2160 pixels. La dimension d'un pixel étant de 1.5 microns, on obtient une résolution de 5.76 mm sur la largeur et 3.24 mm sur la hauteur.
- Une fréquence d'acquisition de 240 images par seconde.

- Une vitesse d'obturation de 1/2000 s, soit une durée d'exposition de 0.5 ms.

Pour ce faire, des images permettant d'observer plusieurs particules se déplaçant dans la même direction sont sélectionnées. Pour chaque image, la longueur des stries, représentant le déplacement d'une particule durant la capture de l'image, est mesurée. Afin de mesurer avec une précision suffisante la taille des stries, il est nécessaire de considérer l'incertitude due à la non-mise au point de l'image. En effet, lorsque l'image est nette, on observe des stries ayant une largeur en moyenne de 3 pixels. Dans le cas présent, les stries présentent une largeur d'environ 6 pixels, due au manque de focalisation de l'objectif sur la zone d'observation. Ainsi, il sera possible de mesurer les longueurs des stries correspondant au déplacement de la particule, et de prendre en compte cette incertitude sur la mesure.

En appliquant les formules suivantes, les vitesses suivant les deux axes du plan sont mesurées :

$$v_x = \frac{x_{t2} - x_{t1}}{\Delta t}, v_y = \frac{y_{t2} - y_{t1}}{\Delta t} \quad (4.4a)$$

$$v(x, y) = \sqrt{v_x^2 + v_y^2} \quad (4.4b)$$

Ainsi il nous a été possible de mesurer 24 "stries" avec une précision suffisante. Les stries identifiées ont ensuite été classées en 3 zones différentes, à savoir les zones 1 et 3 correspondantes respectivement aux côtés gauche et droit de la goutte, et la zone 2 correspondante à la zone centrale de la goutte. Ces vitesses selon es différentes zones sont représentées sur la figure 4.22 :

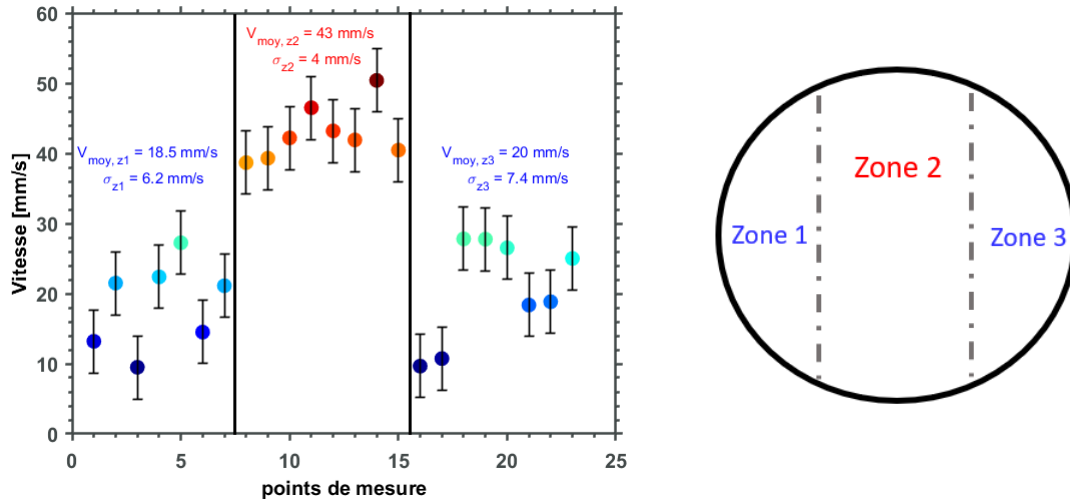


FIGURE 4.22 – Vitesse des particules en fonction des zones à l'intérieur de la goutte

Cette représentation nous donne donc une répartition des vitesses à l'intérieur de la goutte. On observe que la vitesse des particules en partie centrale est plus élevée que la vitesse dans les zones situées sur les extrémités. La vitesse moyenne des particules, toute zone confondue est de 27 mm/s, avec un écart-type global $\sigma = 13$ mm/s. Les barres d'erreurs représentent l'incertitude sur la mesure de la longueur des trajectoires présentée plus haut.

Il semble donc que les vitesses mesurées dans ces conditions soient du même ordre de grandeur que les vitesses mesurées en laboratoire par le biais de la PTV, qui étaient quant à elles comprises entre 6 et 61 mm/s.

Ainsi, cette estimation des vitesses de circulation des particules en condition de micro-gravité tend également à montrer la prédominance de l'effet Marangoni sur le brassage liquide à l'intérieur des gouttes.

4.7 Limites du système et possibilités d'améliorations

La création d'un système expérimental dédié à la réalisation expériences en micro-gravité est un processus complexe. En effet, dans notre cas, le taux de réussite de l'expérience peut être estimé à 2 sur un total de 8 lancers soit 25%. Néanmoins, ces "échecs" consistent en la base fondamentale du développement des activités en micro-gravité, et permettent de développer des systèmes de plus en plus robustes. Ici, les limitations principales actuelles du système sont les suivantes :

- Le circuit de micro-fluidique représente le point le plus critique. En effet la plupart des échecs avaient pour origine un défaut dans le système de pompage. Nous avons pu noter, par exemple, que les micro-billes de verre avaient tendance à s'accumuler au niveau des membranes de la pompe, perturbant ainsi son fonctionnement. Une solution simple à mettre en place pour de futurs essais serait un remplissage à l'aide des billes uniquement en partie aval de la pompe et un remplissage de liquide seul en partie amont. Dans cette configuration, une goutte de liquide ensemencée des billes traçantes pourrait être réalisée sans venir perturber la pompe. A noter également, que la présence d'air à l'intérieur du circuit est également rédhibitoire. Cette problématique a déjà été résolue en ajoutant une valve de non-retour à l'entrée du circuit, permettant ainsi d'effectuer un remplissage complet et de "chasser" l'air présent.
- La fréquence d'acquisition de la caméra. Comme nous l'avons vu au cours du chapitre, la vitesse de la caméra est trop faible afin de permettre de suivre et de comprendre précisément les événements qui ont lieu lors de l'expérience. Initialement, le choix s'est porté sur la caméra GoPro pour sa robustesse, son faible encombrement et sa bonne résolution. Néanmoins, l'utilisation d'une caméra plus rapide (de l'ordre du millier d'images par seconde) semble pertinente dans ce cas. De plus, un objectif présentant une profondeur de champ plus grande pourrait permettre d'avoir une mise au point sur la goutte entière, et non plus uniquement sur la nappe laser, et également d'absorber les défauts de positionnement des composants optiques (il a été noté par exemple des micro-déplacements des miroirs et lentilles soumis à des efforts importants lors des phases d'accélération et de décélération).

4.8 Conclusion

Le présent chapitre nous a permis d'approfondir notre compréhension des mouvements à l'intérieur d'une goutte soumise à un flux de chaleur. Dans un premier temps, nous avons mis en place une quantification des écoulements internes en condition normales (gravité terrestre) à l'aide d'un système de PTV. L'étude s'est focalisée sur l'écoulement au sein de gouttes de tétradécane "pures"ensemencées par des micro-billes en verre en guise de traceurs (caractérisées par leur très faible nombre de Stokes). Cette étude a permis de mettre en avant les motifs internes selon l'emplacement de la source de chaleur, notamment la présence de recirculations symétriques par rapport à l'axe verticale de la goutte (lorsque chauffée par le dessus), qui est une structure caractéristique des écoulements dominés par l'effet Marangoni dans la littérature. Par la suite, la contribution respective de l'effet Marangoni et de la convection thermogravitaire a été proposée à travers la caractérisation des nombres de Marangoni et de Rayleigh. Ces nombres sont calculés en prenant comme données d'entrée les gradients de températures internes mesurés dans le chapitre portant sur la LIF à deux couleurs, ainsi que les grandeurs physique du liquide en fonction de la température. Les résultats obtenus semblent en accord avec la littérature existante (section 4.2). Cette quantification, tend à confirmer que l'effet Marangoni semble piloter l'écoulement interne et prédomine sur la gravité.

Par ailleurs, les travaux concernant le développement d'un nouveau système expérimental pour l'étude de gouttes en condition de micro-gravité ont été présentés. Les différentes phases de développement ont été abordés et les résultats obtenus jusqu'à présent dans la tour de chute de Brèmes sont traités. Ainsi, l'étude des mouvements à l'intérieur de gouttes de n-tétradécane, de manière quantitative en laboratoire (à l'aide la PTV) et qualitative par le biais de l'expérience embarquée en condition de micro-gravité tendent à démontrer que l'écoulement à l'intérieur d'une goutte soumise à un flux de chaleur, dans les conditions présentées, est piloté essentiellement par les variations de tension de surface (effet Marangoni). Une estimation de la vitesse des particules traçant l'écoulement est réalisée, et les valeurs semblent de l'ordre de grandeur de celles mesurées à l'aide la PTV en laboratoire. Ce résultat tend à démontrer la prédominance de l'effet Marangoni. Enfin, le système expérimental développé au cours de ces travaux de thèse pourrait être amélioré afin d'approfondir l'étude des écoulements internes en environnement de micro-gravité.

Conclusion générale

La réduction de nos émissions de polluants, parmi lesquels ceux engendrés par la combustion de carburants, qu'ils soient fossiles ou d'origine biologique, est aujourd'hui plus que jamais une problématique cruciale à laquelle nous sommes confrontés. Malgré une tendance à l'électrification dans le domaine automobile notamment, il semble aujourd'hui difficilement envisageable de nous passer de combustibles liquides, notamment dans le cadre des transports aérien et naval ainsi que dans le domaine du spatial. Dans ce contexte, il est fondamental de continuer à chercher différents moyens d'optimiser nos systèmes de combustion existants et futurs.

C'est dans ce contexte que le travail présenté dans cet ouvrage s'est intéressé à l'étude de combustibles dits "innovants", à savoir des émulsions d'eau dans une phase continue de carburant. L'intérêt de ce type de combustible, au-delà de la diminution de l'émission de certaines espèces chimiques grâce à la présence d'eau, réside dans un phénomène appelé "micro-explosion". Ce phénomène, ayant une probabilité de réalisation plus ou moins grande selon les conditions, permet de fragmenter une goutte d'émulsion en un fin nuage aérosol, améliorant ainsi l'efficacité de la combustion. Bien que déjà étudiés depuis plusieurs années, les mécanismes permettant d'optimiser l'occurrence et la qualité de la micro-explosion demeurent encore, au moins partiellement incompris. Parmi eux, le comportement des micro-gouttes d'eau dispersées durant la phase de montée en température semble être un point clé dont l'étude de manière approfondie permettrait une bonne compréhension du phénomène de micro-explosion. En effet, il semblerait, que la déstabilisation de l'émulsion, résultant en une coalescence de la phase dispersée permette d'augmenter la probabilité d'une atomisation de la goutte "mère".

Les travaux présentés dans ce manuscrit se sont donc intéressés à l'étude expérimentale de gouttes d'émulsions et de combustibles purs durant leur phase de montée en température, afin de tenter d'apporter une meilleure compréhension de la dynamique interne de ces gouttes.

Dans le premier chapitre, une synthèse bibliographique de l'existant sur les émulsions, depuis leur formulation jusqu'au phénomène de micro-explosion et ses bénéfices sur la combustion est réalisée. La fluidodynamique interne des gouttes (convection interne, effet Marangoni) est également abordée de manière détaillée. Enfin, les diagnostics optiques existants et utilisés dans le domaine sont présentés, avec une attention particulière portée à ceux utilisés dans ces travaux.

Dans le Chapitre 2 l'étude du comportement de la phase dispersée d'une émulsion comportant 7%_m d'eau lors de sa phase de montée en température est réalisée. L'objectif principal de l'étude étant de comprendre si la coalescence est un promoteur (ou non) du phénomène de micro-explosion. Pour ce faire, un banc expérimental basé sur la Fluorescence Induite par Laser

(LIF) est mis en place, permettant d'isoler et de "traquer" les micro-gouttes d'eau à l'aide d'un traceur miscible seulement dans la phase aqueuse. Ainsi, il fut possible de mesurer la taille et la vitesse des gouttes d'eau à chaque instant. Dans un premier temps, une étude statistique du taux de micro-explosion en fonction du diamètre moyen de la phase dispersée est réalisée, et démontre que la coalescence tend à augmenter le taux de réalisation de micro-explosion. En effet la libération d'énergie lors de la vaporisation d'une goutte d'eau de grande taille permet de fragmenter plus efficacement la couche huileuse environnante, comparativement à des gouttes de plus petites tailles n'entraînant que des "puffings".

Dans un second temps, une étude des mouvements de la phase dispersée est réalisée et les vitesses et trajectoires des micro-gouttes d'eau charriées par l'écoulement interne de la phase continue sont mesurées par le biais de d'une mesure PTV. Le résultat principal ressortant de l'étude est que les gouttelettes de petites tailles ont tendance à être transportées par le brassage liquide de la phase continue et que dans cette configuration elles ne se rencontrent que très peu, limitant grandement la coalescence. Les gouttes de tailles plus grandes en revanche, ne sont que peu "charriées" par ce brassage et ont tendance à sédimenter en partie basse de la goutte d'émulsion, tendant à faciliter la coalescence et ainsi la micro-explosion.

Ainsi, il semble que pour cette composition, les émulsions finement dispersées auront tendance à peu coalescer, résultant en un taux de micro-explosion relativement faible, tandis que les émulsions plus grossières seront plus promptes à la coalescence, augmentant ainsi significativement le taux de micro-explosion.

Le Chapitre 3 s'est concentré sur la mesure du champ de température de la partie huileuse de l'émulsion. Pour ce faire, une méthode basée sur la Fluorescence Induite par Laser à 2 couleurs (LIF2c) a été développée et un nouveau traceur pour ce type d'expérimentation (BOD-ME Pyrromethene 567) a été entièrement caractérisé. L'objectif principal ici était de comprendre la configuration du champ de température à l'intérieur de la goutte en fonction de la position de la source de chaleur (ici radiative). 3 configurations ont été étudiées, à savoir la source de chaleur placée au-dessus, en dessous, et sur un côté de la goutte. Ces différentes dispositions permettent d'accentuer ou non la contribution radiative du chauffage, notamment par rapport à la partie convective. Il en ressort que, dans toutes les configurations, le champ de température à l'intérieur de la goutte est relativement homogène. Ainsi, il semble ne pas exister de réel profil de température et ce quelque soit la direction prise par rapport à la source de chauffage. La configuration expérimentale a permis des mesures avec une incertitude de $\pm 7^{\circ}C$, pour une gamme de température s'étendant de 20 à $250^{\circ}C$. Ainsi, une estimation du gradient maximal de température au sein de la goutte prenant en compte l'incertitude de mesure est réalisée, montrant que ce gradient était limité à une quinzaine de degrés.

Au cours du dernier chapitre, nous nous sommes intéressés plus en détails au brassage de liquide à l'intérieur d'une goutte de combustible lors de sa phase de montée en température. La littérature indiquait la coexistence de l'effet Marangoni, à savoir des mouvements de liquide induits par des gradients locaux de tension de surface eux-mêmes induits par des variations de température, et de la convection dite "thermogravitaire", à savoir un brassage provoqué par des variations locales de densité avec la température. Cependant, il subsistait un manque d'informations concernant la prédominance d'un des deux mécanismes par rapport à l'autre. C'est dans cette optique que la possibilité de réaliser des expériences en situation de micro-gravité s'est présentée, et qu'un nouveau dispositif expérimental miniaturisé ayant pour objectif la réalisation de ces expériences a été réalisée. Le développement du prototype est présenté au cours du Chapitre, et les premiers résultats obtenus au sein de la tour de chute de Brêmes sont présentés. Ces premiers résultats, bien que partiellement quantitatifs, car limités pour l'instant par le système

optique utilisé, semblent démontrer l'existence de mouvements internes relativement intenses en situation de micro-gravité, et tendent ainsi à montrer l'importance de l'effet Marangoni.

Afin d'apporter des éléments de preuve supplémentaires, une étude quantitative (également par PTV) de ces mouvements au sein d'une goutte de combustible pure ensemencée à l'aide de micro-billes en verre est réalisée. Des mesures de champs de vitesse internes en fonction de la position de la source de chaleur sont effectués. On y retrouve notamment l'existence de schémas caractéristiques de recirculations internes (vortex) selon la position de la source de chaleur, qui semblent démontrer une dominance de l'effet Marangoni sur la convection "thermogravitaire".

Afin de confirmer ces résultats, nous avons estimé les nombres adimensionnels de Marangoni et de Rayleigh interne lors de la montée en température de la goutte. Ces estimations tendent également à montrer que le brassage à l'intérieur d'une goutte semble être piloté en grande partie par l'effet Marangoni.

Les travaux de thèse présentés dans cet ouvrage peuvent servir comme base pour le développement d'activités futures à travers différents axes :

- L'amélioration du système expérimental développé en vue des expériences effectuées en micro-gravité. En effet, le prototype conçu étant nouveau, il pourrait être intéressant de capitaliser sur l'expérience acquise afin d'améliorer le système. Parmi les améliorations possibles, on citera notamment une amélioration du système d'injections des gouttes de manière à le rendre plus robuste et également l'amélioration du système de visualisation, notamment à l'aide de caméras plus rapides permettant une meilleure visualisation des mouvements internes à la goutte.
- Une modélisation numérique des phénomènes étudiés, afin de comparer les résultats expérimentaux existants avec des modèles, et pouvoir ainsi assoir les résultats obtenus.
- Un changement d'échelle des expériences, à savoir par exemple, le passage d'une goutte unique à un spray de gouttes. En effet, ici des gouttes millimétriques ont été étudiées afin de mettre en avant certains phénomènes. Cependant, les systèmes de combustions reposent sur la formation d'un nuage aérosol de gouttes (spray), ayant des dimensions plus petites (de l'ordre de la dizaine à la centaine de microns).

La micro-explosion pourrait néanmoins déjà être testée à plus grande échelle, car l'état des connaissances actuels montre clairement une amélioration de la qualité de la combustion générant une réduction de l'émission de polluants. De plus, des systèmes déjà existants tels que les micro-canaux, développées au LTeN, pourraient permettre une émulsification en continu en amont d'une chambre de combustion et ainsi se rapprocher de systèmes pouvant être utilisés à l'échelle industrielle.

Annexes

Impact de l'émulsification sur la réduction de polluants

La combustion de carburants d'origine fossile ou renouvelable entraîne une émission de polluants à la fois nombreux et nocifs pour la santé et l'environnement. Les principaux polluants émis lors d'une combustion sont les oxydes d'azote (NO_x), les oxydes de Carbone (CO et CO_2), les particules solides (suie) ainsi que les gaz non brûlés [144].

Ces molécules présentes dans l'air, s'oxydent selon divers schémas de réaction chimique. L'ajout d'une petite quantité d'eau à des combustibles purs peut permettre de réduire la production de certaines catégories de polluants (par réactions d'oxydo-réduction), et également d'améliorer le rendement de combustion (de par le phénomène physique de micro-explosion).

La section 4.8 traitera respectivement des aspects suivants :

- L'effet global de la présence d'eau.
- Les réactions chimiques liées à l'ajout d'eau à des combustibles entraînant une réduction de l'émission de certaines espèces polluantes.

Effet global de la présence d'eau sur les polluants

De nombreuses études portent sur la mesure quantitative des rejets de polluants en laboratoire, à la fois pour des carburants purs, mais également pour des émulsions diverses. La plupart des expériences se font en utilisant un moteur à combustion interne classique, couplé à des appareils de mesures permettant de mesurer les émissions de gaz ainsi que de particules solides [145].

Park et al.[146] ont pu observer une diminution de l'émission de NO_x et de particules solides dans le cas d'émulsions W/O par rapport à du diesel pur. Cette diminution s'explique par le fait que la présence d'eau qui va absorber, lors de son évaporation, une partie de la chaleur de la flamme, abaissant ainsi sa température, ce qui résultera en une diminution de l'émission de NO_x thermiques [146, 147] (les NO_x thermiques n'apparaissant que pour des températures $>$ à 1400°C). De plus, l'eau présente dans le mélange, lors de diverses réactions chimiques présentées ci-après, augmentera la production d'espèces appelées radicaux OH qui réagissent en oxydant les particules de CO, diminuant ainsi la quantité produite.

L'étude de Abdollahi et al.[148] a permis de comparer différents paramètres relatifs à la combustion pour 3 carburants différents : du biodiesel pur, une micro-émulsion de biodiesel, et une émulsion de taille standard de biodiesel. Comme dit précédemment, on observe bien une réduction des émissions de NO_x et de CO pour les émulsions par rapport au biodiesel pur. La réduction de NO_x est essentiellement d'origine thermique et provient de l'abaissement de la température

de la flamme due à la présence d'eau. L'augmentation des émissions de CO_2 dans le cas des émulsions est un signe d'une combustion plus complète (et entraîne donc une diminution du taux de CO et de particules solides, comme le démontre la figure 4.23).

Table 6
Percentage change of performance parameters and pollution of a diesel engine using nano-emulsion fuel.

Parameter	Relative to diesel fuel	Relative to emulsion fuel
Power	-4.49	4.84
Torque	-4.50	4.65
Co	-11.64	-4.36
Co ₂	7.17	0.7
Hc	-6.06	-2.15
No	-9.06	1.41
Soot	-10.27	-6.32

FIGURE 4.23 – comparaison de l'impact de l'émulsification sur les rejets de polluants [148]

Réactions chimiques lors d'une combustion en présence d'eau

La présence d'eau lors d'une combustion permet la promotion des radicaux hydroxiles OH. Ces radicaux sont les produits des réactions suivantes [149] :



Ces radicaux hydroxyles réagissent avec le monoxyde de carbone résultant en :



La présence d'eau promeut donc la génération de CO_2 au dépend de celle en CO (qui est un indicateur d'une combustion incomplète).

Comme dit précédemment, l'une des principales sources de polluants nocifs sont les oxydes d'azote NO_X . Ces molécules sont le résultat de l'oxydation de l'azote N_2 , présent dans l'air ambiant. En effet, à température ambiante, il peut être considéré comme inerte, mais à haute température, sa capacité à s'oxyder et à réagir avec d'autres molécules augmente.

On distingue trois types de formation de NO_X :

- Les NO_X thermiques, formés à partir d'une certaine température et selon les réactions suivantes [150] :



Ces réactions thermiques surviennent à très hautes températures, permettant ainsi d'obtenir l'énergie nécessaire pour casser la triple liaison d'un atome de N_2 . Van Der Lans et al. [151] estiment que la production de NO_X thermique devient significative au-delà de 1800 K (figure 4.24).

- Les NO_X prompts (ou précoces), générés de manière beaucoup plus rapide et transitoire que les NO_X thermiques, ont été pour la première fois observé par Fenimore en 1957 [152]. Cette fois l'azote N_2 ambiant réagit directement avec le combustible, et plus précisément les radicaux hydrocarbonés HC [153].
- Les NO_X provenant directement de la structure chimique du combustible.

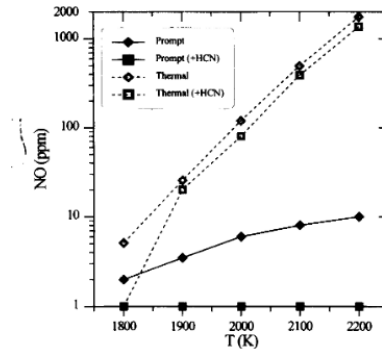


FIGURE 4.24 – influence de la température sur l'émission de NO_X prompts et thermiques [151]

L'ajout d'eau dans des carburants (émulsions) où bien directement dans la chambre de combustion (Direct Water Injection [154]), constitue une solution très intéressante pour diminuer la production de NO_X (figure 4.25). En effet l'addition d'eau permet de diminuer la température de flamme (et donc la production de NO_X thermiques), car la vaporisation nécessite un apport en énergie supplémentaire fournie par la flamme. Ayhan et al.[154] ont pu mesurer une diminution de la production de NO_X de 61% dans le cadre d'une injection directe d'eau dans un moteur à combustion interne.

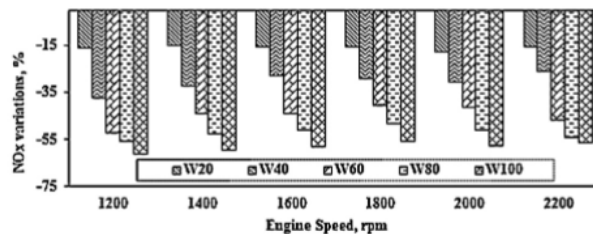


FIGURE 4.25 – Diminution de la production de NO_X selon la quantité d'eau injectée [154]

Dans le cadre des études présentées ici, la micro-explosion est un phénomène qui permet de promouvoir une combustion plus complète (diminution du taux de CO, des imbrulés), de par la diminution de la taille des gouttes générées. Cependant, la proportion d'eau doit être maîtrisée, car elle a tendance à réduire le pouvoir calorifique du carburant de base, résultant en une perte de puissance[155].

La présence d'eau est également responsable du phénomène de retard à l'allumage *ignition delay*. En effet, l'allumage d'une goutte de combustible se produit en deux étapes :

- Vaporisation d'une partie de la goutte de combustible une fois la goutte suffisamment chaude.
- Diffusion de la phase gazeuse et mélange dans l'air ambiant entraînant les réactions de combustion.

Cet allumage est dépendant des propriétés physiques du carburant, telles sa chaleur latente de vaporisation, la taille de la goutte, ou bien la capacité thermique. L'eau ajoutée, possède une enthalpie de changement d'état (ou chaleur latente de vaporisation) très souvent supérieure au combustible auquel elle est ajoutée [156, 144]). Une goutte d'émulsion aura donc un retard d'allumage par rapport au combustible pris seul (figure 4.26).

En contrepartie, la phase d'eau dispersée permettra de réduire la durée de vie de la goutte pendant sa combustion, si la micro-explosion apparaît, résultant en des gouttes de tailles réduites s'évaporant rapidement.

Un autre inconvénient pouvant être attribué à la présence d'eau dans des moteurs thermiques est l'éventuelle corrosion des cylindres. Cependant, certaines investigations tendent à venir contredire cette théorie, car l'eau constituant la phase dispersée de l'émulsion, elle se vaporisait sans venir au contact des parois du moteur [157].

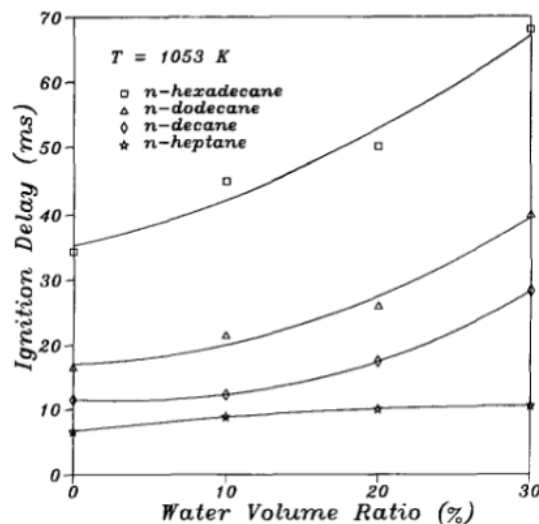


FIGURE 4.26 – Retard à l'allumage en fonction de la teneur en eau pour plusieurs alcanes. [156]

La présente section nous a permis de démontrer l'intérêt de l'émulsification des combustibles liquides à l'aide d'eau dans une optique de réduction de l'émission de polluants. Nous verrons, dans la section suivante, que le phénomène de micro-explosion, également induit par la présence d'eau dans une goutte de combustible, permet d'augmenter aussi l'efficacité de la combustion.

Rayonnement thermique et gouttes

Les travaux présentés dans ce manuscrit portant sur l'atomisation de gouttes d'émulsions W/O sous l'effet d'un chauffage radiatif, nous introduirons, dans la présente section, quelques unes des notions fondamentales sur le rayonnement électromagnétique et son interaction avec les liquides et notamment les gouttes. Cette partie n'a pas pour vocation à être exhaustive sur les transferts radiatifs dans les liquides et notamment sur toutes les considérations théoriques, mais simplement de fournir les notions de bases permettant une compréhension plus aisée des phénomènes présentés dans les prochains chapitres.

Introduction

Le rayonnement thermique est un mode de transfert de la chaleur reposant sur l'absorption et l'émission de photons lumineux par une particule. Il prend forme sur le spectre des longueurs

d'ondes qui s'étend des ultra-violets aux micro-ondes (figure 4.27). Ce mode de transfert est singulier puisque, par opposition aux modes de transferts par conduction et convection, il se produit également dans le vide.

Nous aborderons ici deux types d'interactions lumière particule :

- La diffusion de la lumière par une particule sphérique. C'est ce type d'interactions qui sont à l'origine des diagnostics optiques (notamment basés sur la fluorescence induite par laser) utilisés ci-après.
- L'absorption d'un rayonnement infrarouge par une goutte et la montée en température en résultant. En effet, un chauffage radiatif infrarouge est utilisé dans les bancs expérimentaux présents dans ce manuscrit.

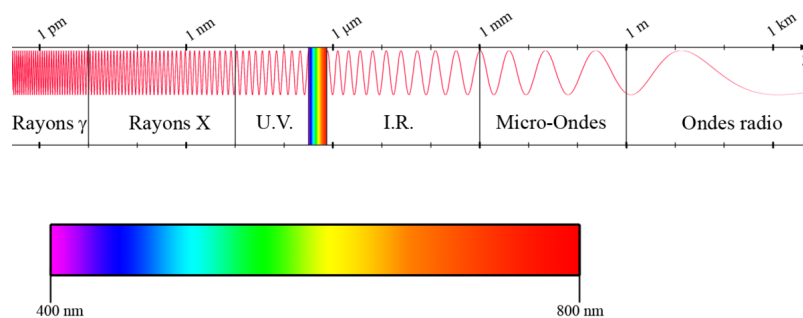


FIGURE 4.27 – Spectre électromagnétique

Les différents modes de diffusion de la lumière

Le rayonnement incident provenant d'une source lumineuse peut interagir avec une particule sphérique et être diffusée de trois manières distinctes, étant [158] :

- La diffusion élastique, qui concerne les cas où la lumière diffusée par la particule possède la même fréquence f_0 que la fréquence incidente.
- La diffusion quasi-élastique, qui intervient dès lors que la lumière est émise par une particule en mouvement. La fréquence f_1 émise par la particule est alors différente de f_0 . Ce phénomène est également connu sous le nom d'effet Doppler.
- La diffusion inélastique, qui subvient également dès lors que la fréquence émise par la particule est différente de la fréquence de la source incidente, mais cette fois-ci le décalage en fréquence n'est pas lié au mouvement de la particule, mais à des mécanismes quantiques donnant lieu à des phénomènes tels que la fluorescence.

Avant de détailler chacun de ces trois modes de diffusion de la lumière, il est important d'introduire une propriété fondamentale de la matière, à savoir l'indice de réfraction.

Indice de réfraction complexe

L'indice de réfraction n d'un milieu représente le comportement de la lumière (atténuation, déviation) au sein de ce milieu. Il est défini comme étant le rapport de la célérité de la lumière dans le vide divisé par la vitesse de la lumière dans ce milieu. La plupart des milieux ont un

indice de réfraction supérieur à 1, ce qui signifie que la vitesse de la lumière est atténuée dans le milieu. Souvent l'indice de réfraction complexe m lui est associé, tel que :

$$m = n + ik \quad (4.8)$$

Avec n la partie réelle de l'indice de réfraction présentée plus haut et k la partie imaginaire, qui traduit l'atténuation de la lumière pénétrant le matériau par absorption. k peut être simplement relié au **coefficient** d'absorption (grandeur macroscopique) par la relation suivante :

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} \quad (4.9)$$

Où λ est la longueur d'onde de la lumière incidente k l'indice d'absorption et α le coefficient d'absorption. La figure 4.28 montre les indices de réfraction et d'absorption de l'eau dans la

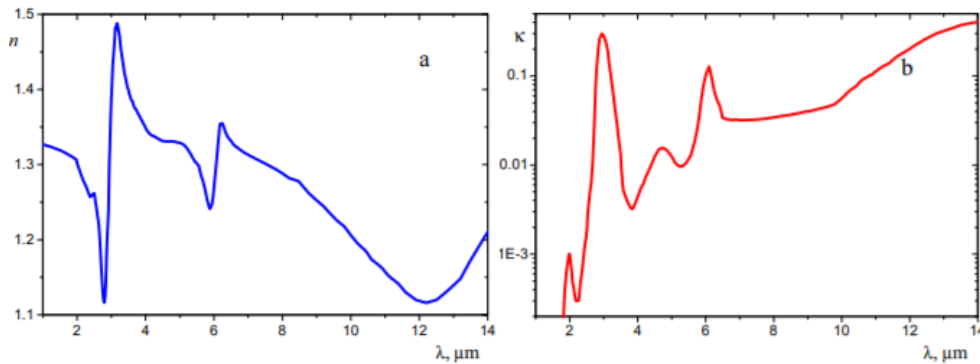


FIGURE 4.28 – Indice de réfraction n (Gauche) et d'absorption k (Droite) de l'eau dans le domaine du proche infrarouge[159]

bande de longueur d'onde [1-14] μm . C'est cette gamme de longueur d'onde qui sera utilisée dans les expérimentations présentées ci-après.

Diffusion élastique

Comme explicité plus haut, la diffusion élastique de la lumière par une particule signifie que la fréquence de la lumière diffusée est égale à la fréquence du faisceau incident à la particule. Les travaux de Rayleigh ont premièrement porté sur la diffusion élastique de la lumière par une particule, dont la taille est faible devant la longueur d'onde du faisceau incident. Dès lors, L'intensité lumineuse diffusée, déduite à partir des équations de Maxwell sur l'électromagnétique est alors donnée par la formule suivante :

$$I_{diff} = \frac{16\pi^4 a^6}{r^2 \lambda^4} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)^2 (\sin^2 \phi + \cos^2 \phi \cos^2 \theta) I_0 \quad (4.10)$$

I_{diff} et I_0 étant respectivement les rayonnements diffusés et incidents, λ la longueur d'onde, ϕ et θ les angles de diffusion et azimutal respectivement, et m le ratio des indices de réfraction ; une propriété de la matière présentée section 4.8.

Il est ensuite possible de calculer l'intensité de la lumière diffusée par un certain nombre de particules N , donné par l'équation :

$$I_{diff_{tot}} = \frac{9N}{2} \left(\frac{\pi V}{r \lambda^2} \right)^2 \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)^2 (1 + \cos^2 \theta) I_0 \quad (4.11)$$

La théorie de Rayleigh n'étant valide que pour des particules dont le paramètre de taille suivant est respecté :

$$x_d = \frac{2\pi R_d}{\lambda} \ll 1 \quad (4.12)$$

Lorenz (1890), puis Mie (1908) et Debye (1909) se sont par la suite attelés à étendre ces résultats pour des particules de toutes tailles à travers la théorie de Lorenz-Mie se basant sur la résolution des équations de Maxwell (le développement ne sera pas présenté dans cet ouvrage).

Diffusion inélastique

La diffusion inélastique, se produit dès lors que la fréquence de la lumière ré-émise par la particule est différente de la fréquence lumineuse absorbée par celle-ci. Ce mécanisme est à la base de phénomènes tels la fluorescence, ayant donné naissance à des méthodes de diagnostics optiques tels que la Fluorescence Induite par Laser (LIF). Cette méthode étant utilisée dans cet ouvrage, nous abordons ici plus en détails le principe physique derrière la diffusion inélastique.

Lorsque une molécule fluorescente absorbe un photon, elle voit son niveau énergétique augmenter. Le retour de cette molécule à son état de base se produit par l'intermédiaire de l'émission d'un photon lumineux, qui peut être spontané où bien stimulé (cas des Lasers). Dans le cas de la fluorescence, on parle de désexcitation par émission spontanée, qui se produit dans un laps de temps de l'ordre de 10^{-9} secondes. Le diagramme De Perrin-Jablonski (figure 4.29) représente les différents modes de transition d'une molécule fluorescente. L'état S_0 représente l'état dit fondamental, et les états $S_0 \dots S_n$ les états excités. Comme on le voit sur la figure 4.29, le retour de l'état S_1 à l'état fondamental S_0 par fluorescence se fait à une longueur d'onde d'émission le plus souvent différente de la longueur d'onde d'excitation (ce décalage en longueur d'onde est connu sous le nom de décalage de Stokes si $\lambda_{\text{émission}} > \lambda_{\text{absorption}}$, et décalage d'anti-Stokes si $\lambda_{\text{émission}} < \lambda_{\text{absorption}}$). C'est cette propriété qui est à la base de la Fluorescence Induite par Laser.

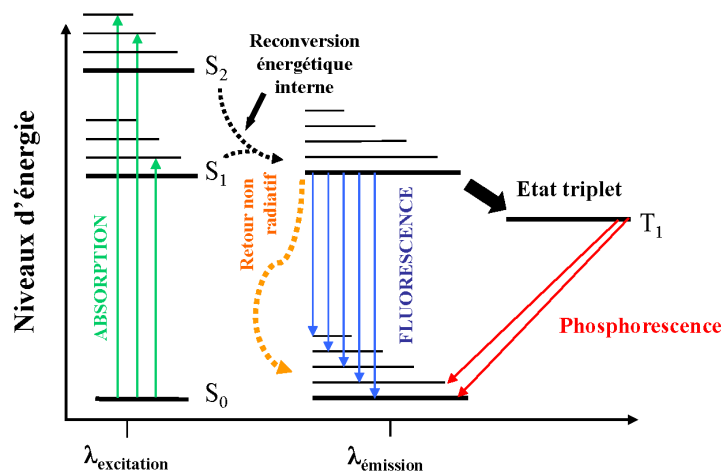


FIGURE 4.29 – Diagramme de Perrin-Jablonski représentant les transitions inter-état d'une particule

Diffusion quasi-élastique

Enfin, le dernier mode de diffusion de la lumière, appelé diffusion quasi-élastique, décrit le cas pour lequel la distance entre la particule et le capteur/ où l'observateur varie au cours du temps [158].

Dans le cas d'une particule fixe et d'un observateur mobile, le décalage en fréquence (effet Doppler simple) est donné par la relation suivante :

$$\Delta\nu = \frac{V}{\lambda} \cos \theta \quad (4.13)$$

Avec V la vitesse de l'observateur, λ la fréquence des ondes se propageant depuis la particule et $\cos \theta$ l'angle entre le vecteur vitesse et la droite le reliant à la particule.

Or, dans le cas des montages expérimentaux mesurant la vitesse d'une particule en mouvement, on utilise un double effet Doppler. En effet, il y'a un premier décalage entre la source et la particule en mouvement, combiné à un deuxième décalage cette fois-ci entre la particule en mouvement et le capteur/observateur. Dans ce cas, le décalage en fréquence est donné par la relation suivante :

$$\frac{\nu_2 - \nu}{\nu} = 2 \frac{V}{c} \cos \beta \sin \frac{\alpha}{2} \quad (4.14)$$

Où ici, ν et ν_2 sont les fréquences respectivement émise par la source et reçue par le capteur, V la vitesse de la particule, c la célérité de la lumière dans le milieu, et $\beta = (\theta_1 - \theta_2)/2$ et α les angles représentés sur la figure 4.30.

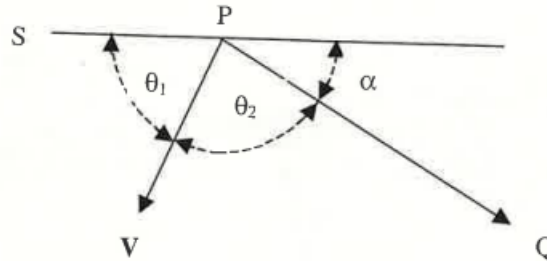


FIGURE 4.30 – Double effet Doppler - Application pour la LDA [158]

Absorption du rayonnement par une goutte

La diffusion de la lumière par une particule sphérique, dont la description la plus complète est donnée par la théorie de Lorenz-Mie nous permet d'identifier la redistribution angulaire d'un rayonnement incident après son interaction avec ladite particule. C'est sur cette base qu'on pu se développer des techniques de diagnostics optiques permettant d'étudier des gouttes et des sprays, à l'aide de lasers notamment. Dans un cas idéal sans atténuation de la puissance incidente (par absorption), la diffusion serait dite conservative. Nous allons voir, dans cette section, comment quantifier à l'aide de modèles simplifiés l'absorption du rayonnement par une goutte. Nous nous intéresserons ici, au cas de gouttes de combustibles type n-décane, n-tétradecane (ainsi que diesel de par l'abondance des études dans la littérature) dans la zone des infrarouges (typique des chambres de combustion.)

L'équation générale régissant l'absorption du flux radiatif par une goutte est la suivante :

$$Q_{abs} = \pi r_d^2 \int_0^\infty Q_a I_\lambda^0 d\lambda \quad (4.15)$$

Où r_d est le rayon de la goutte, Q_a l'efficacité d'absorption et I_λ^0 le flux incident. L'intégration sur tout le spectre où bien sur une bande de longueur d'onde permet de remonter au flux total absorbé. Le calcul de Q_a découle en toute rigueur du modèle de Mie. Cependant,

La difficulté inhérente à son calcul est la dépendance de Q_a à la fois au paramètre de taille d (et donc implicitement à la longueur d'onde et à la taille de la goutte) ainsi qu'à l'indice de réfraction complexe. Il a donc été nécessaire de développer des modèles simplifiés. Dombrovsky et al. [160, 161, 162] ont grandement contribué à l'élaboration de modèles analytique approchés permettant de quantifier cette grandeur, avec comme nous le verrons une correspondance très satisfaisante avec les résultats théoriques dans le domaine d'étude qui nous intéresse (le proche infrarouge pour des gouttes dont le rayon est compris entre 20 et 1000 μm).

- Calcul de Q_a selon l'hypothèse du corps gris :
 Cette hypothèse signifie que les propriétés physiques (émissivité et absorptivité notamment) dépendent uniquement de la température. Or, il s'avère que cette approximation peut s'avérer très éloignée de la réalité, notamment pour les liquides dont les propriétés dépendent très fortement de la longueur d'onde. Par exemple, la figure 4.31, montre une très forte dépendance de l'indice d'absorption du diesel à la longueur d'onde, avec une variation de plus de 4 ordres de grandeur dans la gamme [1-4] μm . L'eau présente des propriétés similaires dans cette plage, ce qui contribue à rendre cette hypothèse inapplicable aux problématiques qui nous intéressent (absorption du rayonnement infrarouge par une goutte d'émulsion sur une plage de longueur d'ondes située dans le proche infrarouge).

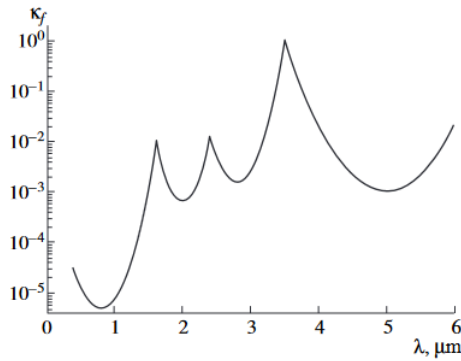


FIGURE 4.31 – Évolution de l'indice d'absorption du diesel en fonction de la longueur d'onde [160]

- Approximation de la théorie de Mie par modèle analytique simplifié :
 La résolution des équations de Maxwell, peut être coûteuse en temps de calcul pour les modèles numériques, et sa résolution analytique est parfois impossible. De plus, dans la plupart des approches pratiques de type ingénieries, nous ne nous intéressons pas directement à la distribution spatiale de l'absorption du rayonnement par la goutte, mais bien par le flux total absorbé par cette goutte. C'est là que présente tout l'intérêt des modèles approchés et du calcul coefficient d'absorption global à l'échelle de la goutte. Par exemple, Dombrovsky et al. [160] ont démontré qu'il est possible d'approcher le coefficient d'absorption, sous certaines conditions, par la formule suivante :

$$Q_a = \frac{4n}{(1+n)^2} [1 - \exp(-4kx_d)] \quad (4.16)$$

Pour que cette approximation soit valide, il est nécessaire de se situer dans le domaine de *l'optique géométrique*. Dans le cadre de cette approximation, l'aspect ondulatoire du champ électro-magnétique est négligé, de sorte que la lumière est considérée comme un ensemble de rayons dont la propagation peut être décrite géométriquement, à l'aide des lois de Snell-Descartes sur la réflexion et la réfraction.

Cette hypothèse est valide dès lors que le paramètre de taille suivant est respecté [88, 158] :

$$x_d = \frac{2\pi R_d}{\lambda} \gg 1 \quad (4.17)$$

Si l'on calcule le paramètre de taille x_d (équation 4.17) pour des gouttes se situant entre 20 et 500 μm (taille typique des gouttes composant l'émulsion), avec des longueurs d'onde de radiation se situant dans le proche infrarouge $[1-12]\mu\text{m}$ on observe que $10 < x_\lambda < 600$, ce qui nous indique que nous nous situons dans la zone couverte par l'approximation de l'optique géométrique.

Dombrovsky [160], et Dombrovsky et al. [163] montrent une correspondance très satisfaisante pour le calcul du coefficient d'absorption entre le modèle approché et celui calculé à partir de la théorie de Mie, pour une goutte de diesel dans le proche infrarouge, comme le démontre la figure 4.32.

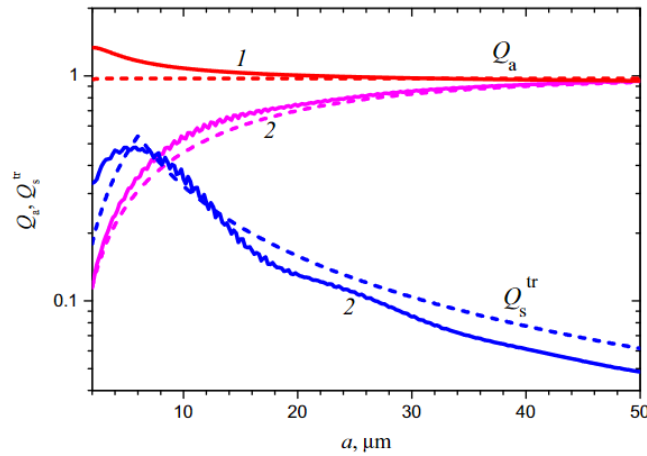


FIGURE 4.32 – Comparaison Q_a , Q_{tr} entre la théorie de Mie (ligne continue) et l'approximation présentée plus haut (ligne pointillée) [163]

Cas d'un groupe de gouttes monodisperse

Dans le cas d'une émulsion, nous ne nous situons plus dans le cas de l'interaction entre un rayonnement et une goutte unique, mais dans le cadre plus complexe d'un ensemble de gouttelettes d'eau dispersées dans une goutte d'huile. Nous sommes donc en présence de deux milieux aux propriétés optiques différentes (phase aqueuse et phase huileuse), ainsi que, au sein même de la phase dispersée, d'une distribution en taille des gouttelettes plus ou moins large.

Ce type de configuration rend la modélisation des transferts radiatifs particulièrement ardue, et nécessite d'être modélisé numériquement. Néanmoins, il est possible d'obtenir une solution analytique dans le cas d'un ensemble de gouttes monodisperses (dont toutes les gouttes ont la même taille). Cette modélisation est très utilisée dans le cadre de l'étude des incendies (absorption du rayonnement thermique de la flamme par un nuage de gouttes d'eau) [163].

L'hypothèse principale derrière cette approximation est que le rayonnement diffusé par une des gouttelettes de l'ensemble est indépendant du rayonnement diffusé par les autres. En d'autres termes, chaque gouttelette absorbe et diffuse le rayonnement comme si elle était seule, ce qui simplifie grandement les calculs. Dans ce cas de figure, on définit un nouveau coefficient d'absorption Q'_a , de la manière suivante :

$$Q'_a = 0.75 \frac{f_v}{a_{32}} Q_a \quad (4.18)$$

Où f_v est la fraction volumique, et a_{32} le rayon moyen de Sauter. Par la suite, le flux radiatif absorbé peut être recalculé à partir de l'équation 4.15 en remplaçant Q_a par Q'_a .

Effet de bord de l'interaction lumière-goutte

Lorsque qu'une goutte sphérique interagit avec un rayonnement lumineux, un effet lié à la sphéricité de la goutte et similaire à celui d'une lentille concentrant la lumière se produit. La courbure à l'interface liquide-milieu ambiant peut créer un effet de concentration du rayonnement incident à l'intérieur de la goutte (on parle alors de *self-focusing effect*). Plus précisément, c'est la part du rayonnement qui n'a pas été absorbé lors de sa traversée de la goutte qui sera concentrée. Cet effet peut donc créer un point chaud à l'intérieur de la goutte, en plus de la partie absorbée en amont. Jang et Kim [164, 165] ont étudié l'atomisation de gouttes de n-dodécane pure et émulsionnées sous l'influence d'un laser pulsé. Ils ont pu démontrer cet effet de concentration du rayonnement au sein de la goutte d'émulsion, schématisé sur la figure 4.33. Le mode (a) est observé pour une goutte de carburant pure, tandis que les modes (b) et (c) sont observés pour des émulsions. Dès lors que la fraction massique d'eau dépasse un certain seuil (12.9% dans ce cas), l'effet de concentration ne se produit plus car l'eau se comporte de manière plus absorbante que le n-dodécane, et la quasi-totalité du rayon incident se retrouve absorbée. La composition du mélange de l'émulsion et la répartition de la phase dispersée influent donc sur la valeur de l'indice de réfraction du mélange, et sur le comportement plus ou moins absorbant en résultant. Ce phénomène est introduit car il sera rencontré lors des travaux expérimentaux présentés dans cet ouvrage.

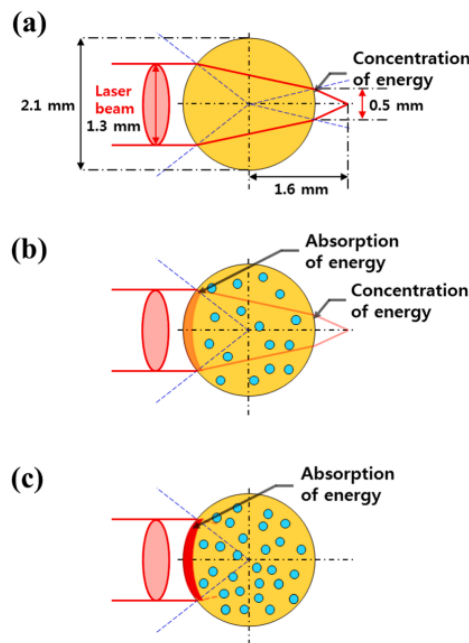


FIGURE 4.33 – représentation de l'effet de concentration du rayonnement incident au sein d'une goutte d'émulsion [165]

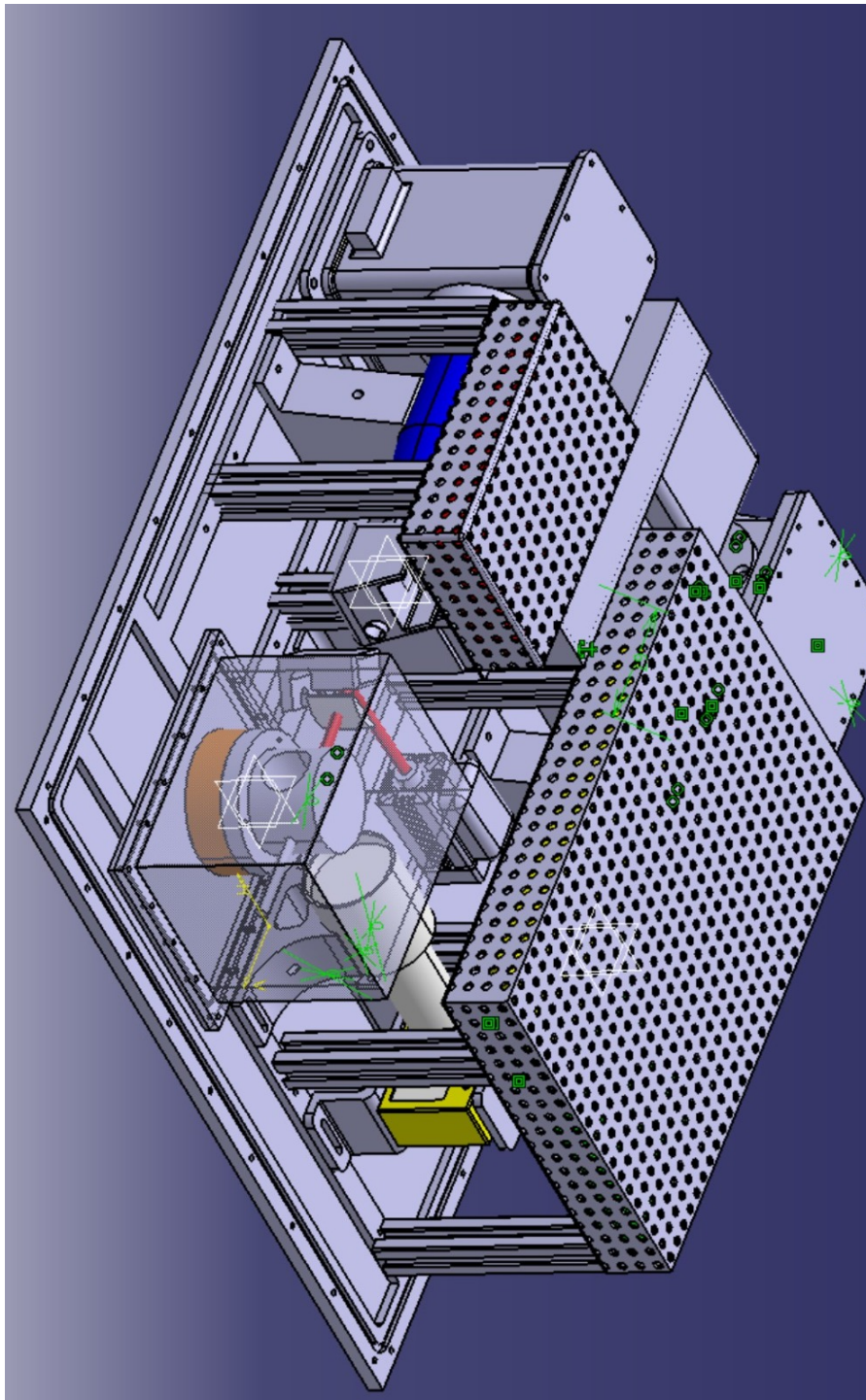


FIGURE 4.34 – Vue d'ensemble du système expérimental

Publications de l'auteur

Publications dans des revues à comité de lecture :

- T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli et J. Bellettre. *Does internal convection promote micro-explosion of w/o emulsion droplets?* Atomization and Sprays, Volume 33, pp 15-34, 2023 Issue 9, In press, DOI : 10.1615/AtomizSpr.2023047776, ⟨hal-04157037v2⟩.

Communications dans des actes de Congrès :

- T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli et J. Bellettre. *Experimental study of temperature gradient inside an IR heated oil droplet by the use of Planar 2cLIF*, ICLASS 2024, 16th Triennial International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Shanghai, China
- R. Calabria, F. Catapano, G. Meccariello, Thomas Naudin, B. Sgammato, et al *Studying droplets in microgravity*, 32nd European Conference on Liquid Atomization & Spray Systems (ILASS Europe 2023), Sep 2023, Napoli, Italy. fhal-04207695f
- T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli et J. Bellettre. *Planar 2 Colors-LIF technique applied to temperature measurements within hydrocarbon droplets*, 32nd European Conference on Liquid Atomization & Spray Systems (ILASS Europe 2023), Sep 2023, Napoli, Italy. ⟨hal-04208088⟩
- T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli et J. Bellettre. *Experimental study of water-in-oil droplet micro-explosion using LIF measurements : effect of radiative heating configuration*, ILASS-Americas 32nd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, May 22-25, 2022.

Autres :

- Poster Work-In-progress, 12th Mediterranean Combustion Symposium, Luxor, Egypt, 23-26/1/2023.
- Poster Work-In-progress, Congrès annuel Société Française de Thermique, Valenciennes, 31 mai-2 juin 2022.

Bibliographie

- [1] Commissariat général au développement durable. Chiffres clés du climat france, europe et monde, edition 2021.
- [2] Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat. *Sixième rapport d'évaluation du GIEC*.
- [3] F.Y. Hagos, A.R.A. Aziz, and I.M. Tan. Water-in-diesel emulsion and its micro-explosion phenomenon-review. *communication software and networks(ICCSN, 3rd International Conference on IEE*, 2011.
- [4] M. Senthil Kumar, A. Kerihuel, J. Bellettre, and M. Tazerout. Effect of water and methanol fractions on the performance of a ci engine using animal fat emulsions as fuel. *Proc. IMechE Part A : J. Power and Energy*, 219 :583–592, 2005.
- [5] D. Tarlet. *Contribution à la combustion des émulsions de l'eau dans le fioul lourd*. PhD thesis, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008.
- [6] E. Mura. *Contribution à l'étude de la micro-explosion d'une goutte d'émulsion d'eau dans l'huile : impact de la granulométrie de la phase dispersée*. PhD thesis, Université de Nantes, 2011.
- [7] O. Moussa. *Etude, par diagnostics optiques, des conditions menant à la micro-explosion d'une goutte d'émulsion eau/huile*. PhD thesis, Université de Nantes, 2019.
- [8] D. Antonov, M. Piskunov, P. Strizhak, D. Tarlet, and J. Bellettre. Dispersed phase structure and micro-explosion behavior under different schemes of water-fuel droplets heating. *Fuels*, 259, 2020.
- [9] K. Kimoto, Y. Owashi, and Y. Omae. The vaporizing behavior of the fuel droplet of water-in-oil emulsions on the hot surface. *Bulletin of JSME*, 29, 1986.
- [10] E. Mura, C. Josset, K. Loubar, G. Huchet, and J. Bellettre. Effect of dispersed water droplets in micro-explosion phenomenon for water in oil emulsion. *Atomization and Sprays*, 20 :791–799, 2010.
- [11] C. Virgilio. *Caractérisation du mouillage de surfaces micro/nanostructurées par méthode acoustique haute fréquence : application aux traitements humides dans l'industrie de la microélectronique*. PhD thesis, Université de Valenciennes et du Hainaut Cambresis, 2017.
- [12] P-G De Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. 2005.
- [13] L. Eötvös. Ueber den zusammenhang der oberflächenspannung der flüssigkeiten mit ihrem molecularvolumen. *Annalen der Physik*, 263 :448–459, 1886.

-
- [14] A.B Chhetri and K.C Watts. Surface tension of petro-diesel, canola, jatropha and soapnut biodiesel fuels at elevated temperatures and pressures. *Fuel*, 104 :704–710, 2013.
- [15] Gyu Min Jang and Nam Il Kim. Surface tension, light absorbance, and effective viscosity of single droplets of water-emulsified n-decane, n-dodecane, and n-hexadecane. *Fuel*, 240, 2019.
- [16] Y. Deng, C. Peng, M. Dai, D. Lin, I. Ali, S.S. Alhewairini, X. Zheng, G. Chen, J. Li, and I. Naz. Recent development of super-wettable materials and their applications in oil-water separation. *Journal of Cleaner Production*, 266, 2020.
- [17] D. Quéré. Rough ideas on wetting. *Physica A*, 313 :32–46, 2002.
- [18] M. Xu and L. Xu, Q. Lin, X. Pei, J. Jiang, H. Zhu, Z. Cui, and B.P. Binks. Switchable oil-in-water emulsions stabilized by like-charged surfactants and particles at very low concentrations. *langmuir*, 35, 2019.
- [19] F. Springinsfeld. *Mécanismes de gélification et comportement rhéologique d'émulsions d'alcane partiellement cristallisés*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris, 2009.
- [20] Imperial Chemical Industries America Inc. The hlb system - a time saving guide to emulsifier selection.
- [21] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, and J. Bellettre. Parametric study of the micro-explosion occurrence of w/o emulsions. *International Journal of Thermal Sciences*, 133 :90–97, 2018.
- [22] L. Korson, W. Drost-Hansen, and F.J. Millero. Viscosity of water at various temperatures. *The Journal of Physical Chemistry*, 73 :pages 34–39, 1969.
- [23] G.I Taylor. The viscosity of a fluid containing small drops of another liquid. *The Royal Society Publishing*, 138 :41–48, 1932.
- [24] H.P. Ronningsen. Correlations for predicting viscosity of w/o emulsions based on north sea crude. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 38(number), 1995.
- [25] E.G. Richardson. The formation and flow of emulsion. *Journal of Colloids Sciences*, 5 :404–413, 1950.
- [26] M.A. Farah, R.C. Oliveira, J. Naveas Caldas, and K. Rajagopal. Viscosity of water-in-oil emulsions : Variation with temperature and water volume fraction. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 48 :169–184, 2005.
- [27] A. Belkadi. *Étude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continu de biodiesels émulsionnés*. PhD thesis, Université de Nantes, 2015.
- [28] A. Taha, E. Ahmed, A. Ismaiel, M. Ashokkumar, X. Xu, S. Pan, and H. Hu. Ultrasonic emulsification : An overview on the preparation of different emulsifiers-stabilized emulsions. *Trends in Food Science and Technology*, 105, 2020.
- [29] F. Salehi. Physico-chemical and rheological properties of fruit and vegetable juices as affected by high pressure homogenization : A review. *International Journal of Food Properties*, 23, 2020.
- [30] E.A. Melo-Espinosa, J. Bellettre, D. Tarlet, A. Montillet, R. Piloto-Rodríguez, and S. Verhelst. Experimental investigation of emulsified fuels produced with a micro-channel emulsifier : Puffing and micro-explosion analyses. *Fuel*, 219, 2018.

-
- [31] S. Van Der Graaf, C.G.P.H. Schröen, and R.M. Boom. Preparation of double emulsions by membrane emulsification :a review. *Journal of Membrane Science*, 251, 2005.
- [32] C-Y. Lin and K-H. Wang. The fuel properties of three-phase emulsions as an alternative fuel for diesel engines. *Fuel*, 82, 2003.
- [33] A. Guptar, B. Eral, T. Hatton., and P. Doyle. Nanoemulsions : Formation, properties and applications. *Soft Matter*, 12, 02 2016.
- [34] R.C. Chevalier, A. Gomes, and R.L. Cunha. Role of aqueous phase composition and hydrophilic emulsifier type on the stability of w/o/w emulsions. *Food Research International*, 156, 2022.
- [35] A. Gomes, A.L Rodrigues Costa, and R. Lopes Cunha. Impact of oil type and wpi/tween 80 ratio at the oil-water interface : Adsorption, interfacial rheology and emulsion features. *Colloids and Surfaces B : Biointerfaces*, 164 :272–280, 2018.
- [36] S. Ariyaprakai and S.R. Dungan. Influence of surfactant structure on the contribution of micelles to ostwaldripening in oil-in-water emulsions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 343, 2010.
- [37] I.M. Lifshitz and V.V. Slyozov. The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 19, 1961.
- [38] J. Lu, C. M. Corvalan, Y.M.J. Chew, and J-Y. Huang. Coalescence of small bubbles with surfactants. *Chemical Engineering Science*, 196, 2019.
- [39] R. V. Birikh, M. O. Denisova, and K. G. Kostare. The development of marangoni convection induced by local addition of a surfactant. *Fluid Dynamics*, 46 :890–900, 2011.
- [40] D. Tam, V.V. Arnim, G.H. McKinley, and A.E. Hosoi. Marangoni convection in droplets on superhydrophobic surfaces. *Journal of Fluid Mechanics*, 624, 2009.
- [41] J. Chen, J. Wang, Z. Deng, X. Liu, and Y. Chen. Experimental study on rayleigh-benard-marangoni convection characteristics in a droplet during mass transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 172, 2021.
- [42] A.Y. Gelfgat. Different modes of rayleigh–benard instability in two- and three-dimensional rectangular enclosures. *Journal of Computational Physics*, 156, 1999.
- [43] C. Diddens, Y. Li, and D. Lohse. Competing marangoni and rayleigh convection in evaporating binary droplets. *Journal of Fluid Mechanics*, 914, 2021.
- [44] D.K. Mandal and S. Bakshi. Internal circulation in a single droplet evaporating in a closed chamber. *International Journal of Multiphase Flow*, 42 :42–51, 2012.
- [45] S.M Syed Masharuddin, Z.A Abdul Karim, M.a Meor Said, N. Hazira Amran, and Mhadi A. Ismael. The evolution of a single droplet water-in-palm oil-derived biodiesel emulsion leading to micro-explosion. *Alexandria Engineering Journal*, 61, 2022.
- [46] V.M. Ivanov and P.I. Nefedov. Experimental investigation of the combustion process of natural and emulsified liquid fuels. *NASA Technical Translation TTF-258*, pages 703–708, 1965.
- [47] T. Kadota and H. Yamasaki. Recent advances in the combustion of water fuel emulsion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 28 :385–404, 2002.

-
- [48] D.V. Antonov, R.S. Volkov, and P.A. Strizhak. An explosive disintegration of heated fuel droplets with adding water. *Chemical Engineering Research and Design*, 2018.
- [49] D. Khatri and R. Goyal. Performance, emission and combustion characteristics of water dieselemulsified fuel for diesel engine : A review. *Materials Today : Proceedings*, 28, 2020.
- [50] R.S.Volkov and P.A.Strizhak. Using planar laser induced fluorescence to explore the mechanism of the explosive disintegration of water emulsion droplets exposed to intense heating. *Internal Journal of Thermal Sciences*, 127 :126–141, 2018.
- [51] D. Tarlet, C. Allouis, and J. Bellettre. The balance between surface and kinetic energies within an optimal micro-explosion. *International Journal of Thermal Sciences*, 107 :179–183, 2016.
- [52] D. Tarlet, E. Mura, C. Josset, J. Bellettre, C. Allouis, and P. Massoli. Distribution of thermal energy of child-droplets issued from an optimalmicro-explosion. *International Journal of Heat and Mass transfer*, 77, 2014.
- [53] R.E. Apfel. The tensile strength of liquids. *Scientific American*, pages 58–71, 1972.
- [54] J.E. Sheperd and B. Sturtevant. Rapid evaporation at the superheat limit. *Journal of Fluids Mechanics*, 121, 1982.
- [55] D. Tarlet, C. Josset, and J. Bellettre. Comparison between unique and coalesced water drops in micro-explosions scanned by differential calorimetry. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 95 :689–692, 2016.
- [56] M. Mekki-Azouzi. *Etude expérimentale de l'eau et de solutions aqueuses métastables : implications pour le milieu naturel*. PhD thesis, Université d'orléans, 2010.
- [57] P.V. Skripov and A.P. Skripov. The phenomenon of superheat of liquids : In memory of vladimir p. skripov. *International Journal of Thermophysics*, 31, 2010.
- [58] P. Papon and J. Leblond. *Thermodynamique des Etats de la matière*. 1990.
- [59] D.C.K. Rao and S. Basu. Atomization modes for levitating emulsified droplets undergoing phase change. *Experiments in Fluids*, 61, 2020.
- [60] S.S. Sazhin, T. Bar-Kohany, Z. Nissar, D. Antonov, P.A. Strizhak, and O.D. Rybdylov. A new approach to modelling micro-explosions in composite droplets. *International Journal of Heat and Mass transfer*, 161, 2020.
- [61] D.V. Antonov, R.S. Volkov, R.M. Fedorenko, P.A. Strizhak, G. Castanet, and S.S. Sazhin. Temperature measurements in a string of three closely spaced droplets before the start of puffing/micro-explosion : Experimental results and modelling. *International Journal of Heat and Mass transfer*, 181, 2021.
- [62] F.F. Abraham. *Homogenous nucleation theory*. 1974.
- [63] H-Z. Sheng, L. Chen, and C-K. Wu. The droplet group micro-explosions in w/o diesel fuel emulsion sprays. *SAE Transactions-Journal of Engines*, 1995.
- [64] Y. Iida, K. Okuyama, and K. Sakurai. Boiling nucleation on a very small film heater subjected to extremely rapid heating. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 37 :2771–2780, 1994.
- [65] C.T. Advesian. Bubble growth in superheated liquid droplets. *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, 3, 1986.

-
- [66] X. Zhang, T. li, B. Wang, and Y. Wei. Superheat limit and micro-explosion in droplets of hydrous ethanol-diesel emulsions at atmospheric pressure and diesel-like conditions. *Energy*, 2018.
- [67] D.V. Antonov, G.V.Kuznetsov, P.A. Strizhak, and R.M. Fedorenko. Micro-explosion of droplets containing liquids with different viscosity, interfacial and surface tension. *Chemical Engineering Research and Design*, 158 :129–147, 2020.
- [68] Y. Morozumi and Y. Saito. Effect of physical properties on micro-explosion occurrence in water-in-oil emulsion droplets. *Energy Fuels*, 24, 2010.
- [69] H. Yamasaki, M. Tsue, and T. Kadota. Combustion and evaporation of an emulsified fuel (effect of fuel properties on the onset of microexplosion. *International Symposium on Combustion and Energy Utilization*, 1993.
- [70] D.V. Antonov, M.V. Piskunov, and P.A. Strizhak. Breakup and explosion of droplet of two immiscible fluids and emulsions. *International Journal of Thermal Sciences*, 142, 2019.
- [71] M.Y. Khan, Z.A. Abdul Karim, A.R.A. Aziz, and I.M. Tan. Experimental investigation of microexplosion occurrence in water in diesel emulsion droplets during the leidenfrost effect. *Energy Fuels*, 28, 2014.
- [72] Y. Suzuki, T. Harada, H. Watanabe, M. Shoji, Y. Matsushita, H. Aoki, and T. Miura. Visualization of aggregation process of dispersed water droplets and the effect of aggregation on secondary atomization of emulsified fuel droplets. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33 :2063–2070, 2011.
- [73] M.A. Ismael, A.R.A. Aziz M.R. Heikal, , and C. Crua. The effect of fuel injection equipment of water-in-diesel emulsions on micro-explosion behaviour. *energies*, 11 :1–13, 2018.
- [74] E. Mura, P. Massoli, C. Josset, K. Loubar, and J. Bellettre. Study of the micro-explosion temperature of water in oil emulsion droplets during the leidenfrost effect. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 43, 2012.
- [75] S. Shen, K. Sun, Z. Che, T. Wang, M. Jia, and J. Cai. Mechanism of micro-explosion of water-in-oil emulsified fuel droplet and its effect on soot generation. *Energy*, 191, January 2020.
- [76] E.H. Melo-Espinosa, J. Bellettre, D. Tarlet, A. Montillet, R. Piloto-Rodriguez, and S. Verhelst. Experimental investigation of emulsified fuels produced with a micro-channel emulsifier : Puffing and micro-explosion analyses. *Fuel*, 219 :320–813, 2018.
- [77] D.V. Antonov, M.V. Piskunov, and P.A. Strizhak. Explosive disintegration of two-component drops under intense conductive, convective, and radiant heating. *Applied Thermal Engineering*, 152, 2019.
- [78] D.V. Antonov, G.V.Kuznetsov, and P.A. Strizhak. Comparison of the characteristics of micro-explosion and ignition of two-fluid water-based droplets, emulsions and suspensions, moving in the high-temperature oxidizer medium. *Acta Astronautica*, 160 :258–269, 2019.
- [79] D.V. Antonov, R.M. Fedorenko, P.A. Strizhak, Z. Nissar, and S.S. Sazhin. Puffing/micro-explosion in composite fuel/water droplets heated in flames. *Combustion and Flame*, 233, 2021.
- [80] P.A. Strizhak, M.V. Piskunov, R.S. Volkov, and J.C. Legros. Evaporation, boiling and explosive breakup of oil–water emulsion drops under intense radiant heating. *Chemical Engineering Research and Design*, 127, 2017.

-
- [81] D.V. Antonov, G.Z Kuznetsov, R.M. Fedorenko, and P.A. Strizhak. Micro-explosion of a two-component droplet : How the initial temperature of the water core affects the breakup conditions and outcomes. *Powder Technology*, 382, 2021.
- [82] H. Kim, J. Won, and S.W. Baek. Evaporation of a single emulsion fuel droplet in elevated temperature and pressure conditions. *Fuel*, 226, 2018.
- [83] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, and J. Bellettre. Investigation on the conditions leading to the micro-explosion of emulsified fuel droplet using two colors lif method. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 116, 2020.
- [84] J. Shinjo, J. Xia, L. C. Ganippa, and A. Megaritis. Physics of puffing and microexplosion of emulsion fuel droplets. *Physics of Fluids*, 26, 2014.
- [85] V. Califano, R. Calabria, and P. Massoli. Experimental evaluation of the effect of emulsion stability on micro-explosion phenomena for water-in-oil emulsions. *Fuel*, 2014.
- [86] H. Watanabe, Y. Suzuki, T. Harada, Y. Matsushita . Aoki, and T. Miura. An experimental investigation of the breakup characteristics of secondary atomization of emulsified fuel droplet. *Energy*, 35 :806–813, 2010.
- [87] H. Watanabe, T. Harada, Y. Matsushita, H. Aoki, and T. Miura. The characteristics of puffing of the carbonated emulsified fuel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 52 :3676–3684, 2009.
- [88] S.S. Sazhin, O. Rybdylova, C. Crua, M. Heikal, M.A. Ismael and Z. Nissar, and A. R.B.A. Aziz. A simple model for puffing/micro-explosions in water-fuel emulsion droplets. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 131 :126–141, 2019.
- [89] Mohd A.F Rosli, A. Rashid A. Aziz, Mhadi A. Ismael, Nimir O. Elbashir, Ezrann Z. Zainal. A, Masri Baharom, and Salah E. Mohammed. Experimental study of micro-explosion and puffing of gas-to-liquid (gtl) fuel blends by suspend droplet method.
- [90] D.V. Antonov, R.M. Fedorenko, P.A. Strizhak, Z.Nissar, and S.S. Sazhin. Puffing/micro-explosion in composite fuel/water droplets heated in flames. *Combustion and Flame*, 233, 2021.
- [91] S.M Syed Masharuddin, Z.A.A Karim, M.A Meor, S.N.Amran, and M. A.Ismael. The evolution of a single droplet water-in-palm oil derived biodiesel emulsion leading to micro-explosion. *Alexandria Engineering Journal*, 61, 2021.
- [92] H. Kim, J. Won, and S-W. Baek. Evaporation of a single emulsion fuel droplet in elevated temperature and pressure conditions. *Fuel*, 2018.
- [93] G. Castanet, D.V.Antonov, P.A.Strizhak, and S.S.Sazhin. Effects of water subdroplet location on the start of puffing/micro-explosion in composite fuel-water droplets. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 184, 2022.
- [94] T. Sharma, G.S. Kumar, B.H. Chon, and J.S. Sangwai. Thermal stability of oil-in-water pickering emulsion in the presence of nanoparticle, surfactant, and polymer. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 22 :324–334, 2015.
- [95] K-L. Pan and M-C. Chiu. Droplet combustion of blended fuels with alcohol and biodiesel/diesel in microgravity condition. *Fuel*, 113 :757–765, 2013.
- [96] C.Chauveau, I. Gökalp, D. Segawa, T. Kadota, and H. Enomoto. Effects of reduced gravity on methanol droplet combustion at high pressures. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28 :1071–1077, 2000.

-
- [97] T.Y. Liu, Q.P. Wu, B.Q. Sun, and F.T. Han. Microgravity level measurement of the beijing drop tower using a sensitive accelerometer. *Scientific Reports*, 2016.
- [98] V. Belser, J. Breuninger, M. Reilly, R. Laufer, M. Dropmann, G. Herdrich, T. Hyde, H-P. Röser, and S. Fasoulas. Aerodynamic and engineering design of a 1.5 s high quality microgravity drop tower facility. *Acta Astronautica*, 129 :335–344, 2016.
- [99] K-L. Pan, J-W. Li C-P. Chen, and C-H. Wang. On droplet combustion of biodiesel fuel mixed with diesel/alkanes in microgravity condition. *Combustion and Flame*, 156 :1926–1936, 2009.
- [100] K. Nogi and Y. Aoki. Behavior of bubbles in welding for repairs in space. *Materials and Design*, 1997.
- [101] V. Plester. Are aircraft parabolic flights really parabolic? *Acta Astronautica*, 89 :226–228, 2013.
- [102] G.A.E. Godsave. studies of the combustion of drops in a fuel spray – the burning of single drops of fuel. *Symposium International on Combustion*, 4 :813–830, 1953.
- [103] G.M. Faeth. Evaporation and combustion of sprays. *Progress in Energy and Combustion Science*, 9 :1–76, 1983.
- [104] C.K. Law. Recent advances in droplet vaporization and combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 8 :171–201, 1982.
- [105] R.S. Volkov, G.V. Kuznetsov, and P.A. Strizhak. Temperature and velocity fields of the gas-vapor flow near evaporating water droplets. *Internal Journal of Thermal Sciences*, 134, 2018.
- [106] J.S. Chin and A.H. Lefebvre. The role of the heat-up period in fuel drop evaporation. *International Journal of Turbo and Jet Engines*, 2 :315–325, 1985.
- [107] C. Chauveau, M. Birouk, and I. Gökalp. An analysis of the d2-law departure during droplet evaporation in microgravity. *International Journal of Multiphase Flow*, 37 :252–259, 2011.
- [108] C. Chauveau and G. Monsallier. observations on the vaporization and burning of fuel droplets at reduced gravity during parabolic flights. *Space and Humanity*, pages 223–228, 1989.
- [109] D. Segawa, H. Yamasaki, T. Kadota, H. Tanaka, H. enomoto, and M. Tsue. Water-coalescence in an oil-in-water emulsion droplet burning under microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28 :985–990, 2000.
- [110] M. Tsue, D. Segawa, H. yamasaki, and T. Kadota. Observation of sooting behavior in an emulsion droplet flame by planar laser light scattering in microgravity. *International Symposium on Combustion*, 26 :1251–1258, 1996.
- [111] A.J.H. McGaughey and C.A. Ward. Temperature discontinuity at the surface of an evaporating droplet. *Journal of Applied Physics*, 91 :6406–6415, 2002.
- [112] C. Chauveau, F. Halter, A. Lalonde, and I. Gökalp. An experimental study on the droplet vaporization : effects of heat conduction through the support fiber. *ILASS 2008*, 2008.
- [113] S. Okajima, H. Kanno, and S. Kumagai. Combustion of emulsified fuel under microgravity. *Acta Astronautica*, 12 :555–563, 1985.

-
- [114] M.V. Piskunov and P.A. Strizhak. Using planar laser induced fluorescence to explain the mechanism of heterogeneous water droplet boiling and explosive breakup. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 91, 2018.
- [115] S.Yamamura, K.Fujiwara, K. Honda, H. Yoshida, N. Horiguchi, A. Kaneko, and Y. Abe. Experimental study of liquid spreading and atomization due to jet impingement in liquid-liquid systems. *Physics of Fluids*, 34, 2022.
- [116] D. Bonin. *Développement de la réfractométrie d'arc-en-ciel pour l'étude de l'évaporation de gouttes individuelles en écoulement*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2011.
- [117] S. Fu., P-H. Biwolé, and C. Mathis. tracking velocimetry for indoor airflow field : A review. *Building and Environment*, 87, 2015.
- [118] D. Bonnet. *Vélocimétrie par images de particules (PIV) pour le diagnostic d'écoulements dans la boucle d'air automobile*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2012.
- [119] R.S. Volkov and P.A. Strizhak. Using planar laser induced fluorescence and micro particle image velocimetry to study the heating of a droplet with different tracers and schemes of attaching it on a holder. *International Journal of Thermal Sciences*, 159, 2021.
- [120] C. Hespel. *Extension de l'anémométrie phase Doppler à la mesure d'indice de réfraction et développement de la Vélocimétrie Laser par Corrélation*. PhD thesis, Université de Rouen, 2007.
- [121] R. Collignon. *Étude des transferts de chaleur dans un film ruisselant à instabilités de surface par des méthodes de fluorescence induite par laser*. PhD thesis, Université de Lorraine, 2020.
- [122] A. Labergue, M. Stiti, and F. Lemoine. Application de la fluorescence induite par laser pour la caractérisation de gouttes surfondues – mesure de la température et de la fraction de glace. *16ème Congrès Francophone de Techniques Laser pour la mécanique des fluides*, Centrale-Supélec, Université Paris Saclay, 2018.
- [123] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. The saturation of the fluorescence and its consequences for laser-induced fluorescence thermometry in liquid flows. *Experiments in Fluids*, 57, 2016.
- [124] P. Dunand, G. Castanet, and F. Lemoine. A two-color planar lif technique to map the temperature of droplets impinging onto a heated wall. *Experiments in Fluids*, 52, 2012.
- [125] A. Delconte. *Fluorescence induite par laser multibande appliquée à la mesure de température dans les milieux complexes*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009.
- [126] J.D. Peña-Carrillo. *Étude expérimentale du transfert paroi/fluide dans le cas d'un écoulement vertical vapeur/gouttes dans une géométrie tubulaire*. PhD thesis, Université de Lorraine, 2018.
- [127] R.C. Gonzalez, R.E. Woods, and S.L. Eddins. *Digital Image Processing Using MATLAB*. 2004.
- [128] P. KaewTraKulPong and R. Bowden. An improved adaptive background mixture model for realtime tracking with shadow detection. *Video-Based Surveillance Systems*, pages 135–144, 2002.

-
- [129] C. Bendicks, D. Tarlet, C. Roloff, R. Bordás, B. Wunderlich and B. Michaelis, and D. Thévenin. Improved 3-d particle tracking velocimetry with colored particles. *Journal of Signal and Information Processing*, 2 :59–71, 2011.
- [130] D. Tarlet, C. Bendicks, C. Roloff, R. Bordás, B. Wunderlich, B. Michaelis, and D. Thévenin. Gas flow measurements by 3d particle tracking velocimetry using coloured tracer particles. *Flow Turbulence and Combustion*, 88 :343–365, 2012.
- [131] Edmund Optics. All about diffraction gratings.
- [132] RP photonics. About ball lens effect.
- [133] S.E. Norris. *A Parallel Navier Stokes Solver for Natural Convection and Free Surface Flow*. PhD thesis, Université de Sydney, 2000.
- [134] R. Savino and S. Fico. Transient marangoni convection in hanging evaporating drops. *Physics of Fluids*, 16, 2004.
- [135] D.K Mandal and S. Bakshi. Internal circulation in a single droplet evaporating in a closed chamber. *International Journal of Multiphase Flow*, 42 :42–51, 2012.
- [136] J.R.A Pearson. On convection cells induced by surface tension. *journal of Fluids Mechanics*, 4 :489–500, 1958.
- [137] R. Prud’Homme. Considérations sur le vortex de hill. *Thermodynamique des interfaces et mécanique des fluides*, 5, 2021.
- [138] D. Tam, V.von. Arnim, G.H. Mc Kinley, and A.E. Hosoi. Marangoni convection in droplets on superhydrophobic surfaces. *Journal of Fluid Mechanics*, 624 :101–123, 2009.
- [139] T.V.M. Santos, M.F.V. Pereira, H. M.N.T. Avelino, F.J.P. Caetano, and J.M.N.A. Fareleira. Viscosity and density measurements on liquid n-tetradecane at moderately high pressures. *Fluid Phase Equilibria*, 453 :46–57, 2017.
- [140] J. Cui, J. Wu, and S. Bi. Liquid viscosity, interfacial tension, thermal diffusivity and mutual diffusivity of n-tetradecane with dissolved carbon dioxide. *Fluid Phase Equilibria*, 534, 2021.
- [141] Surface tension values of some common test liquids for surface energy analysis, <https://www.dataphysics-instruments.com>.
- [142] D.J. Luning Prak. Densities, viscosities, and speeds of sound of n-tetradecane and n-alkylcyclohexane binary mixtures within the temperature range. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 68, 2023.
- [143] T.S. Khasanshin and A.P. Shchemelev. The thermodynamic properties of n-tetradecane in liquid state. *High Temperature*, 40, 2002.
- [144] P.K. Mondal and B.K. Mandal. A comprehensive review on the feasibility of using water emulsified diesel as a ci engine fuel. *Fuel*, 237, 2019.
- [145] K.P. Bjorgen, D.R. Emberson, and T.Løvås. Combustion and soot characteristics of hydrotreated vegetable oil compression-ignited spray flames. *Fuel*, april 2020.
- [146] J.W. Park, K.Y. Huh, and J.H. Lee. Reduction of nox, smoke and brake specific fuel consumption with optimal injection timing and emulsion ratio of water-emulsified diesel. *Journal of Automobile Engineering*, 215 :83–93, 2001.

-
- [147] O. Armas, R. Ballesteros, F.J. Martos, and J.R. Agudelo. Characterization of light duty diesel engine pollutant emissions using water-emulsified fuel. *Fuel*, 84 :1011–1018, 2005.
- [148] G. Najafi S.S. Hoseini and M. Mofijur M. Abdollahi, B. Ghobadian and M. Mazlan. Impact of water–biodiesel–diesel nano-emulsion fuel on performance parameters and diesel engine emission. *Fuel*, 280, Novembre 2020.
- [149] F.L. Dryer. Water addition to practical combustion systems - concepts and applications. *International Symposium on Combustion*, 16 :279–295, 1977.
- [150] J.A. Miller and C.T. Bowman. Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 15 :287–338, 1989.
- [151] R.P. Van der Lans, P. Glarborg, and K. Dam-Johansen. Influence of process parameters on nitrogen oxide formation in pulverized coal burners. *Progress in Energy and Combustion Science*, 23 :349–377, 1997.
- [152] C.P. Fenimore and G.W. Jones. *Journal of Physics and Chemistry*, 1957.
- [153] T.H. Trang Nguyen. *Emissions polluantes des NOx : mécanisme de formation et de réduction*. PhD thesis, Université du Littoral Côte d’Opale, 2013.
- [154] V. Ayhan and Y.N. Mert Ece. New application to reduce nox emissions of diesel engines : Electronically controlled direct water injection at compression stroke. *Applied Energy*, 260, February 2020.
- [155] Ali M.A. Attia and R. Kulchitskiy. Influence of the structure of water-in-fuel emulsion on diesel engine performance. *Fuel*, pages 703–708, 2014.
- [156] C-H. Wang and J-T. Chen. An experimental investigation of the burning characteristics of water-oil emulsions. *Int. Comm. Heat Mass transfer*, 23 :823–834, 1996.
- [157] S.S. Reham, H.H. Masjuki, M.A. Kalam, I. Shancita, I.M. Rizwanul Fattah, and A.M. Ruhul. Study on stability, fuel properties, engine combustion, performance and emission characteristics of biofuel emulsion. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 52, 2015.
- [158] E.J. Davis and G. Schweiger. *The airborne microparticle : Its Physics, Chemistry, Optics, and Transport Phenomena*. 2002.
- [159] L.A. Dombrovsky, A.A. Fedorets, and D.N. Medvedev. The use of infrared irradiation to stabilize levitating clusters of water droplets. *Infrared Physics and Technology*, 75 :124–12, 2016.
- [160] L.A. Dombrovsky. Spectral model of absorption and scattering of thermal radiation by diesel fuel droplets. *High Temperature*, 40 :242–248, 2002.
- [161] L.A. Dombrovsky, S.S. Sazhin, E.M. Sazhina, G. Feng, M.R. Heikal, M.E.A. Bardsley, and S.V. Mikhalovsky. Heating and evaporation of semi-transparent diesel fuel droplets in the presence of thermal radiation. *Fuel*, 80 :1535–1544, 2001.
- [162] S.S. Sazhin. Advanced models of fuel droplet heating and evaporation. *Progress in Energy and Combustion Science*, 32, 2006.
- [163] L.A. Dombrovsky, S. Dembele, and J.X. Wen. A simplified model for the shielding of fire thermal radiation by water mists. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 96 :199–209, 2016.

-
- [164] G.M Jang and N.I. Kim. Characteristics of a free-falling single droplet of water-in-oil emulsion broken up by a pulse laser. *Fuel*, 264, 2020.
- [165] Gyu Min Jang and Nam Il Kim. Investigation on breakup characteristics of multicomponent single droplets of nanofluid and water-in-oil emulsion using a pulse laser. *Fuel*, 310, 2022.

Titre : Etude des effets de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés

Mots clés : Changement de phase, micro-explosion, diagnostics optiques, micro-gravité, convection, effet Marangoni

Résumé : L'intérêt de l'émulsification de combustibles à l'aide d'eau réside dans l'amélioration de la qualité de la combustion (et donc dans la réduction d'émissions de polluants) à travers une atomisation secondaire de la goutte nommée micro-explosion. Ce phénomène ayant une probabilité de réalisation dépendant de plusieurs paramètres, l'étude de l'impact de chacun de ces facteurs sur l'occurrence de la micro-explosion est fondamentale. L'objectif des travaux présentés dans ce manuscrit consiste à améliorer la compréhension du phénomène de micro-explosion. Pour se faire, l'étude du comportement de la phase aqueuse dispersée sous forme de fines gouttelettes durant la période de montée en température de la goutte dite "mère" est réalisée. Il en ressort que la coalescence de la phase dispersée semble être

un facteur permettant d'améliorer la qualité et la probabilité d'apparition de la micro-explosion. Le comportement de la phase dispersée semble également être dépendant du « brassage liquide » interne induit par des mécanismes de convection naturelle. C'est à cette fin que des diagnostics optiques basés sur la Fluorescence Induite par Laser ont été implémentés, afin de permettre la visualisation du champ de température à l'intérieur d'une goutte et de détecter la présence ou non d'éventuels gradients de températures. Enfin, un banc expérimental automatisé ayant pour but d'être utilisé en condition de micro-gravité a été développé. Les expériences réalisées ont apporté des éléments de preuves confirmant la prédominance des effets de tension de surface sur l'écoulement à l'intérieur de la goutte.

Title : Study of the effects of micro-gravity on alternative emulsified fuels atomization

Keywords : Phase change, micro-explosion, optical diagnostics, micro-gravity, convection, Marangoni effect

Abstract : The interest in fuel emulsification using water lies in improving combustion quality (and reducing pollutant emissions) through secondary atomization of the droplet, known as micro-explosion. As this phenomenon's likelihood depends on several parameters, studying the impact of each of these factors on micro-explosion occurrence is crucial. The aim of the work presented in this manuscript is to enhance understanding of the micro-explosion phenomenon. To achieve this, the study examines the behavior of the dispersed aqueous phase in the form of fine droplets during the heating period of the so-called "mother" droplet. It appears that the coalescence of the dispersed phase seems to be a factor improving the quality and

likelihood of micro-explosion occurrence. Additionally, the behavior of the dispersed phase seems to depend on internal liquid stirring induced by natural convection mechanisms. With this perspective, optical diagnostics based on Laser-Induced Fluorescence have been implemented to visualize the temperature field inside a droplet and detect any temperature gradients. Finally, an automated experimental setup intended for use in microgravity conditions has been developed. The experiments provided evidence confirming the predominance of surface tension effects on the flow inside the droplet.