

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

ÉCOLE DOCTORALE Énergie, Matériaux, Sciences de la Terre et de l'Univers
ICARE – CNRS UPR3021

THÈSE présentée par : **Alexandre BRACONNIER**

soutenue le : **09 octobre 2020**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**

Discipline / Spécialité : **Mécanique & Énergétique**

Étude expérimentale de la combustion d'une particule d'aluminium isolée : influence de la pression et de la composition de l'atmosphère oxydante

THÈSE dirigée par :

M. CHAUEAU Christian
M. HALTER Fabien
M. GALLIER Stany

Directeur de recherche, ICARE – CNRS
Professeur, Université d'Orléans
Ingénieur de Recherche, ArianeGroup

Directeur de thèse
Codirecteur de thèse
Co-encadrant de thèse

JURY :

Mme. TSCHAMBER Valérie
M. DUFAUD Olivier
M. CATOIRE Laurent
M. DEVILLERS Robin
M. CHAUEAU Christian
M. HALTER Fabien
M. GALLIER Stany

Professeur, Université de Haute-Alsace
Professeur, Université de Lorraine
Professeur, ENSTA
Ingénieur de Recherche, ONERA
Directeur de recherche, ICARE – CNRS
Professeur, Université d'Orléans
Ingénieur de Recherche, ArianeGroup

Rapporteur
Rapporteur
Président du jury
Examineur
Directeur de thèse
Codirecteur de thèse
Co-encadrant de thèse

Table des matières

1	Introduction générale	1
1.1	Contexte	1
1.2	Le programme Ariane	1
1.3	Problématique et cadre des travaux de thèse	2
2	La propulsion solide	5
2.1	Systèmes propulsifs : fonctionnement et généralités	5
2.2	Les moteurs à propergol solide	8
2.2.1	Généralités et conception	8
2.2.2	Combustion des propergols solides	8
2.2.3	Intégration des poudres d'aluminium au fonctionnement des MPS	9
2.3	Stabilité des MPS en fonctionnement	11
2.3.1	Acoustique des MPS	11
2.3.2	Instabilités hydrodynamiques	12
2.3.3	Instabilités de combustion	13
2.4	Enjeux relatifs à l'utilisation des poudres d'aluminium	14
2.4.1	Influence de la phase dispersée sur la stabilité hydrodynamique	14
2.4.2	Instabilités de combustion thermoacoustique (ITHAC)	14
2.4.3	Enjeux connexes liés à la phase dispersée	15
2.5	Bilan	16
3	La combustion de l'aluminium	19
3.1	Description élémentaire et modélisation	19
3.1.1	Modes de combustion	19
3.1.2	Phénoménologie du processus de combustion de l'aluminium	23
3.1.3	Modélisation de la combustion de l'aluminium	27
3.2	Constats empiriques sur la combustion de l'aluminium	31
3.2.1	Moyens d'analyse expérimentaux	31
3.2.2	Observations générales	32
3.2.3	Influence des paramètres ambiants	36
3.2.4	Bilan et objectifs des travaux de thèse	41
4	Dispositif expérimental	45
4.1	Isolation d'une particule en atmosphère contrôlée	46

4.1.1	Système de lévitation électrostatique	46
4.1.2	Chambre haute pression instrumentée	49
4.1.3	Installations complémentaires	49
4.2	Système d'allumage laser	50
4.3	Moyens d'analyse	51
4.4	Méthodologie expérimentale	53
4.5	Méthodologie d'analyse	54
5	Résultats expérimentaux	59
5.1	Synthèse	59
5.2	Étude préliminaire de la combustion de l'aluminium dans l'air	60
5.2.1	Étude à pression atmosphérique	60
5.2.2	Influence de la pression	68
5.2.3	Bilan	78
5.3	Étude comparative de la contribution du diazote N ₂	79
5.3.1	Influence sur la dynamique de combustion	80
5.3.2	Influence sur les paramètres de combustion	85
5.3.3	Bilan	89
5.4	Réaction de l'aluminium avec des oxydants caractéristiques des MPS : CO ₂ et CO.	91
5.4.1	Combustion de l'aluminium dans le CO ₂ pur à pression variable	91
5.4.2	Combustion de l'aluminium dans le CO pur à pression variable	98
5.4.3	Bilan	102
5.5	Combustion de l'aluminium en mélanges CO ₂ -CO-N ₂	103
5.5.1	Aspects phénoménologiques	104
5.5.2	Paramètres de combustion	113
5.5.3	Détermination d'une loi empirique sur le temps de combustion des particules d'aluminium	117
5.5.4	Bilan	119
6	Conclusion et perspectives	121
	Bibliographie	127

Chapitre 1

Introduction générale

1.1 Contexte

Après l'échec du programme Europa dans les années 1970, et l'inhérente dépendance de l'Europe vis-à-vis des États-Unis pour procéder au lancement du premier satellite de télécommunications européen Symphonie, l'Europe décide de se doter de son propre vecteur de mise en orbite et initie le programme Ariane. Au regard de cet exemple, l'accès autonome à l'espace s'est inscrit comme étant tout d'abord un enjeu stratégique et politique centralisé par des entités étatiques. Cependant, le marché spatial a progressivement évolué, de nouveaux besoins sociétaux émergent, devenant des enjeux majeurs au travers du déploiement généralisé des moyens de communication et des acteurs privés prospèrent, conquérant des parts de marchés considérables en prônant dorénavant des priorités industrielles et économiques. Aujourd'hui, de par sa démocratisation, sa commercialisation et sa militarisation, l'industrie spatiale est en plein développement et les prédictions envisagent une valorisation significative de ses revenus financiers de US\$350 milliards à US\$1 billion d'ici 2040 (Pekkanen [2019]). L'importance de ce marché suscite une intensité concurrentielle sans précédent entre les différentes puissances spatiales, mais également entre les entités du secteur public et celles du secteur privé. Cette situation favorise alors l'innovation pour rendre l'accès à l'espace plus pérenne et plus rapide tout en réduisant son coût et son impact environnemental.

1.2 Le programme Ariane

Dans ce contexte, soutenue par la volonté d'investissement de l'Agence Spatiale Européenne (ESA) décidée en 2014 et portée par le savoir-faire mutualisé d'Airbus et de Safran, l'entreprise ArianeGroup initie le développement d'une nouvelle génération de lanceur et élabore le projet Ariane 6. Ce programme a pour objectif de produire un lanceur aussi fiable que la version actuelle Ariane 5 mais plus compétitif en réduisant les coûts de réalisation de 40 à 50% (Charmeau [2019]). Pour cela, ArianeGroup et ses différents partenaires industriels proposent tout d'abord d'optimiser la production en favorisant une conception davantage standardisée et organisée. Cependant, ce nouveau lanceur doit également proposer des atouts valorisables pour assurer sa compétitivité et suscite de nouveaux défis technologiques qui sont au centre des travaux de R&T. Ariane 6 est conçu pour être polyvalent et modulaire afin de répondre à la diversification du marché de l'espace (satellites de télécommunications, d'observation de la Terre, constellations, véhicules spatiaux, satellites scientifiques, télescopes, sondes, etc.). Ainsi, le lanceur sera

décliné en différentes versions, Ariane 62 et Ariane 64 (Fig. 1.1), respectivement équipées de deux et quatre moteurs à propergol solide P-120C qui complètent l'étage principal à ergols liquides avec son moteur Vulcain® 2. Ariane 6 est aussi pensé pour être évolutif en anticipant l'intégration des futures technologies pour garantir la durabilité du lanceur. Les évolutions majeures consistent principalement en l'optimisation et l'amélioration des systèmes propulsifs avec l'étude de plusieurs démonstrateurs comme Prometheus et Themis, prémices des solutions envisagées pour concevoir des moteurs et ensembles propulsifs réutilisables à coûts réduits.

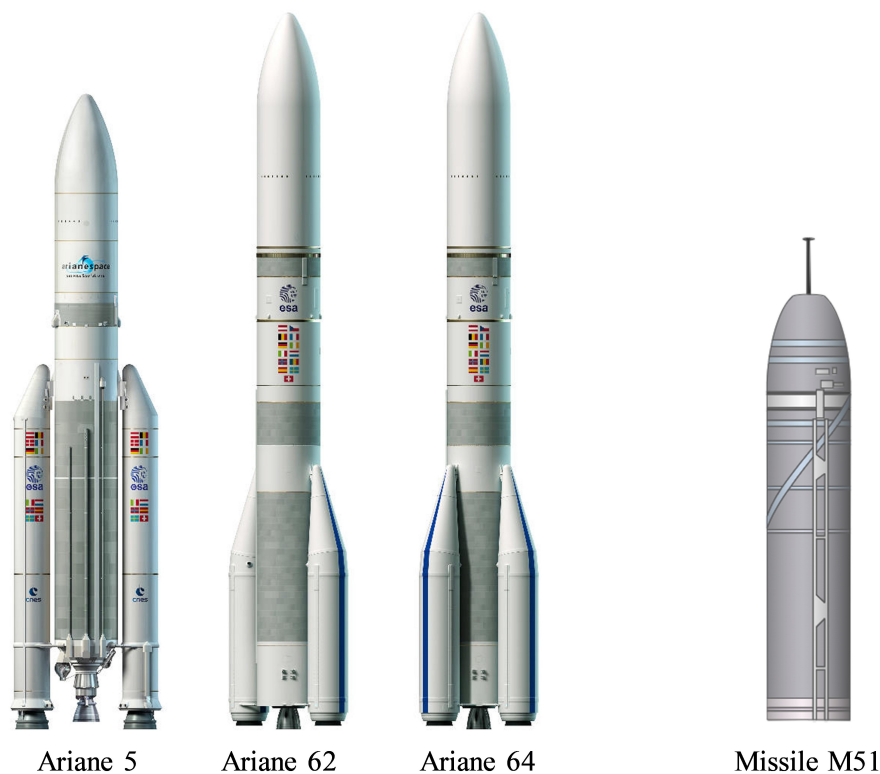


FIGURE 1.1 – Illustration des lanceurs spatiaux Ariane et du missile stratégique M51.

1.3 Problématique et cadre des travaux de thèse

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans la dynamique actuelle de l'entreprise ArianeGroup et se focalisent sur les systèmes de propulsion à propergol solide utilisés pour générer la poussée nécessaire au décollage de l'actuelle fusée Ariane 5 et, d'ici 2020, de la prochaine fusée Ariane 6. Ce type de moteur est aussi largement employé dans le domaine militaire où l'entreprise ArianeGroup est également pleinement investie dans le cadre du développement du missile stratégique M51 (Fig. 1.1) en partenariat avec la direction générale de l'Armement (DGA). Malgré un principe de fonctionnement et une conception moins complexes, les performances, la stabilité et la fiabilité des moteurs à propergol solide (MPS) actuels résultent d'une forte capitalisation de connaissances dans des domaines pluridisciplinaires. Les nombreux programmes de recherche menés par l'entreprise et ses partenaires ont permis d'une part d'améliorer la compréhension des phénomènes inhérents du fonctionnement des MPS mais ont aussi abouti à l'élaboration d'outils de simulation numériques spécifiques. Considérant les différents intérêts industriels des MPS pour ses différents secteurs d'activité, ArianeGroup perpétue cet

investissement pour accroître davantage ses compétences et concevoir des moteurs plus compétitifs. La conception des MPS est essentiellement basée sur l'utilisation des codes prédictifs employés pour modéliser le fonctionnement moteur, évaluer les performances attendues et anticiper toute source de contrainte. Cependant, différentes problématiques persistent et sont encore actuellement avérées sur des moteurs actuels. Notamment, certains effets relatifs à l'utilisation de poudre d'aluminium dans le chargement énergétique des MPS sont particulièrement préjudiciables et doivent être limités.

De manière générale, l'étude expérimentale proposée vise principalement à améliorer la description fondamentale du phénomène de combustion des gouttes d'aluminium dans des conditions représentatives des MPS. Ces travaux se basent sur un dispositif expérimental avancé permettant d'étudier le processus de combustion d'une unique particule en lévitation avec une haute définition spatio-temporelle. De manière complémentaire, les données mesurées permettront à terme d'accroître les capacités de prédiction des codes implémentés pour optimiser le design des propulseurs et les rendre plus performants, plus stables et moins onéreux.

Afin de comprendre plus précisément les motivations des recherches menées, il convient alors tout d'abord d'introduire le principe de fonctionnement des systèmes de propulsion et plus particulièrement celui des moteurs à propergol solide pour mettre en évidence les différents points d'action concernés. Une analyse bibliographique sur la combustion de l'aluminium sera également proposée, établissant notamment un bilan global des recherches menées à ce sujet et décrivant l'ensemble des connaissances documentées sur le processus réactionnel des gouttes d'aluminium. Cette partie permettra ainsi d'identifier les axes de recherche majeurs et de préciser l'intérêt des travaux initiés. L'approche expérimentale développée sera ensuite présentée, explicitant le fonctionnement du lévitateur électrostatique, les moyens d'analyse mis en place ainsi que les méthodes de post-traitement élaborées. Enfin, les résultats obtenus sur l'étude de la combustion des particules d'aluminium isolées dans différents milieux réactifs seront finalement détaillés, proposant des informations inédites sur la phénoménologie de réaction des gouttes et une base de données pertinente.

Chapitre 2

La propulsion solide

Ce travail de thèse sera principalement concentrée sur des problématiques liées au fonctionnement des MPS. En considération de leurs caractéristiques, ces moteurs sont particulièrement adaptés pour fournir une poussée conséquente sur des temps limités et sont majoritairement employés pendant la phase de décollage des véhicules spatiaux. Les MPS ont également des avantages complémentaires intéressants, permettant des facilités de stockage et de transport avec une grande durabilité et des coûts réduits. Cette technologie est donc aussi largement utilisée dans le domaine militaire (M51). De manière générale, leur principe de fonctionnement est identique à celui des autres systèmes propulsifs, mais l'utilisation de matériaux énergétiques solides suggère certaines spécificités. Le propergol solide est un matériau composite complexe avec une conception et une composition particulières, intégrant notamment des proportions significatives de poudres métalliques d'aluminium. La combustion de cet ensemble s'établit alors selon un processus réactionnel spécifique pour générer des gaz propulsifs avec un potentiel énergétique considérable. Pour assurer des performances élevées et stables sur l'ensemble de la phase opératoire, la conception de ces moteurs doit restreindre l'établissement de tous phénomènes indésirables qui pourraient, de surcroît, être dommageables pour les structures mécaniques du moteur et de la charge utile. En ce sens, l'acoustique de la chambre moteur est un paramètre clef gouvernant les instabilités induites par l'écoulement et les réactions exothermiques internes. Plusieurs effets inhérents à la présence d'aluminium dans l'environnement moteur sont également reportés et bien que les poudres d'aluminium brûlant dans les MPS permettent une amélioration significative des performances, leur utilisation suscite des défis majeurs.

2.1 Systèmes propulsifs : fonctionnement et généralités

Le fonctionnement des systèmes propulsifs est fondé sur le principe des actions réciproques de Newton. Dans le cas des moteurs-fusées, ces dispositifs transmettent une force de poussée au lanceur en éjectant des gaz généralement issus de la combustion d'un propergol. Indépendamment des technologies utilisées pour produire les gaz propulsifs, la conception des propulseurs reste similaire et se compose d'une chambre de combustion et d'une tuyère convergente-divergente (tuyère de Laval). Cet ensemble permet de générer une force propulsive conséquente en accélérant les produits gazeux de combustion à haute température et à haute pression jusqu'à des vitesses supersoniques, transformant ainsi l'énergie chimique thermique en énergie cinétique.

De manière fondamentale, la force de poussée totale F_t résulte de la combinaison des forces issues de la quantité de mouvement F_m et des efforts de pression F_p générés. Elle

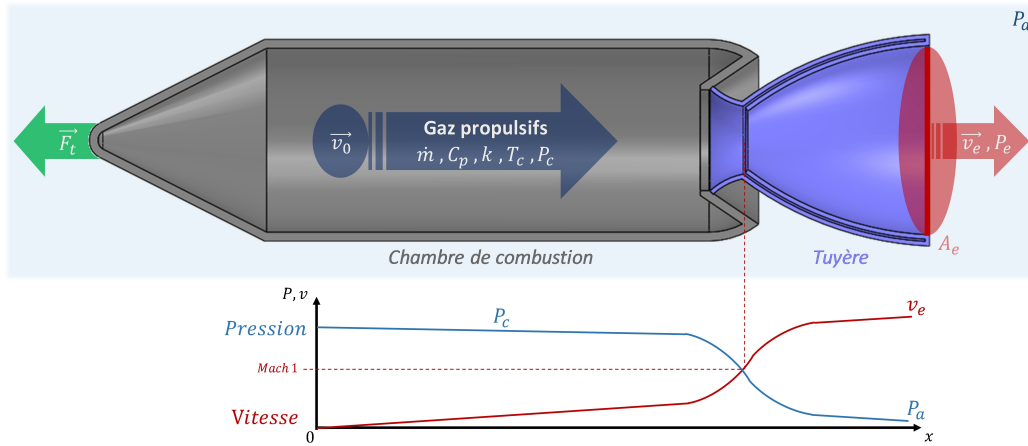


FIGURE 2.1 – Principe de fonctionnement d'un moteur-fusée.

s'exprime alors selon l'équation suivante :

$$F_t = F_m + F_p \quad (2.1)$$

$$F_t = \dot{m}(v_e - v_0) + A_e(P_e - P_a) \quad (2.2)$$

Avec :

$\dot{m}$: Débit massique des gaz propulsifs

v_e : Vitesse d'éjection des gaz propulsifs en sortie de tuyère

v_0 : Vitesse initiale des gaz propulsifs

A_e : Surface d'éjection en sortie de tuyère

P_e : Pression statique des gaz propulsifs en sortie de tuyère

P_a : Pression statique ambiante

Considérant un cas optimal de fonctionnement dans le vide et une expansion totale des gaz injectés (tuyère adaptée) sans vitesse initiale, les quantités $(P_e - P_a)$ et v_0 sont négligeables, voire nulles, et l'expression de la poussée peut donc être simplifiée :

$$F_t = \dot{m} v_e \quad (2.3)$$

L'hypothèse de conditions thermodynamiques idéales suggère un processus de transformation isentropique et permet de déterminer la vitesse théorique d'éjection des gaz à la sortie de la tuyère :

$$v_e = \sqrt{2C_p T_c \left[1 - \left(\frac{P_e}{P_c} \right)^{\frac{k-1}{k}} \right]} \quad (2.4)$$

Avec :

C_p : Capacité thermique des gaz propulsifs à pression constante

k : Coefficient adiabatique

T_c : Température totale des gaz propulsifs

P_c : Pression statique des gaz propulsifs

L'impulsion spécifique est une donnée caractéristique des moteurs-fusées définissant la durée pendant laquelle la réaction de 1 kg de propergol peut exercer la poussée nécessaire au déplacement d'une masse unitaire dans le champ gravitationnel terrestre. Exprimé usuellement en secondes (s), ce paramètre est un critère pratique pour mesurer et comparer les performances des moteurs :

$$I_{sp} = \frac{F_t}{\dot{m}g} \quad (2.5)$$

Avec :

g : Accélération du champ de pesanteur

Ainsi, selon les équations 2.3, 2.4 et 2.5, l'impulsion spécifique est directement dépendante des propriétés thermodynamiques des gaz propulsifs (C_p , k) qui pilotent également les conditions de pression/température dans la chambre de combustion (T_c , P_c). Par conséquent, la technologie de propergol employée conditionne inéluctablement l'efficacité moteur et doit être convenablement sélectionnée pour répondre aux critères de mission. De par les besoins multiples suscités par l'exploration spatiale, d'autres types de systèmes propulsifs complémentaires ont été développés, basés sur des technologies différentes (nucléaire, électrique, etc.). A titre comparatif, le tableau 2.1 répertorie l'ensemble des technologies les plus reconnues et présente leurs caractéristiques principales :

	Poussée (kN)	Impulsion spécifique (s)	Poussée modulable
Monergol	100	250	Oui
Propergol solide	5000 - 8000	280	Non
Ergol liquide	2000 - 3000	480	Oui
Propulsion hybride	300	300	Oui
Propulsion nucléaire	30 - 1000	600 - 900	Oui
Propulsion ionique	0,005 - 5	3000 - 10000	Oui

TABLEAU 2.1 – Récapitulatif des différents types de systèmes propulsifs et de leurs caractéristiques.

Les technologies nucléaires et électriques permettent ainsi de disposer d'impulsions spécifiques élevées (Tab. 2.1) mais leurs poussées restent limitées. Le champ d'action de ce type de moteur concerne ainsi majoritairement les missions en impesanteur avec une gravité restreinte. Les méthodes chimiques basées sur l'utilisation de propergols ont quant à elles des poussées plus conséquentes et peuvent assurer la mise en mouvement d'éléments de grande masse en champ gravitationnel, de plus, ces techniques restent plus accessibles. Ainsi, les moteurs à ergols liquides et à propergol solide sont largement utilisés sur les lanceurs modernes, fournissant des performances intéressantes avec des technologies accessibles, robustes et maîtrisées. En comparaison avec les moteurs à propergol solide, les systèmes à ergols liquides offrent des performances élevées (I_{sp}) et directement modulables mais requièrent une conception plus complexe qui suggère des risques et des coûts accrus. Bien que la configuration des MPS ne permette pas une exploitation flexible de la poussée, cette technologie conserve des atouts industriels

intéressants (coûts, fabrication, stockage, durabilité, etc.) et des performances significatives. Ainsi les lanceurs Ariane 6 seront notamment dotés de cette technologie dans leur première version en intégrant les dernières avancées techniques.

2.2 Les moteurs à propergol solide

2.2.1 Généralités et conception

La figure 2.2 illustre de manière globale la conception et le fonctionnement d'un MPS. Le principe de fonctionnement fondamental des MPS est basé sur celui décrit précédemment. Les gaz propulsifs sont générés par la combustion d'un mélange réactionnel hétérogène intégrant simultanément oxydant et réducteur sous forme solide (Fig. 2.2(a)).

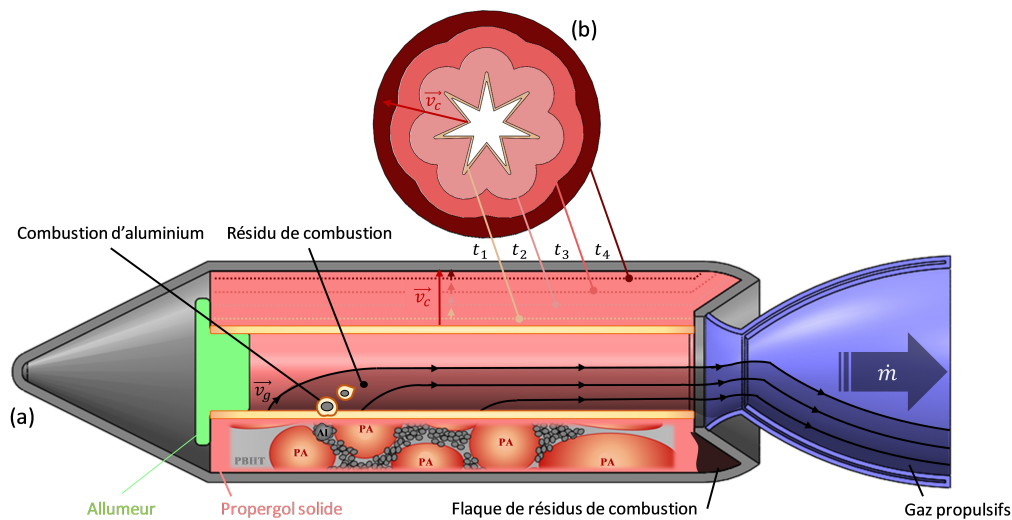


FIGURE 2.2 – Conception et fonctionnement d'un moteur à propergol solide. (a) Schéma en coupe longitudinale - (b) Schéma en coupe transversale.

Dans sa forme utilisée dans les MPS d'Ariane 5 et d'Ariane 6, le propergol nommé butalane® est constitué d'une charge oxydante de perchlorate d'ammonium NH_4ClO_4 (PA) sous forme de grains, d'un liant polymère réducteur de polybutadiène hydroxyté-léchélique (PBHT) et de particules d'aluminium micrométriques (Al) servant d'additif énergétique pour augmenter les performances du moteur (Fig. 2.2(a)). Les proportions et la granulométrie typiques de chaque élément sont détaillées dans le tableau 2.2.

	PA	PBHT	Al
Fractions massiques (%)	$\approx 68\%$	$\approx 14\%$	$\approx 18\%$
Taille de grain (μm)	5 - 200	-	5 - 50

TABEAU 2.2 – Composition et caractéristiques typiques du butalane®.

2.2.2 Combustion des propergols solides

L'allumage du moteur est initié par un dispositif d'amorçage dédié. La combustion des propergols solides consiste ensuite en un processus surfacique qui transforme successi-

vement des couches parallèles du composite en produits gazeux. La régression est alors normale au front du bloc solide (Fig. 2.2) et se propage à une vitesse déterminée selon la loi de Vieille :

$$v_c = aP_c^n \quad (2.6)$$

$$\dot{m} = A_p \rho_c v_c \quad (2.7)$$

Le coefficient a est une constante empirique qui dépend de la composition et de la température initiale du propergol et n est un exposant de pression classiquement compris entre 0.3 et 0.7 (Turner [2008]). Le débit massique de gaz chauds éjectés $\dot{m}$ est alors proportionnel à l'étendue de la surface en combustion A_p et à la pression dans la chambre moteur P_c (50 à 100 bar). Ainsi, le profil de poussée peut être ainsi directement prédit au cours du temps en contrôlant la surface exposée du propergol. À ce titre, différentes géométries de grain sont d'ailleurs employées pour établir la courbe de poussée souhaitée (canal étoilé, canal cylindrique, etc.). Enfin, la masse volumique du composite ρ_c est également une propriété d'intérêt pour accroître les performances.

De par leur hétérogénéité, les propergols solides de type PA/PBHT (n'incluant pas de particules d'aluminium) ont un mécanisme de combustion complexe qui suggère la formation de plusieurs flammes en proche surface : une flamme de prémélange de PA et des flammes de diffusion primaire et finale de PA/PBHT (Beckstead [2000]). La réaction du propergol est exothermique, la température évaluée à sa surface est d'environ 1000 K - 1400 K (Lengelle et al. [2000]) et la température de la flamme finale est de l'ordre de 2200 K. À l'équilibre, l'écoulement gazeux alors généré par la combustion du couple PA/PBHT est principalement composé de CO_2 , H_2O , CO , HCl et N_2 dont les proportions classiques sont répertoriées dans le tableau 2.3.

Espèces gazeuses	CO	HCl	H ₂ O	N ₂	CO ₂
Fractions massiques (%)	21	21	19	18	11

TABLEAU 2.3 – Composition typique à l'équilibre des produits gazeux issus de la combustion d'un propergol PA/PBHT.

2.2.3 Intégration des poudres d'aluminium au fonctionnement des MPS

Les poudres métalliques d'aluminium présentent des propriétés énergétiques intéressantes et sont ainsi couramment intégrées à la composition des propergols solide pour améliorer les performances moteur. Dans ce cas, la régression du bloc solide permet également la libération des particules d'aluminium micrométriques qui se détachent de la surface (Fig. 2.3). Les gaz issus de la combustion du propergol constituent le milieu oxydant nécessaire à l'allumage et à la combustion de l'aluminium. Ce métal a une température de fusion proche de 933 K et son point d'ébullition se situe approximativement à 2791 K à pression atmosphérique. Cependant, à l'état naturel, l'aluminium s'oxyde au contact de l'air et est protégé par une couche passive d'alumine (Al_2O_3) d'une épaisseur proche de 3 nm (Yetter et al. [2009]) et dont les points de fusion et d'ébullition sont différents, respectivement 2326 K et 4000 K à pression atmosphérique. Les particules sont donc ainsi chauffées à haute température par les gaz issus de la décomposition du propergol, permettant d'initier la réaction de l'aluminium avec les oxydants environnants après fusion de la couche d'alumine passive. En comparaison avec la taille des flammes au front solide, la combustion des particules s'établit à une distance relativement plus élevée. Dans cette zone éloignée, les gaz peuvent être considérés à

l'équilibre chimique et la composition de l'environnement réactionnel de l'aluminium est donc celle détaillée dans le tableau 2.3. De cette manière, la combustion des particules augmente la température des gaz propulsifs T_c d'environ 1000 K et permet, selon les équations 2.3, 2.4 et 2.5, d'accroître la poussée et l'impulsion spécifique. Le principal produit de cette combustion est l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 qui se présente sous la forme de particules submicroniques condensées. La taille des résidus de combustion peut alors être relativement faible ($\approx 2 \mu m$) ou du même ordre de grandeur que les particules d'aluminium initiales dont ils sont issus (Fig. 2.3) (Price et al. [1979]). Le processus de combustion spécifique de l'aluminium sera détaillé par la suite dans une section dédiée.

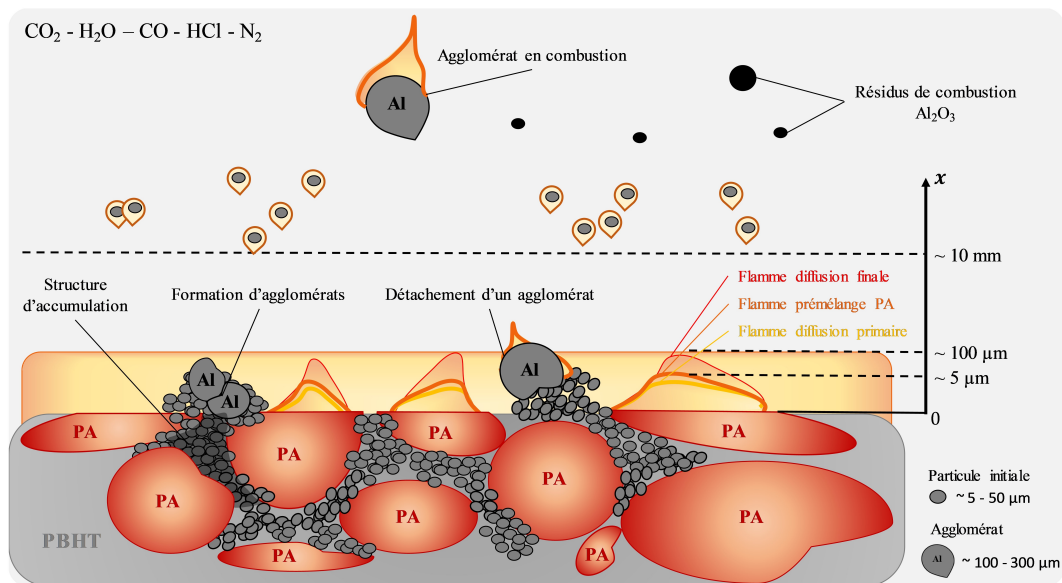


FIGURE 2.3 – Illustration détaillée du processus de combustion des propergols solides composites intégrant des poudres d'aluminium.

Par ailleurs, les particules d'aluminium peuvent s'agglomérer à la surface du propergol et former des agglomérats de taille plus conséquente. Ce phénomène est schématisé dans la figure 2.3 et mis en évidence par les images d'ombroscopie issues des travaux de Devillers et al. [2017] sur la figure 2.4. L'agglomération des particules d'aluminium est directement liée au processus de coalescence et concerne approximativement 30% de la fraction massique initiale d'aluminium (Lengelle et al. [2002]). Lors de la régression de la surface de combustion du propergol, les particules ne sont pas toutes directement libérées et certaines restent maintenues à la surface par adhésion au liant (Babuk et al. [1985], Price and Sigman [2000]). À la différence des constituants solides du propergol (PA et PBHT), l'aluminium ne se vaporise pas immédiatement en proche surface. Ainsi, les particules se trouvent dans un état partiellement liquide, contenues dans une structure caractéristique formée par des grains de PA (Fig. 2.3) (Price and Sigman [2000]). Dans ces conditions, la coalescence des particules est favorisée et des agrégats de diamètre plus important ($\approx 100-200 \mu m$) sont formés. Finalement, la structure agglomérée fusionne totalement et entre en combustion, avant ou après avoir quitté la surface de propergol (Fig. 2.3).

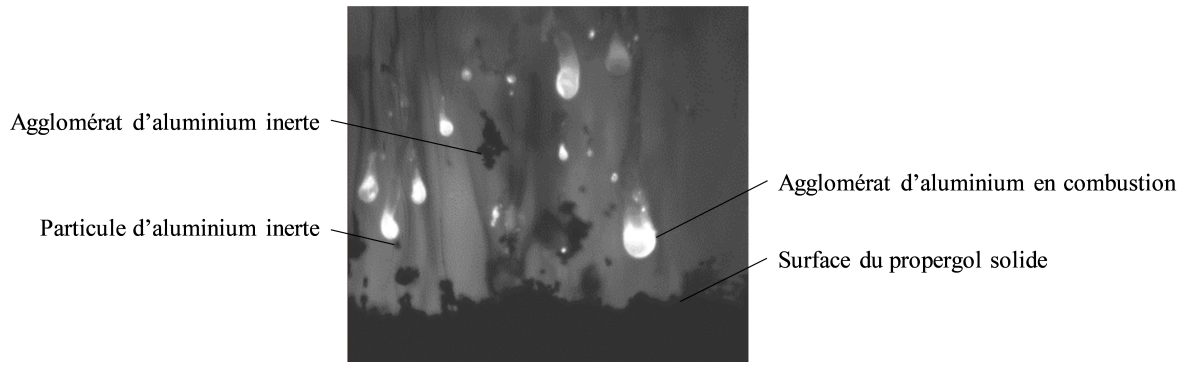


FIGURE 2.4 – Image d'ombroscopie de la combustion de particules d'aluminium en proche surface du propergol solide (Devillers et al. [2017]).

2.3 Stabilité des MPS en fonctionnement

Le niveau de complexité du fonctionnement des MPS est ainsi relativement bas en comparaison à d'autres systèmes existants. Cependant, de par sa conception et son fonctionnement, l'environnement moteur est siège d'instabilités hydrodynamiques et d'instabilités de combustion. Couplées à l'acoustique de la chambre moteur, ces perturbations peuvent notamment se traduire par des fluctuations de pression qui, à certains niveaux d'amplitude, peuvent générer des effets instationnaires défavorables pour les performances et la stabilité du système propulsif, affectant directement la poussée et les structures mécaniques (Blomshield [2001]).

2.3.1 Acoustique des MPS

Considérant la conception élémentaire d'un MPS, l'ensemble formé par la géométrie interne de la chambre de combustion et la tuyère amorcée peut être assimilé à un système acoustique de type fermé-fermé. Dans ces conditions, l'enceinte du moteur représente une cavité dans laquelle des ondes de pression peuvent se propager de manière oscillatoire à des fréquences f_L modérées, proches de 20 Hz dans le cas des moteurs P-120 d'Ariane 5. Les modes longitudinaux excités s'établissent alors selon les différents modes harmoniques du système q_L et f_L dépend directement de la longueur de la chambre L et de la vitesse moyenne du son dans l'environnement moteur c_0 (Barrere [1960]).

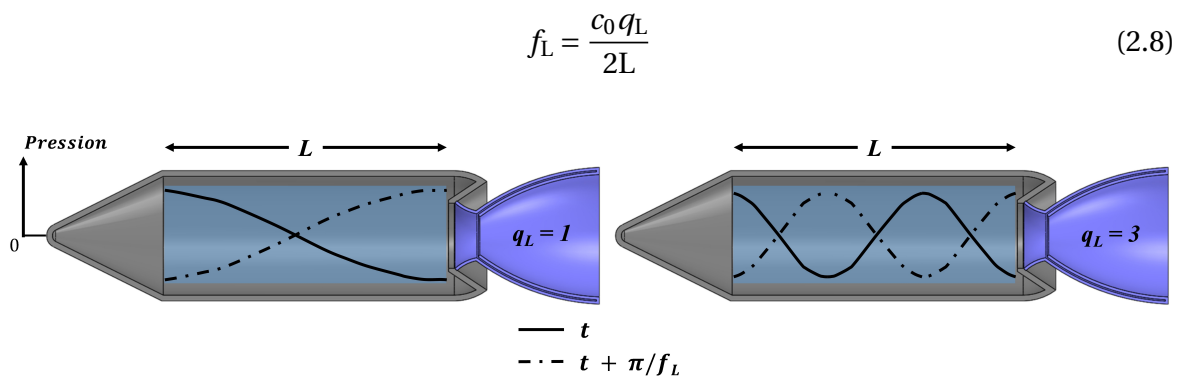


FIGURE 2.5 – Représentation simplifiée des modes acoustiques longitudinaux dans une chambre moteur.

L'analyse de l'acoustique des MPS met également en évidence l'existence d'une zone

où des fluctuations de vitesse s'initient sous l'effet d'ondes de vorticit  (Flandro [1995], Flandro et al. [2000]). Cette zone nomm e couche limite acoustique s' tend depuis la paroi du propergol solide et occupe potentiellement une partie importante de la chambre. Sa structure a  t  mod lis e analytiquement (Flandro et al. [2000]) et l' volution du module des fluctuations de vitesse est repr sent e en fonction de position radiale dans la chambre moteur dans la figure 2.6. Ainsi, dans cette zone, le champ de fluctuations de vitesse varie localement de mani re significative. En dehors de cette r gion, la fluctuation de vitesse est rapidement constante et r sulte d'effets purement acoustiques.

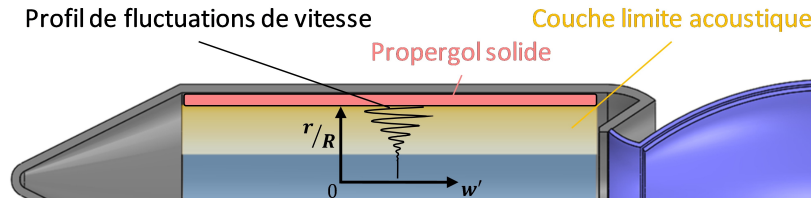


FIGURE 2.6 – Illustration de l' volution radiale du profil de fluctuations de vitesse dans la couche limite acoustique d'un MPS d'apr s Flandro et al. [2000].

2.3.2 Instabilit s hydrodynamiques

La conception des MPS est  labor e selon des contraintes diverses pour assurer des performances maximis es malgr  les limites impos es par les processus de r alisation et de fabrication en production. Ainsi, la g om trie interne des canaux pr sente des singularit s et est de surcro t  volutive lors du fonctionnement moteur (r gression surfacique). Notamment, le profil du propergol solide peut pr senter des variations de section et former des angles sur les parties lat rales du bloc (Fig. 2.7). Le chargement est  galement form  de plusieurs blocs de propergol solide r partis le long de la chambre moteur et g n ralement isol s par des protections thermiques interm diaires fixes (Fig. 2.7).

Les instabilit s hydrodynamiques de fonctionnement sont alors initi es par l'interaction de l' coulement principal des gaz propulsifs avec les  l ments internes et consistent en la formation de structures tourbillonnaires coh rentes au sein de la chambre. Plusieurs sources d' mission ont  t  report es et diff rents modes d'instabilit s hydrodynamiques peuvent alors  tre cit s :

- D tachement tourbillonnaire d'angle ou Vortex Shedding d'Angle (VSA)
- D tachement tourbillonnaire d'obstacle ou Vortex Shedding d'Obstacle (VSO)
- D tachement tourbillonnaire pari tal ou Vortex Shedding Pari tal (VSP)

La figure 2.7 sch matise les diff rents types d'instabilit s hydrodynamiques identifi s. Les modes VSA et VSO sont principalement issus des irr gularit s g om triques du propergol pr c demment  voqu es ( largissements, d tachements, obstacles, etc.) qui g n rent une couche de cisaillement et l'apparition de structures convect es par l' coulement moyen. Le mode VSP quant   lui est typique des moteurs de grande taille. Il est issu des perturbations pari tales de l' coulement g n r es par les injections radiales de gaz qui,   une position longitudinale critique x^* , produisent des instabilit s tourbillonnaires (Casalis et al. [1998], Griffond and Casalis [2001]).

Par effet de r sonance, ces m canismes instables peuvent se coupler aux modes acoustiques du moteur et g n rer des ondes de pression oscillatoires autoentret enes, on parlera alors d'accrochage a roacoustique. Dans ce cas, les structures produites sont

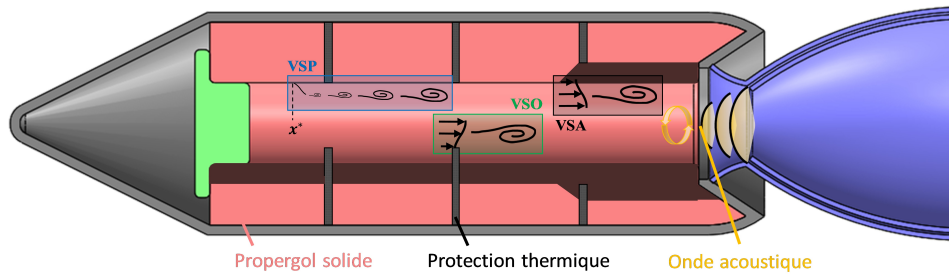


FIGURE 2.7 – Schéma représentatif des différents modes d'instabilités hydrodynamiques et du mécanisme aéroacoustique d'après Simoes [2006].

convectées par l'écoulement principal puis l'onde de pression ainsi formée est réfléchiée au niveau de la tuyère, favorisant ensuite de nouveaux détachements tourbillonnaires dans le canal interne. Ces phénomènes ont été mis en évidence de manière analytique (Flandro and Jacobs [1973]) puis largement analysés dans divers travaux expérimentaux et numériques pour améliorer les connaissances sur l'établissement et l'influence des mécanismes aéroacoustiques dans les MPS en fonctionnement (Culick and Magiawala [1979], Vuillot [1998], Anthoine et al. [2000], Fabignon et al. [2003], Ballereau et al. [2006], Culick and Kuentzmann [2006], Gallier et al. [2009a], Lacassagne [2017]).

2.3.3 Instabilités de combustion

Le couplage permettant l'entretien d'instabilités de combustion est schématisé par la figure 2.8. Dans le cadre des MPS, une instabilité de combustion résulte par définition du caractère fluctuant d'une réaction de combustion en réponse aux perturbations induites par le fonctionnement moteur, notamment des fluctuations de pression P' . Ce mécanisme peut alors se manifester par des variations du dégagement énergétique Q' de chaque élément réagissant dans un processus de combustion, en l'occurrence ici le propergol solide et les particules d'aluminium.

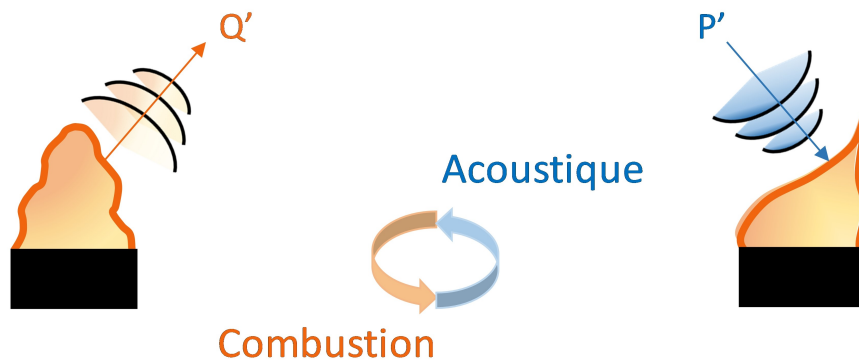


FIGURE 2.8 – Schéma représentatif du mécanisme d'instabilité de combustion.

Tout d'abord, comme évoqué précédemment, le taux de régression du propergol solide est modulé selon les conditions de fonctionnement et est directement corrélé avec la pression imposée dans la chambre moteur (Éq. 2.7). De ce fait, une relation s'établit entre les fluctuations de pression et la dynamique de combustion du bloc à travers une fonction de transfert qui conditionne finalement le débit de gaz propulsif ainsi que la poussée. Des mécanismes de couplage peuvent être également initiés entre l'acoustique de la chambre et la combustion du propergol qui devient alors instationnaire. Ce type de phénomène répond préférentiellement à des fréquences relativement élevées de

l'ordre de 1kHz (Kuentzmann [1991]) et concerne ainsi principalement les moteurs de faibles dimensions où le couplage acoustique peut être potentiellement amorcé. Dans les moteurs de grande taille, l'impact des fluctuations énergétiques liées à la réponse du propergol solide est cependant négligeable (Gallier et al. [2002]).

Ensuite, nommé ITHAC (Instabilité THERmoACoustique), un second type d'instabilité de combustion est lié à la réaction des particules d'aluminium distribuées dans l'ensemble de la chambre moteur. L'ITHAC sera décrite en détail dans la section 2.4 qui expose les enjeux relatifs à l'utilisation de particules d'aluminium dans certaines compositions de propergol solide.

2.4 Enjeux relatifs à l'utilisation des poudres d'aluminium

2.4.1 Influence de la phase dispersée sur la stabilité hydrodynamique

Les enjeux associés à la présence de particules réactives (gouttes d'aluminium en combustion) et inertes (résidus de combustion) sur la stabilité moteur sont à la fois complexes et essentiels. La problématique a donc été analysée dans différents travaux expérimentaux et numériques en découplant les effets relatifs à la phase réactive et à la phase inerte dans le but de statuer quant à leur influence respective sur les instabilités hydrodynamiques. Par ailleurs, plusieurs modes aéroacoustiques ont été explicités (VSA, VSO et VSP) et le rôle atténuateur ou amplificateur de l'écoulement multiphasique diffère également selon le type de perturbation considéré.

Pour la phase dispersée inerte, une atténuation et une amplification systématiques des ODP ont été observées respectivement pour les modes VSA et VSP. Ce constat est ensuite nuancé en fonction de la taille des particules considérées. Les éléments de plus faibles dimensions assurent une atténuation plus notable du mode VSA mais ont un effet amplificateur accentué en mode VSP (Dupays [1996], Dupays et al. [1996]).

Les études concernant la phase dispersée réactive reportent que, pour des ODP générées par un mode VSP, les particules de diamètre élevé ont un effet atténuateur alors que les plus petits éléments ont un effet amplificateur. De plus, il apparaît que l'atténuation des ODP permise par la présence de particules de grande taille est supérieure à l'amplification générée par les particules de diamètre réduit (Ballereau and Godfroy [2009], Dupays [2002]).

Ces résultats amènent vers une compréhension progressive du développement des ODP et des structures tourbillonnaires. Les particules en présence ont une influence certaine sur la relaxation et l'amplification des ondes oscillatoires. La granulométrie des éléments convectés est alors identifiée pour être un paramètre de premier ordre, mais la proportion de particules dans l'environnement moteur module également leur potentiel atténuateur ou amplificateur (Dupays [1996]). La réalité présente cependant une complexité accrue où les phases inerte et réactive polydispersées (particules d'aluminium initiales, agglomérats, résidus, etc.) sont chacune en interaction avec l'ensemble des instabilités hydrodynamiques combinées.

2.4.2 Instabilités de combustion thermoacoustique (ITHAC)

L'ITHAC correspond à une instabilité de combustion générée par la phase dispersée réactive d'aluminium dont la fréquence est couplée avec l'acoustique moteur. Ce mécanisme a été mis en évidence au travers d'études théoriques/numériques (Gallier

and Godfroy [2009], Gallier et al. [2009b], Genot et al. [2019]) et expérimentales (Orlandi et al. [2019], Gallier et al. [2019]). Il est alors démontré que le couplage thermoacoustique s'établit majoritairement selon les premiers modes acoustiques longitudinaux du moteur. De plus, dans les MPS, les particules d'aluminium réagissent dans une zone relativement proche de la surface du propergol et la zone de combustion coïncide en partie avec la couche limite acoustique décrite précédemment. Dans ces conditions, la combustion des particules d'aluminium est directement impactée par les fluctuations de vitesse locales (Fig. 2.9). Les paramètres de transport convectif et diffusif environnant deviennent variables et, en réponse, la surface de flamme, le taux d'évaporation ainsi que le dégagement énergétique des gouttes fluctuent (Ranz et al. [1952], Gallier et al. [2011]). L'évaluation de la correspondance entre l'épaisseur de combustion et la couche limite acoustique est d'autant plus fondamentale qu'il a été prouvé que la réponse des gouttes dispersées est plus sensible aux perturbations de vitesse qu'aux perturbations de pression et de température (Gallier et al. [2011]).

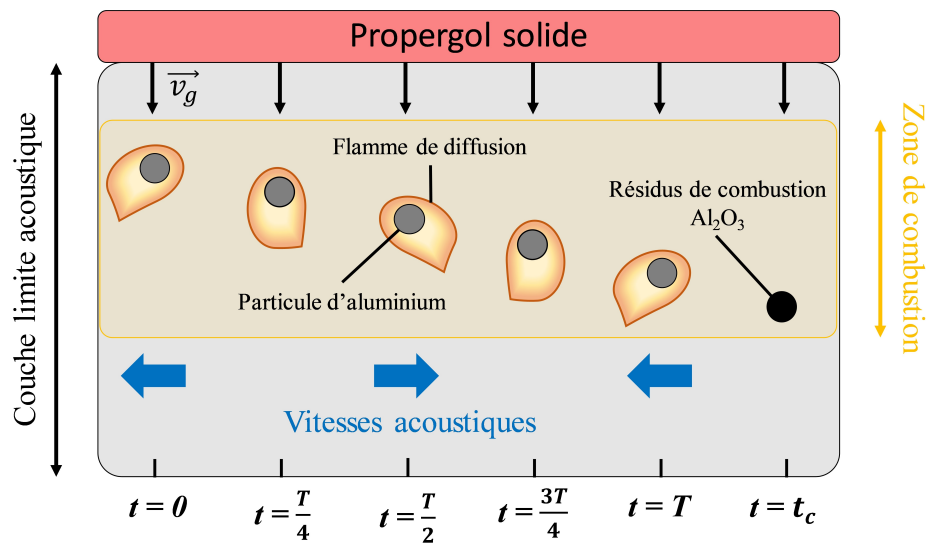


FIGURE 2.9 – Schéma représentatif du mécanisme d'instabilité de combustion thermoacoustique d'après Raun and Beckstead [1993].

Finalement, l'établissement des ITHAC dépend de différents facteurs. Tout d'abord, la géométrie interne du moteur établit les fréquences d'amorçage acoustiques. Ensuite, la vitesse d'éjection des gaz v_g , la température en proche surface et le temps de combustion des gouttes d'aluminium t_c , dépendant entre autres du diamètre initial des particules, définissent la position et l'épaisseur de la zone de combustion. Enfin, l'énergie de réaction de l'aluminium avec les oxydants du milieu ambiant est un paramètre fondamental qui permet de prédire les taux d'amplification potentiels (Gallier and Godfroy [2009]).

2.4.3 Enjeux connexes liés à la phase dispersée

Dans le processus de fonctionnement typique des MPS, l'ensemble des particules issues de la régression du bloc solide ont un déphasage thermique et cinétique avec l'écoulement propulsif principal. Ces hétérogénéités engendrent des transferts de quantité de mouvement et de chaleur qui représentent finalement des pertes énergétiques pour la phase gazeuse (couramment nommées pertes diphasiques). Par conséquent, la vitesse et la température de l'écoulement ainsi que les performances sont potentiellement réduites par rapport aux prévisions théoriques.

L'ensemble des résidus de combustion condensés sont convectés par les gaz propulsifs et sont également en interaction avec les structures mécaniques du système. En considération des hautes vitesses (> 1500 m/s) et des hautes températures (> 3500 K), l'écoulement principal est donc très érosif pour l'ensemble des composants du moteur, notamment pour la tuyère dont l'abrasion impacte directement le profil de poussée. Cette contrainte requiert l'emploi massif de protections ablatives qui réduisent l'efficacité massique et augmentent les coûts de réalisation. De plus, certaines géométries du moteur favorisent l'établissement de zones de recirculation où les éléments condensés s'accumulent sous l'effet de leur inertie, formant des flaques (Cesco et al. [1996], Godfroy et al. [1997]). Le fond arrière des MPS est particulièrement exposé à ce phénomène (Fig. 2.2) et des essais expérimentaux ont permis de mesurer la masse des dépôts évaluée approximativement à 2 tonnes dans cette zone (Fabignon [1997]). Cette accumulation de résidus est alors une masse inerte qui surcharge le système et diminue les performances globales.

L'interaction de la phase dispersée avec l'écoulement gazeux et l'environnement moteur suscite donc des inconvénients connexes qui altèrent les performances. La dimension des éléments convectés conditionne ici à la fois leur inertie cinétique et thermique, c'est pourquoi l'ensemble des processus évoqués restent principalement modulés par la taille des particules d'aluminium et celle des résidus de combustion. Enfin, le temps de combustion des gouttes d'aluminium t_c dépend également fortement des dimensions initiales des particules et les conditions de fonctionnement moteur définissent leur temps de résidence au sein du moteur t_{res} . Dans le cas où le temps de combustion est supérieur au temps de résidence des particules dans l'environnement moteur, l'énergie d'oxydation de la goutte d'aluminium n'est pas totalement exploitée, ce qui constitue une perte par combustion incomplète. D'autre part, cette masse imbrûlée au sein du moteur représente finalement une masse transportée inerte qui réduit également l'efficacité du chargement.

2.5 Bilan

Le principe de fonctionnement des moteurs-fusées consiste en l'éjection de gaz à des vitesses supersoniques pour générer des actions réciproques. La température, la pression et les propriétés intrinsèques des gaz propulsifs conditionnent les indicateurs de performance des moteurs, notamment la poussée et l'impulsion spécifique. Les MPS, de par leurs caractéristiques et leurs avantages, sont encore largement employés dans les secteurs civil et militaire. Leur fonctionnement se base sur la réaction chimique d'un matériau composite solide pour produire des gaz énergétiques. La charge solide réactive constitue un propergol et se compose de grains oxydants répartis de manière hétérogène dans un liant réducteur. L'aluminium est également intégré dans la composition des propergols solides sous forme de particules micrométriques afin notamment d'augmenter la densité énergétique du chargement et la température des gaz propulsifs, améliorant les performances.

Cependant, l'acoustique de la chambre interne des MPS peut favoriser l'amplification de différents phénomènes hydrodynamiques et thermiques qui altèrent la stabilité des MPS en fonctionnement. Ces contraintes doivent donc être considérées dès la phase de conception afin d'élaborer des solutions techniques appropriées. L'ajout de poudres d'aluminium dans la composition des propergols solides nécessite également de concevoir des solutions d'ensemble adaptées pour exploiter les capacités énergétiques de cet additif tout en limitant ses effets relatifs défavorables sur les structures (protections thermiques, protections ablatives, etc.).

La combustion des gouttes d'aluminium s'établit dans une zone relativement éloignée du front solide et produit des particules d'oxyde. Ainsi, la présence d'éléments condensés dans l'écoulement propulsif suscite alors des problématiques diverses notamment liées aux instabilités hydrodynamiques et thermiques dans la chambre de combustion, impactant les performances, la stabilité et la fiabilité des systèmes. En effet, le rôle de la phase dispersée sur la stabilité hydrodynamique des MPS s'avère complexe, pouvant simultanément relaxer et amplifier les ondes de pression générées par l'écoulement principal. De plus, il a été démontré que les particules d'aluminium en réaction pouvaient également initier et entretenir des instabilités de combustion thermoacoustiques qui induisent des variations de pression considérables dans la chambre moteur. Enfin, plusieurs phénomènes connexes sont aussi reportés (pertes diphasiques, accumulation d'oxyde, érosion, combustion incomplète, etc.) et, finalement, même si les poudres d'aluminium brûlant dans les MPS permettent une amélioration significative des performances, les effets relatifs à leur utilisation représentent des enjeux importants qui orientent différents axes de recherche.

Les recherches d'ores et déjà menées sur ce sujet démontrent que la granulométrie de la phase dispersée, le temps de combustion des gouttes et l'énergie de réaction de l'aluminium avec son milieu réactif sont des paramètres de premier ordre. La taille des particules quittant le propergol solide est principalement liée à la granulométrie des particules initiales et aux modifications induites par le processus d'agglomération des gouttes. L'expérimentation et la modélisation de cet aspect constituent par ailleurs un thème de recherche actuel (Devillers et al. [2017], Nugue et al. [2018]). Ensuite, la description complète du phénomène de combustion des gouttes d'aluminium est un enjeu fondamental pour définir les enthalpies impliquées, les taux de régression des gouttes en réaction, leurs temps de combustion et les dimensions des résidus d'alumine. L'ensemble de ces données permettrait alors de modéliser l'évolution des paramètres des phases dispersées réactive puis inerte pour enfin comprendre et simuler fidèlement les mécanismes relatifs aux instabilités acoustiques et à l'écoulement multiphasique.

Enjeux	Paramètres d'intérêt
Modulation des ODP	Taille des particules convectées Concentration en particule
ITHAC	Zone de combustion des particules Vitesse d'éjection des gaz propulsifs Température en surface du propergol solide Taille des particules avant combustion Temps de combustion des particules Enthalpie de réaction aluminium/oxydants
Pertes diphasiques	Taille des particules convectées Concentration en particule
Érosion - Accumulation de résidus	Taille des particules convectées Concentration en particule
Combustion incomplète	Taille des particules avant combustion Temps de combustion des particules

TABLEAU 2.4 – Synthèse des enjeux liés à l'utilisation des poudres d'aluminium dans les MPS et des paramètres d'action.

Le tableau 2.4 répertorie l'ensemble des enjeux relatifs à l'utilisation de poudre d'aluminium dans les MPS. La synthèse proposée met en évidence les paramètres

d'action élémentaires qui permettent de moduler les effets relatifs à la présence de la phase dispersée.

Comme il le sera présenté dans le prochain chapitre, de nombreux travaux ont permis d'améliorer considérablement la compréhension du phénomène de combustion des gouttes d'aluminium et sa modélisation. Néanmoins, différentes motivations dynamisent encore cette thématique de recherche. La thèse expérimentale conduite ici s'intègre alors dans la continuité des études menées à ce sujet pour contribuer à la description du phénomène et compléter les bases de données existantes. Elle sera principalement dédiée à l'analyse du processus de combustion des gouttes de tailles typiquement représentatives des particules initiales de grandes dimensions et des agglomérats. En effet, ces particules ont un potentiel énergétique plus conséquent et sont susceptibles de brûler loin de la surface du propergol solide. La caractérisation de leur mécanisme d'oxydation est donc d'un intérêt fondamental au regard des problématiques explicitées au préalable.

Chapitre 3

La combustion de l'aluminium

En considération des enjeux liés à la combustion des gouttes d'aluminium dans les MPS et, de manière plus générale, à l'utilisation du potentiel énergétique de cette réaction dans des thématiques diverses, ce phénomène a été considérablement étudié analytiquement et expérimentalement. Initialement, l'hypothèse d'une similitude entre la combustion d'une goutte d'aluminium et celle d'une goutte d'hydrocarbure liquide a été considérée. Cependant, les observations et les données expérimentales ne soutiennent pas entièrement cette théorie et ont démontré la spécificité du schéma réactionnel de ce métal qui, de surcroît, s'avère être directement dépendant des conditions imposées par l'environnement ambiant. La présence naturelle de l'oxyde d'aluminium en surface de la particule et son expansion durant la réaction semblent être des problématiques essentielles qui conditionnent la compréhension globale du processus. L'étude bibliographique de la littérature met en évidence les limites suscitées par l'exploitation des résultats expérimentaux répertoriés, notamment dans le cadre appliqué des moteurs-fusées, soulignant davantage l'intérêt de la continuité des recherches dédiées à ce sujet et celui de ces travaux de thèse. Le chapitre abordera donc la phénoménologie théorique de la combustion d'une goutte d'aluminium et présentera le modèle analytique inhérent de cette description avant de donner une vision d'ensemble de l'état actuel des connaissances basées sur les différentes constatations expérimentales.

3.1 Description élémentaire et modélisation

3.1.1 Modes de combustion

Le processus d'oxydation des particules métalliques est spécifique. Le métal réagit avec les espèces oxydantes du milieu ambiant et les produits de combustion sont principalement des oxydes métalliques liquides. Le mode de combustion dépend alors notamment des propriétés physiques et thermodynamiques du métal et de son oxyde. Dans le cas où la température de flamme est supérieure à la température de vaporisation du métal, la réaction peut possiblement s'effectuer en phase vapeur au sein d'une flamme de diffusion détachée. Dans le cas contraire, la réaction est restreinte à des réactions hétérogènes de surface entre le métal liquide ou solide et les oxydants gazeux. Or, pour la plupart des oxydes métalliques, l'enthalpie nécessaire à leur vaporisation-dissociation est supérieure à l'énergie de combustion du métal pour une même température de référence. L'équation 3.1 exprime cet aspect thermodynamique avec ΔH_{vap}^{Ox} l'enthalpie de vaporisation-dissociation de l'oxyde métallique, $\Delta H_{Ox, T_{ref}}^0$ l'énergie de combustion du

métal et $(H_{T_{vap}}^0 - H_{T_{ref}}^0)$ l'enthalpie requise pour élever la température de l'oxyde métallique de la température de référence T_{ref} à sa température de vaporisation-dissociation T_{vap}^{Ox} , considérant qu'aucune évaporation de l'oxyde n'est possible entre T_{ref} et T_{vap}^{Ox} .

$$\Delta H_{vap}^{Ox} + (H_{T_{vap}}^0 - H_{T_{ref}}^0) > \Delta H_{Ox, T_{ref}}^0 \quad (3.1)$$

Dans ces conditions, la température de flamme T_f est limitée par la température de vaporisation-dissociation de l'oxyde. Ainsi, la combustion en phase vapeur d'un métal ne peut finalement s'établir que si la température de vaporisation-dissociation de l'oxyde est supérieure à la température d'ébullition du métal T_{vap}^{metal} . Les équations 3.1 et 3.2 traduisent alors le critère de Glassman (Glassman and Yetter [2008]) qui fixe les conditions thermodynamiques requises pour l'activation et l'entretien du processus de combustion d'un métal en phase vapeur. Si le critère de l'équation 3.2 n'est pas valable, le métal réagira donc selon le mode de combustion hétérogène de surface.

$$T_{vap}^{Ox} > T_f > T_{vap}^{metal} \quad (3.2)$$

Dans le cas de l'aluminium (Al), l'oxydation du métal produit de l'alumine sous forme condensée (Al_2O_3). Les propriétés thermodynamiques du couple Al / Al_2O_3 sont rappelées dans le tableau 3.1. Selon les données reportées, l'aluminium peut donc potentiellement réagir en phase vapeur dans l'air à pression et à température ambiante.

Métal / Oxyde	T_{vap}^{metal} (K)	T_{vap}^{Ox} (K)	$\Delta H_{vap}^{Ox} + (H_{T_{vap}}^0 - H_{T_{ref}}^0)$ (kJ/mol)	$\Delta H_{Ox, T_{ref}}^0$ (kJ/mol)
Al / Al_2O_3	2791	4000	2550	-1676

TABEAU 3.1 – Propriétés thermodynamiques du couple Al / Al_2O_3 dans l'air à pression atmosphérique pour $T_{ref} = 298$ K (Glassman and Yetter [2008]).

Lors de la combustion de l'aluminium, le régime diffusif se caractérise donc par une température de flamme proche du point de vaporisation-dissociation de l'alumine, mais également par la production d'intermédiaires de réaction gazeux, notamment l'AlO. Néanmoins, pour des conditions ambiantes données, les mesures réalisées par Bazyn et al. [2007] et Badiola et al. [2011] sur des particules d'aluminium en réaction mettent en évidence une réduction de la température de la phase condensée ainsi que des niveaux d'émission AlO lorsque le diamètre initial des particules D_0 diminue. L'expérimentation montre alors l'existence d'un diamètre critique D_p^{cri} tel que $10 \mu m < D_p^{cri} < 20 \mu m$ en dessous duquel les valeurs de température de flamme tendent vers le point d'ébullition de l'aluminium. Les températures mesurées sont même inférieures à ce seuil pour des particules submicroniques. Ainsi, ce constat expérimental suggère que le mode de combustion de l'aluminium peut transiter d'un régime de diffusion à un régime de réaction de surface selon la taille de particule considérée. La figure 3.1 schématise les différents modes constatés et illustre l'influence de la taille des particules sur les niveaux de température et la phénoménologie de combustion.

Les conditions thermodynamiques orientent donc l'établissement du mode de combustion mais ne sont pas déterminantes à elles seules. Le facteur de taille des particules exprime implicitement l'influence de paramètres liés au transport et à la réaction des espèces qui interviennent typiquement lors du processus de combustion. En effet, pour une particule isolée réagissant en phase vapeur, le temps caractéristique de la cinétique chimique τ_{cin} est inférieur aux temps caractéristiques de diffusion massique et thermique τ_{diff} . Le transport diffusif détermine donc le taux de réaction de la goutte. A

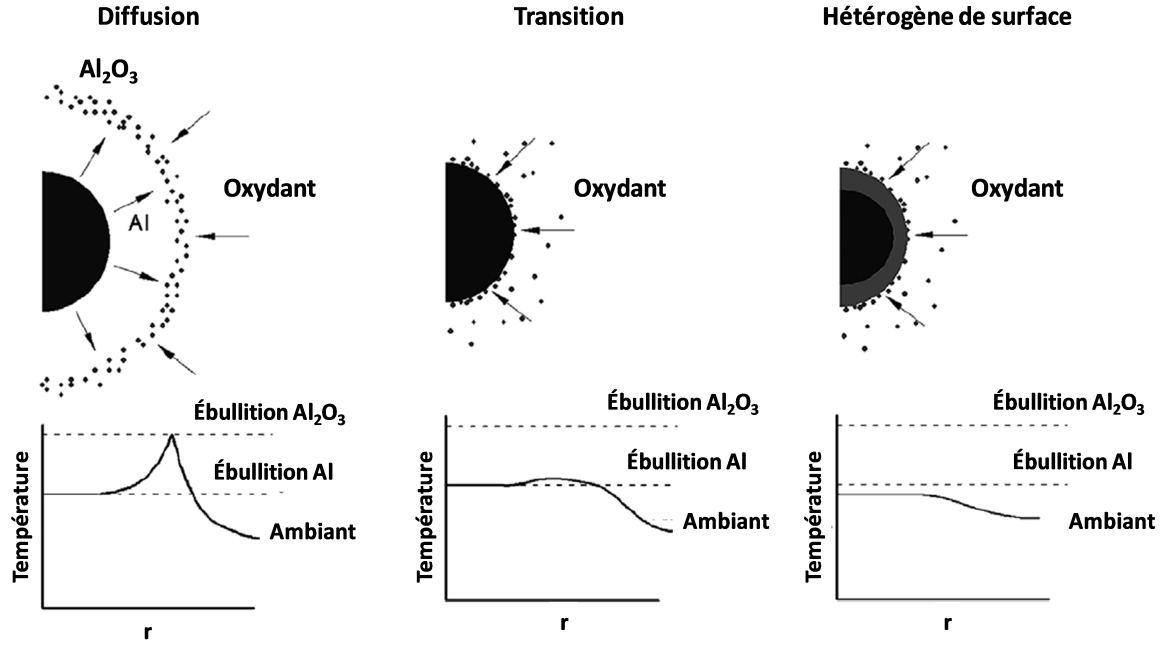


FIGURE 3.1 – Représentation schématic des modes de combustion observés dans la combustion de l'aluminium (Bazyn et al. [2007]).

l'inverse, si $\tau_{cin} > \tau_{diff}$, la cinétique réactionnelle limite le processus de combustion et la diffusion relativement rapide des espèces vers la goutte concentre les réactions (liquide/gaz) en surface. La concurrence entre les mécanismes cinétiques et diffusifs est décrite par le nombre de Damköhler Da^* . L'expression de Da^* est donnée par la relation 3.3 dans le cas où les diffusivités thermique α_g et massique $\mathcal{D}_g$ du milieu environnant sont similaires ($Le = \alpha_g / \mathcal{D}_g \approx 1$). La valeur unitaire du nombre de Damköhler définit donc la transition entre un régime contrôlé par la diffusion et un régime contrôlé par la cinétique de réaction.

$$Da^* = \frac{\tau_{diff}}{\tau_{cin}} = \frac{D_p i m_{Ox} k_s}{4 \mathcal{D}_g \ln(1 + i m_{Ox})} \quad (3.3)$$

Avec :

D_p : Diamètre de la particule

i : Coefficient stoechiométrique massique

$\mathcal{D}_g$: Diffusivité massique du gaz ambiant

m_{Ox} : Fraction massique d'oxygène dans l'environnement ambiant

k_s : Taux de réaction hétérogène par unité de surface (loi d'Arrhénius)

L'échelle caractéristique du libre parcours moyen dans le gaz environnant l doit être également considérée pour établir une compréhension complète de l'influence du diamètre des particules sur le processus de combustion (Mohan et al. [2009]). En effet, la comparaison entre ces deux dimensions permet de définir la validité d'une description considérant le système comme un milieu continu. Le critère adimensionnel qui exprime ce rapport est le nombre de Knudsen (Eq. 3.4). Ce paramètre est directement dépendant des conditions de température et de pression ambiantes (T_∞ et P_∞) et du diamètre moléculaire des constituants du gaz environnant D_m avec k_B la constante de Boltzmann (Eq. 3.5).

$$Kn = \frac{2l}{D_p} \quad (3.4)$$

$$l = \frac{k_B T_\infty}{\sqrt{2} \pi D_m^2 P_\infty} \quad (3.5)$$

Dans le cas où $Kn \ll 1$ la goutte peut être définie comme un élément macroscopique dans l'environnement gazeux continu. Pour un nombre de Knudsen proche de l'unité, cette considération n'est plus valable et le système doit être décrit par des modèles alternatifs basés sur le développement du modèle de Fuchs (Fuchs [1963], Filippov and Rosner [2000], Mohan et al. [2009]). Ces derniers introduisent notamment l'existence d'un régime transitoire intermédiaire entre les domaines continu et raréfié qui suppose l'existence d'une couche de Langmuir d'épaisseur δ ($\delta \approx l$) autour de la particule en combustion, caractérisée par une discontinuité de température prononcée (Kullmer [1996]). Dans ce modèle transitoire, l'expression des transferts de chaleur à l'intérieur de la couche de Langmuir est corrigée et formulée selon les équations de libre parcours moléculaire alors que les relations du modèle continu sont valables en dehors de cette couche vers le milieu ambiant. La figure 3.2 donne un aperçu schématique de la configuration et des différents flux énergétiques considérés.

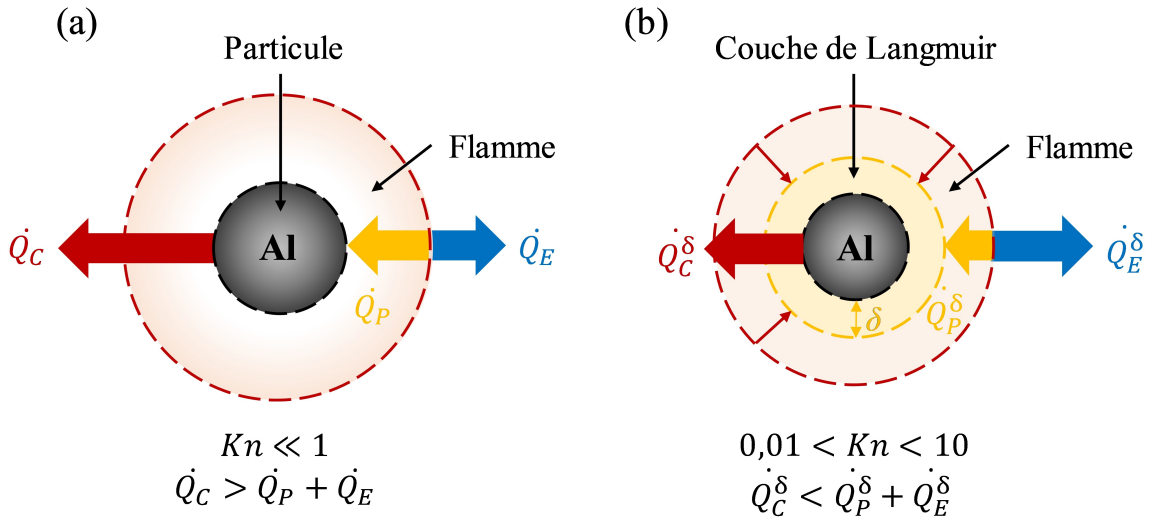


FIGURE 3.2 – Représentation schématique d'une particule en combustion. (a) régime de diffusion décrit par un modèle continu - (b) régime intermédiaire décrit par un modèle transitoire.

En régime intermédiaire, la taille de la particule peut alors constituer un seuil dans l'équilibre énergétique du système. Pour entretenir une combustion en phase vapeur, la puissance de réaction $\dot{Q}_C$ doit être supérieure à la somme des flux d'énergie dissipés de la flamme vers le milieu environnant $\dot{Q}_E$ et de la flamme vers la particule $\dot{Q}_P$ (Eq. 3.6). Par conservation, $\dot{Q}_C$ est corrélé au taux d'évaporation massique de la goutte $\dot{m}_{Al}$ qui est lui-même fonction de $\dot{Q}_P$ et de l'enthalpie de vaporisation de l'aluminium ΔH_{vap}^{Al} (Eq. 3.7).

$$\dot{Q}_C \geq \dot{Q}_P + \dot{Q}_E \quad (3.6)$$

$$\dot{Q}_C = m_{Al} \Delta H_{Ox} = \frac{\dot{Q}_p}{\Delta H_{vap}^{Al}} \Delta H_{Ox} \quad (3.7)$$

Il est alors reporté que lorsque le diamètre de la particule devient suffisamment faible ($0.01 < Kn < 10$), les échanges convectifs estimés au sein de la couche de Langmuir $\dot{Q}_p^\delta$ sont significativement réduits en comparaison avec les estimations du modèle continu et $\dot{Q}_p^\delta < \dot{Q}_p$. Cette diminution serait la conséquence directe de l'abaissement du coefficient adimensionnel d'échange convectif (nombre de Nusselt) dans cette zone (Filippov and Rosner [2000], Mohan et al. [2008]). Dans ces conditions, pour une température de flamme bornée et en négligeant la contribution de la puissance rayonnée, l'apport énergétique $\dot{Q}_p^\delta$ devient progressivement insuffisant pour l'entretien de la combustion en phase vapeur et la goutte constitue un puits thermique, modifiant par conséquent le mode de combustion.

Le critère de Glassman est donc valable pour l'aluminium et son oxyde l'alumine, le métal peut donc potentiellement réagir en phase vapeur. Néanmoins, plusieurs modes de combustion distincts ont été identifiés expérimentalement et la taille de la particule en réaction est un paramètre déterminant qui module le rapport entre le temps caractéristique de la diffusion massique et celui de la cinétique chimique. Les transferts thermiques qui gouvernent la réaction peuvent être également altérés dans le cas où le diamètre de la goutte est comparable au libre parcours moyen du milieu ambiant. Ainsi, pour une particule brûlant dans un environnement donné avec un diamètre D_p suffisamment grand, la cinétique de réaction est rapide et la combustion est uniquement limitée par la diffusion des espèces, le métal réagit donc en phase gazeuse avec les oxydants ambiants au sein d'une flamme enveloppe dont la température est supérieure au point de vaporisation de l'aluminium mais limitée par la température de vaporisation-dissociation de l'alumine. Dans le cas où le diamètre est de faible dimension, la cinétique chimique devient limitante et restreint le processus à des mécanismes réactionnels hétérogènes en surface de la particule dont l'énergie libérée est insuffisante pour permettre l'évaporation du métal. Un mode de combustion transitoire peut également s'établir si le temps caractéristique des mécanismes de transport est similaire à celui de la cinétique de réaction ($Da^* \approx 1$). Dans ces conditions intermédiaires, la réaction peut s'établir en phase vapeur mais des espèces oxydantes gazeuses parviennent parallèlement à diffuser jusqu'à la goutte, provoquant des réactions hétérogènes de surface. Par conséquent, l'énergie de réaction disponible ainsi que la température de flamme sont restreintes et, en raison de sa température limitée, la flamme s'établit en proche surface. D'autre part, des effets relatifs à l'établissement de la couche de Langmuir peuvent aussi influencer la balance énergétique du processus de combustion lorsque la taille des particules tend vers celle du libre parcours moyen du milieu réactif, contribuant alors au rapprochement de la flamme vers la goutte.

3.1.2 Phénoménologie du processus de combustion de l'aluminium

En considération de la taille des particules d'aluminium étudiées dans ces travaux (particules initiales de grand diamètre et agglomérats dans les MPS), le processus de combustion est attendu pour s'établir en phase vapeur en régime de diffusion. Tout d'abord, comme évoqué précédemment, la couche passive d'alumine qui recouvre naturellement l'aluminium contraint l'initiation de la combustion du métal. Puis, la température de flamme étant théoriquement limitée par la température de vaporisation-dissociation

de l'alumine, l'oxyde d'aluminium subsiste sous forme liquide durant la réaction et constituera finalement un résidu solide après extinction. Par ailleurs, il est généralement admis que la goutte d'aluminium se vaporise progressivement et régresse dans sa totalité durant la combustion. La figure 3.3 illustre le processus de combustion d'une goutte d'aluminium en régime de diffusion.

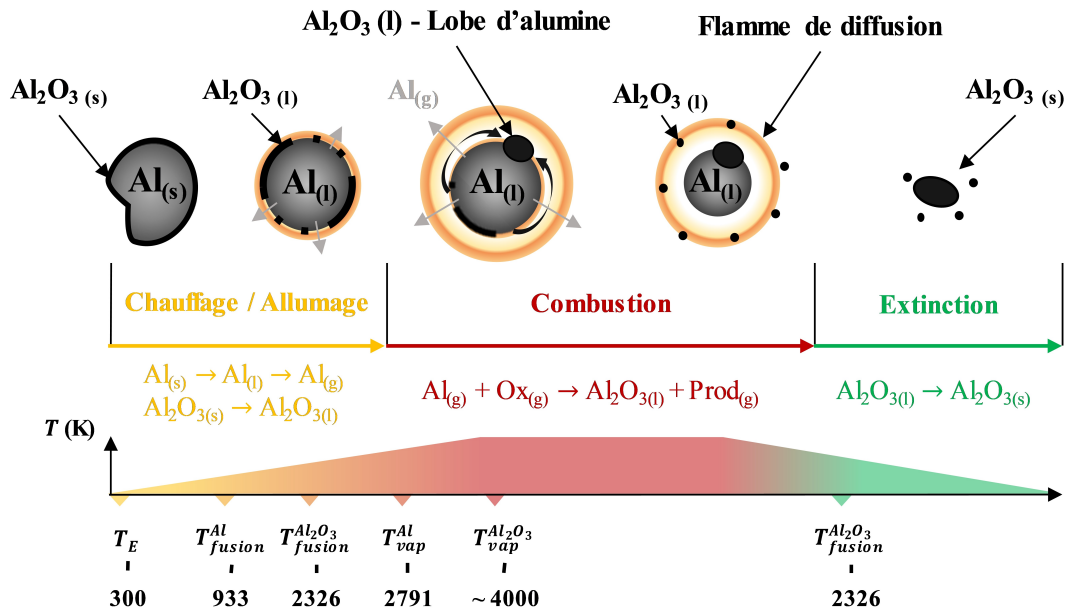


FIGURE 3.3 – Représentation schématique du processus de combustion conventionnel d'une particule d'aluminium en régime de diffusion.

Allumage

De manière plus détaillée, la réaction de l'aluminium avec les oxydants du milieu ambiant est inhibée par la passivité de couche solide d'alumine. L'initiation de la combustion coïncide donc approximativement avec la rupture de cette protection inerte. Une quantité d'énergie est alors consommée initialement pour permettre l'élévation en température de l'ensemble solide. Dans le cadre des MPS cette énergie est issue des gaz propulsifs de haute température générés par la combustion du propergol solide. L'aluminium solide atteint alors son point de fusion $T_{\text{fusion}}^{\text{Al}}$ à 933 K et devient liquide. L'augmentation du volume de l'aluminium suite au changement de phase induit alors des sollicitations mécaniques internes sur la couche solide d'alumine. Il est ensuite communément admis, pour les particules micrométriques, que l'allumage se produit à des températures proches du point de fusion de l'alumine $T_{\text{fusion}}^{\text{Al}_2\text{O}_3}$ à 2326 K. A ces niveaux de température, la couche d'oxyde se rompt sous l'effet des contraintes thermo-mécaniques et se liquéfie. L'aluminium liquide en phase d'évaporation est ainsi exposé à l'environnement réactif et cette phase initie le processus de combustion (Fig. 3.3).

Toutefois, il est à noter que certaines études expérimentales reportent des températures d'allumage considérablement inférieures à $T_{\text{vap}}^{\text{Al}_2\text{O}_3}$ pour les particules micrométriques, de l'ordre de 1300 K (Trunov et al. [2005]). Comparativement, ces valeurs peuvent diminuer davantage pour les particules nanométriques et certains travaux présentent dans ce cas un allumage de la combustion à des températures proches de 900 K (Parr et al. [2003]). Le graphique (Fig. 3.4) regroupe et présente les différents résultats expérimentaux obtenus sur les conditions d'allumage (Huang et al. [2009]). Ces observations suggèrent que l'aluminium est en contact avec le milieu ambiant avant la fusion totale de la

couche d'alumine et plusieurs mécanismes sont susceptibles d'expliquer ce constat. Rai et al. [2004] montre notamment que les contraintes thermomécaniques générées sur l'enveloppe d'alumine par la fusion de l'aluminium sont particulièrement accrues dans le cas des nanoparticules. L'analyse de Trunov et al. [2005] met en évidence des transitions polymorphiques de la phase Al_2O_3 qui modifient la densité de l'oxyde et crée des ruptures locales de la couche passive. Enfin, ces faibles températures d'inflammation peuvent également être attribuées à la présence de réactions de surface hétérogènes (Maček [1967]).

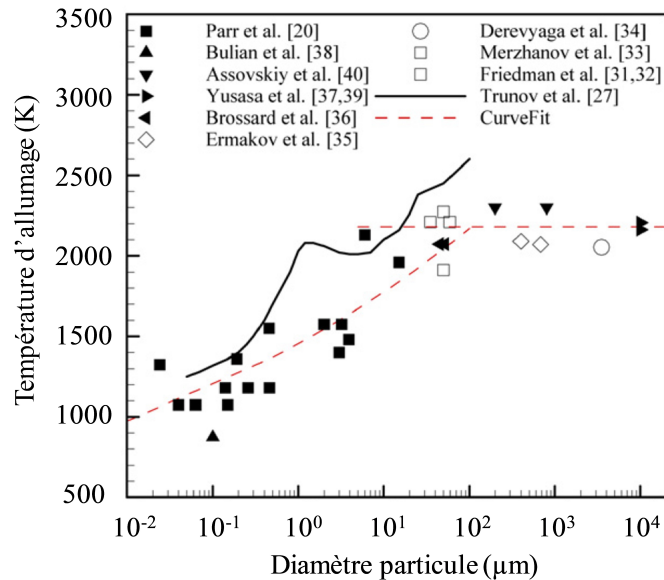


FIGURE 3.4 – Synthèse des résultats expérimentaux sur la température d'allumage de l'aluminium en fonction du diamètre des particules (Huang et al. [2009]).

Combustion

La couche inerte d'alumine étant rompue et le processus de combustion étant initié, l'aluminium est produit sous forme vapeur à la surface de la goutte où ses proportions sont supérieures à celles dans le milieu ambiant. Les gradients de concentration permettent la diffusion du combustible et génèrent un flux d'espèces depuis l'interface vers l'extérieur (écoulement de Stefan). Ce transfert induit l'évaporation et la régression progressive de la goutte. L'aluminium gazeux vaporisé réagit avec les différents oxydants en présence et une flamme de diffusion détachée de la goutte se développe ainsi après l'inflammation (Fig. 3.3). Comme évoqué précédemment (sous-section 3.1.1), la réaction libère une énergie qui est ensuite dissipée vers le milieu ambiant et vers la goutte. Le flux de chaleur reçu par la particule contribue à entretenir le processus d'évaporation en apportant l'énergie requise pour vaporiser l'aluminium et maintenir la température de la goutte à sa température d'ébullition.

Le schéma cinétique de la réaction de l'aluminium se décompose en réactions successives et le mécanisme réactionnel en phase vapeur consiste tout d'abord en la formation de produits intermédiaires gazeux tels que Al_2O_2 , Al_2O et AlO . Des réactions de surface entre les sous-oxydes et l'aluminium liquide peuvent également contribuer à la formation d'espèces intermédiaires. Les oxydes d'aluminium produits réagissent ensuite avec le comburant pour se transformer finalement en $\text{Al}_2\text{O}_{3(l)}$ sous la forme d'un nuage homogène de particules submicroniques (Fig. 3.3). Par conséquent, comme le reportent des travaux expérimentaux et numériques (Bucher et al. [2000]), la structure

de flamme d'une particule d'aluminium en combustion en régime de diffusion est donc complexe (Fig. 3.5). L'énergie de la combustion étant majoritairement issue de la formation d' $\text{Al}_2\text{O}_3(l)$, les limites de la flamme peuvent donc être définies par l'intervalle de réaction de l'AIO. Ainsi, détachée de la surface de la goutte d'aluminium, la zone de réaction peut s'étendre avec un rayon 2 à 5 fois supérieur au rayon de la goutte.

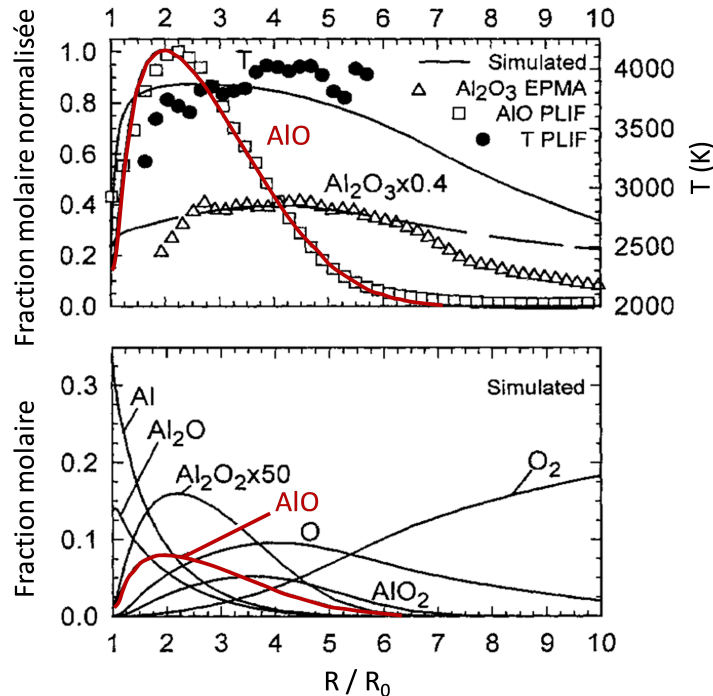


FIGURE 3.5 – Structure radiale de la flamme d'une particule d'aluminium en réaction dans un milieu oxydant (21% O_2 / 79% Ar) en régime de diffusion (Bucher et al. [2000]).

Le rayonnement émis lors de la combustion correspond à l'ensemble des émissions dues aux espèces condensées et gazeuses. La goutte d'aluminium en combustion ainsi que les particules d'alumine produites dans la flamme constituent des corps noirs dont la radiation thermique peut être estimée à partir de la loi de Planck. Comme l'illustre la figure 3.6 représentant le spectre d'émission d'une flamme d'aluminium dans l'air, la contribution des gaz est aussi relativement importante, en particulier celle de l'intermédiaire AIO qui est majoritaire.

Enfin, supposant que le processus de consommation des particules d'aluminium durant la combustion soit similaire à celui des gouttes d'hydrocarbure, la taille de la goutte de métal régresse progressivement avec un taux de vaporisation contrôlé par le transport diffusif des espèces réactives et de la chaleur. Suivant cette description théorique, la goutte réagit dans sa totalité et le temps de combustion t_c de la particule d'aluminium est directement corrélé au diamètre initial de la goutte D_0 par la loi du D^2 et $t_c \propto D_0^2$.

Le lobe d'alumine

Dès le début de la phase de combustion, la formation du lobe d'alumine peut être observée (Marion et al. [1996]). L'aluminium et son oxyde étant non miscibles, l'alumine liquide se rétracte sous l'effet des tensions superficielles et forme un lobe sur la surface de la goutte d'aluminium en réaction (Fig. 3.3). L'ensemble formé par la goutte d'aluminium et le lobe d'alumine est généralement considéré comme un corps

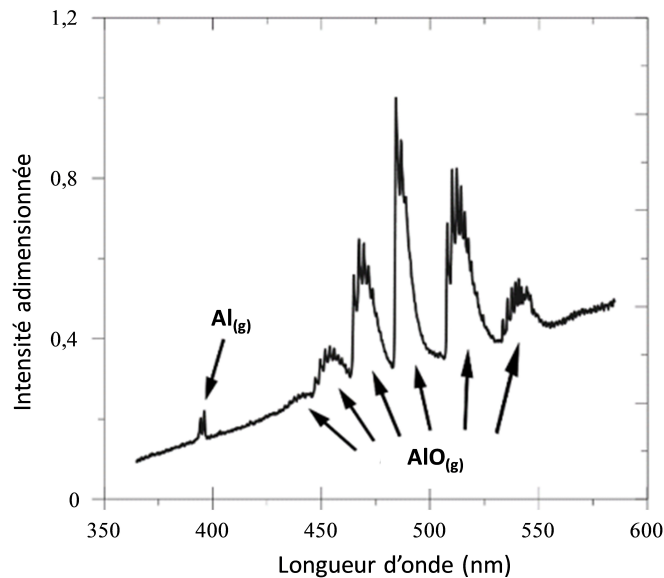


FIGURE 3.6 – Spectre d'émission d'une flamme d'aluminium dans l'air (Laboureur [2020]).

thermiquement mince dont la température est uniforme, proche du point d'ébullition du métal dans les conditions ambiantes données. A ces niveaux de température, le lobe d'alumine subsiste à la surface de la goutte métallique durant la combustion et peut représenter une discontinuité locale dont les propriétés intrinsèques sont différentes de l'aluminium, de plus, le lobe est un obstacle pour le débit de combustible vaporisé au niveau de la zone recouverte. L'oxyde altère donc potentiellement la répartition des espèces, des températures ou encore des forces (poussée produite par le débit massique d'aluminium).

Il est également observé que la taille du lobe d'oxyde peut s'accroître pendant le processus de combustion (Dreizin [1996]). Ainsi, après extinction, l'alumine liquide devient solide avec l'abaissement de la température et l'ensemble résiduel est alors composé de particules d'alumine submicroniques et du lobe d'oxyde dont la taille peut être comparable aux dimensions de la particule d'aluminium initiale (Fig. 3.3).

Au regard des hypothèses suggérées par la loi du D^2 , la présence effective d'un lobe d'oxyde croissant semble constituer une première limite à l'analogie entre la combustion d'une particule d'aluminium et celle d'une goutte de combustible liquide. Ainsi, afin d'apprécier la représentativité de ce modèle, la sous-section suivante en introduit les bases théoriques et présentera notamment la définition inhérente du temps de combustion des gouttes qui est un paramètre de premier ordre dans le cadre des MPS. Les adaptations issues de ce modèle pour la combustion des gouttes d'aluminium seront également abordées pour apporter une compréhension globale des mécanismes impliqués et rendre compte de l'avancement actuel des travaux de modélisation.

3.1.3 Modélisation de la combustion de l'aluminium

Loi du D^2

Le modèle décrit l'évaporation d'une goutte sphérique de température uniforme isolée dans un milieu gazeux statique. L'environnement éloigné de la goutte est composé d'un oxydant unique à température et pression homogènes. Les transferts massiques et thermiques s'établissent à l'interface liquide/gaz et régissent le processus considéré en

régime quasi-stationnaire. La régression de la goutte étant supposée uniforme, l'évolution temporelle de sa géométrie peut être décrite par les équations de conservation et de continuité à l'interface.

Le débit massique de combustible $\dot{m}_l$ est défini par l'équation 3.8 avec r_p le rayon de la particule en réaction et ρ_l la masse volumique du combustible en phase liquide.

$$\dot{m}_l = -\frac{d}{dt}\left(\frac{4}{3}\pi r_p^3 \rho_l\right) = -4\pi \rho_l r_p^2 \frac{dr_p}{dt} \quad (3.8)$$

Si l'on exprime l'équation 3.8 en fonction du diamètre de la goutte D_p , l'expression de la variation temporelle de D_p^2 peut être déduite :

$$\dot{m}_l = -\frac{\pi D_p \rho_l}{4} \frac{dD_p^2}{dt} \quad (3.9)$$

$$\frac{dD_p^2}{dt} = -\frac{4\dot{m}_l}{\pi D_p \rho_l} \quad (3.10)$$

Considérant un débit uniforme sur la totalité de la surface de la goutte durant le processus de combustion, la conservation de la masse suppose la relation suivante entre le débit massique de combustible liquide $\dot{m}_l$ et le débit de combustible gazeux $\dot{m}_g$ avec ρ_g la masse volumique du carburant en phase gaz et v_g sa vitesse d'éjection en surface :

$$\dot{m}_l = \dot{m}_g = \rho_g v_g 4\pi D_p^2 \quad (3.11)$$

L'équation de continuité des espèces ainsi que l'équation de conservation de l'énergie sont respectivement rappelées et permettent d'exprimer le débit de combustible gazeux à la surface de la goutte :

$$r^2 \rho_g v_g \frac{dY_F}{dr} = \frac{d}{dr} \left(r^2 \rho_g \mathcal{D}_g \frac{dY_F}{dr} \right) \quad (3.12)$$

$$r^2 \rho_g v_g \frac{dC_p T_g}{dr} = \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{\lambda_g}{C_p} \frac{dC_p T_g}{dr} \right) \quad (3.13)$$

Ces relations introduisent notamment les paramètres fondamentaux qui déterminent les transports diffusifs massique et thermique dans la phase gazeuse de l'environnement de la goutte :

Y_F : Fraction massique de combustible

$\mathcal{D}_g$: Coefficient de diffusion massique binaire combustible\oxydant

T_g : Température

C_p : Capacité thermique massique

λ_g : Conductivité thermique

Dans les conditions théoriques, le nombre de Lewis est unitaire dans les gaz ($Le \approx 1$) :

$$Le = \frac{\alpha_g}{\mathcal{D}_g} = 1 \quad (3.14)$$

Avec α_g la diffusivité thermique des gaz telle que :

$$\alpha_g = \frac{\lambda_g}{\rho_g C_p} \quad (3.15)$$

Ainsi, après plusieurs intégrations successives des équations de conservation selon r l'expression de $\dot{m}_g$ devient :

$$\dot{m}_g = \rho_g 2\pi D_p \mathcal{D}_g \ln(1 + B_M) = \rho_g 2\pi D_p \alpha_g \ln(1 + B_T) \quad (3.16)$$

L'expression 3.16 introduit alors le nombre de Spalding B qui caractérise les transports diffusifs dans la phase gazeuse et dont la définition peut varier selon le type de transfert considéré (nombre de Spalding massique B_M et nombre de Spalding thermique B_T). Dans l'hypothèse d'un nombre de Lewis unitaire, sa valeur reste néanmoins identique ($B = B_M = B_T$) et son expression peut être définie par l'équation 3.17. T_∞ et T_s correspondent alors respectivement aux températures du milieu ambiant et de l'environnement en proche surface de la goutte, $Y_{O,\infty}$ est la fraction massique d'oxydant contenue dans le milieu ambiant, Δh_r est l'enthalpie de réaction, Δh_v est la chaleur latente de vaporisation du combustible et $(F/O)_{st}$ est le rapport des fractions massiques carburant/oxydant à la stœchiométrie.

$$B_T = \frac{C_p(T_\infty - T_s) + (F/O)_{st} Y_{O,\infty} \Delta h_r}{\Delta h_v} \quad (3.17)$$

En combinant l'équation 3.10 et l'équation 3.16, l'expression du taux de la variation temporelle de D_p^2 devient :

$$\frac{dD_p^2}{dt} = \frac{8\rho_g \alpha_g}{\rho_l} \ln(1 + B) = k \quad (3.18)$$

Finalement, si k peut être considéré comme constant, l'expression 3.18 peut être directement intégrée selon le temps t et la relation suivante est obtenue avec D_0 le diamètre initial de la goutte au temps $t = 0$:

$$D_p^2(t) = D_0^2 - kt \quad (3.19)$$

La constante k ainsi exprimée correspond à la constante d'évaporation de la goutte dans le cadre de la loi D^2 . Le temps de combustion t_c est alors défini pour une régression totale de la goutte ($D_p^2(t = t_c) = 0$) et est donné par l'équation suivante :

$$t_c = \frac{D_0^2 \rho_l}{8\rho_g \alpha_g \ln(1 + B)} \quad (3.20)$$

En considération des spécificités du processus de combustion de l'aluminium, différé-

rents facteurs restreignent sa description à partir du modèle de combustion des gouttes d'hydrocarbure. Le lobe d'alumine modifie la géométrie de l'ensemble qui n'est donc plus sphérique et la régression de la goutte ne peut plus être considérée comme étant uniforme, de surcroît avec l'accumulation probable de produits condensés sur la goutte. Ensuite, le modèle n'intègre pas la contribution de l'énergie dissipée par la condensation de l' Al_2O_3 dans la flamme qui augmente significativement le dégagement de chaleur issu de la combustion. Les réactions de surface hétérogènes qui peuvent intervenir durant la combustion de l'aluminium ne sont également pas considérées dans la modélisation des gouttes d'hydrocarbure. Enfin, l'hypothèse d'un oxydant unique n'est pas applicable dans le cas des MPS où plusieurs oxydants sont à considérer.

Cependant, le modèle de la loi D^2 et la définition élémentaire du processus qu'il suggère instaurent les fondements nécessaires à la compréhension de la combustion de l'aluminium et servent de référence pour l'interprétation des résultats d'étude et le développement de théories plus représentatives.

Modèles alternatifs

Des modèles alternatifs ont donc été développés selon les observations expérimentales pour proposer une définition représentative de la combustion d'une goutte d'aluminium. Le modèle de Law [1973] est une adaptation directe du modèle de flamme de diffusion qui intègre le transport d'une fraction des oxydes $\text{Al}_2\text{O}_{3(g)}$ vers la goutte et leur condensation en surface.

Servant de base, ce modèle a été étendu par Brooks and Beckstead [1995], Marion et al. [1996] et DesJardin et al. [2005] pour modéliser la réaction de l'aluminium avec des oxydants multiples.

Les travaux numériques de Beckstead et al. [2005] et de Washburn et al. [2010] ont ensuite permis d'élaborer un modèle avancé qui intègre les différents mécanismes intervenants dans la réaction (cinétique de surface, vaporisation, diffusion et condensation) avec un schéma réactionnel détaillé. L'accumulation d'oxydes condensés sur la surface de la goutte est aussi modélisée ainsi que la distorsion des profils de température et d'espèces induite par la présence du lobe. L'effet de la pression est pris en compte au travers de la variation des propriétés physiques et thermodiffusives des espèces en phase vapeur (capacité calorifique, conductivité thermique, masse volumique, etc.). La température d'ébullition de l'aluminium est également corrélée à la pression tout comme la température de vaporisation-dissociation de l'alumine qui borne la température de flamme. Enfin, la cinétique chimique est considérée mais ne peut être complètement définie. Les différents modèles sont effectivement restreints par la précision et la disponibilité des données concernant les vitesses de réaction, notamment à haute température.

Le manque d'information et de mesures sur la combustion de l'aluminium est par ailleurs limitant. Même si les modèles actuels sont évolués, leurs descriptions se basent encore sur certaines hypothèses et cette problématique met alors en évidence l'importance de la pérennité et de l'actualisation des travaux expérimentaux. L'expérimentation est donc une nécessité pour à la fois statuer sur la représentativité des modèles mais aussi pour développer et alimenter ces derniers.

3.2 Constats empiriques sur la combustion de l'aluminium

3.2.1 Moyens d'analyse expérimentaux

Les travaux pionniers de Friedman and Maček [1962] sont basés sur l'utilisation d'un brûleur à flamme plate qui permet d'initier la réaction de particules d'aluminium afin d'obtenir des informations quantitatives et qualitatives sur leur combustion. De nombreux dispositifs expérimentaux ont ensuite été développés pour améliorer progressivement la compréhension de la combustion de l'aluminium et sa caractérisation grâce à des diagnostics divers. La figure 3.7 illustre de manière non exhaustive l'ensemble des moyens d'analyse majoritairement employés pour l'étude de la combustion de l'aluminium.

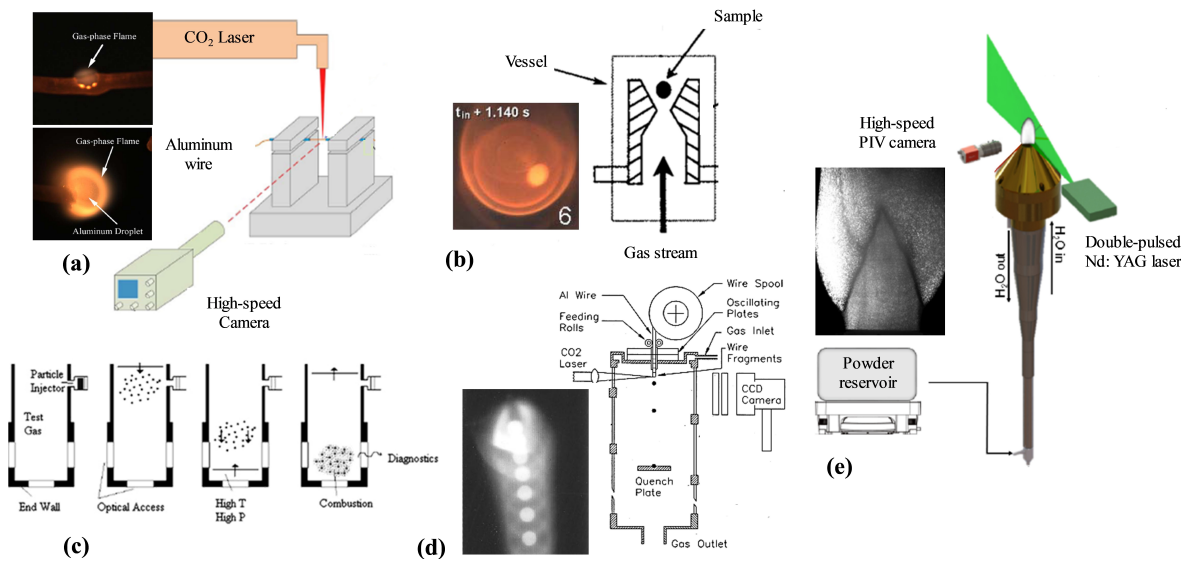


FIGURE 3.7 – Schémas des dispositifs expérimentaux utilisés pour l'analyse de la combustion de l'aluminium. (a) Fil d'aluminium sur support (Feng et al. [2016]) - (b) Lévitateur aérodynamique (Sarou-Kanian et al. [2003]) - (c) Tube à choc (Lynch et al. [2009]) - (d) Enceinte de combustion à chute libre (Bucher et al. [1999]) - (e) Brûleur à poudre (Lomba et al. [2019]).

Les brûleurs permettent alors d'étudier la combustion des poudres métalliques dans les produits de réaction d'une flamme de prémélange. Basés sur cette technologie, les travaux plus récents de Lomba et al. [2019] ont mis en œuvre un brûleur à poudre qui génère une flamme pure d'aluminium entretenue dans l'air (Fig. 3.7 (e)). Les tubes à choc ont souvent été utilisés et permettent aussi d'analyser la combustion de nuage de particules (Servaites et al. [2001], Bazyn et al. [2006], Lynch et al. [2009]). Ce dispositif consiste à générer une onde de choc qui, après réflexion, élève de manière significative la pression et la température du gaz d'étude, initiant la réaction des particules en suspension (Fig. 3.7 (c)). La combustion de particules isolées a également été expérimentée (Wilson Jr and Williams [1971], Prentice [1974], Bucher et al. [1999], Sarou-Kanian et al. [2003], Feng et al. [2016]) en utilisant différents dispositifs tels que les lévitateurs aérodynamiques et les enceintes de combustion à chute libre ou encore en disposant un échantillon du métal sur un support physique (Fig. 3.7 (b)(d)(a)). Dans ces configurations, un laser ou un arc électrique sont généralement employés afin d'apporter l'énergie requise pour l'allumage de la particule.

Ainsi, plusieurs types de dispositifs ont été développés pour permettre l'étude de la combustion de l'aluminium, cependant, cette diversité restreint la comparaison des

résultats obtenus. En effet, les conditions expérimentales varient et ont une influence potentielle sur le processus de combustion. Les méthodes utilisées peuvent directement affecter les transports de chaleur et d'espèces. Les effets de groupe supposés dans le cas des brûleurs ou des tubes à choc peuvent considérablement modifier les transferts énergétiques et la disponibilité de l'oxydant autour des gouttes en comparaison avec les systèmes isolant une particule unique. Aussi, comparativement, les échanges convectifs générés dans le cas des lévitateurs aérodynamiques ou des particules en chute libre induisent des pertes thermiques additionnelles différentes de celles dues aux échanges par conduction présentes pour les échantillons métalliques positionnés sur un support physique. Par conséquent, l'extrapolation des données entre les différents travaux réalisés n'est pas systématiquement pertinente. D'autre part, l'étude de la combustion d'une goutte d'aluminium micrométrique reste complexe et requiert une haute résolution spatio-temporelle pour obtenir des informations dynamiques détaillées sur les phénomènes. Néanmoins, basées majoritairement sur des diagnostics optiques, les mesures réalisées ont permis d'établir une base de connaissances sur les paramètres de combustion, la chimie de réaction et la phénoménologie du processus.

Enfin, des études sont basées sur l'analyse de la combustion de particules d'aluminium directement issues d'un bloc de propergol solide dans une enceinte close (Davis [1963], Belyaev et al. [1968], Melcher et al. [1999]). Ce type d'analyse reste limitée par la production conséquente de fumées provenant de la combustion des ergols qui limite l'emploi des diagnostics optiques et plus particulièrement les possibilités d'observation directe. De plus, tout comme dans les brûleurs, la composition chimique du milieu ambiant est complexe et ne permet pas de réaliser des études ciblées sur l'influence des gaz en présence.

3.2.2 Observations générales

L'hypothèse d'un comportement similaire entre les gouttes d'aluminium et les gouttes d'hydrocarbure en réaction est récusée par les observations expérimentales faites sur la combustion du métal qui présente une phénoménologie particulière. En effet, plusieurs études rapportent tout d'abord l'apparition de changements brusques de la trajectoire des gouttes durant leur réaction (Friedman and Maček [1962], Kuehl [1965], Maček [1967], Wilson Jr and Williams [1971]). Les mouvements observés semblent résulter des effets combinés de jetting (déplacement de la particule) et de spinning (rotation de la particule) générés par l'accumulation d'oxyde sur la surface de la goutte. Les auteurs mentionnent également l'existence de mécanismes de fragmentation en fin de réaction et l'analyse des résidus de combustion corrobore par ailleurs la présence de réactions de surface hétérogènes. Basé sur des constations similaires, Prentice [1974] propose un bilan critique des hypothèses du modèle en D^2 et conclut notamment qu'un état stationnaire et une géométrie sphérique ne peuvent être considérés pour décrire la combustion de l'aluminium.

Déterminant l'évolution temporelle de l'émission radiative d'une goutte en combustion, de sa température et de sa composition chimique, d'autres travaux ont ensuite permis d'identifier plusieurs étapes durant le processus de réaction de l'aluminium en régime de diffusion (Dreizin [1996], Dreizin [2003]). La corrélation des informations mesurées lors de la combustion avec les données disponibles sur le diagramme de phase binaire du système Al-O à l'équilibre permet alors de proposer un principe de réaction supposé. La figure 3.8 illustre le mécanisme considéré et présente le diagramme de phase Al-O. Lors de la première étape, la température de la goutte diminue depuis la

température d'allumage, proche du point d'ébullition de l'alumine, jusqu'à la température de vaporisation de l'aluminium. La réaction est initiée et une flamme sphérique s'établit autour de la particule où l' Al_2O_3 se condense en un nuage de gouttelettes submicroniques. Une fraction des intermédiaires de réaction gazeux formés dans la flamme est transportée vers la goutte et la dissolution des éléments oxydés modifie la teneur en oxygène de l'aluminium en fusion. La goutte est ainsi constituée d'une phase liquide pauvre en oxygène (L_1) dont la température d'ébullition est réduite. La température de la particule décroît et se stabilise à une valeur d'équilibre où peut se produire une seconde phase liquide riche en oxygène (L_2) issue de la réaction de L_1 avec les espèces oxygénées disponibles. A ce stade, la seconde étape de combustion débute et la goutte se compose de 2 phases non miscibles (L_1 et L_2) à température constante. La phase L_2 se présente sous la forme d'îlots en surface et altère localement l'évaporation de la goutte qui devient non-uniforme. La géométrie de la flamme est directement impactée et présente une forme asymétrique. Cependant, la production de L_2 influence également la répartition des oxydes intermédiaires en surface de la goutte, les îlots constituant des zones préférentielles pour la diffusion des espèces sources d'oxygène. La dernière étape du processus de combustion débute lorsque la température de la goutte ne peut plus être maintenue à la température de vaporisation de L_1 . La diminution de la température entraîne finalement la transformation de L_2 en Al_2O_3 et la formation d'un lobe d'alumine de taille significative avant solidification de l'ensemble (L_1 et Al_2O_3).

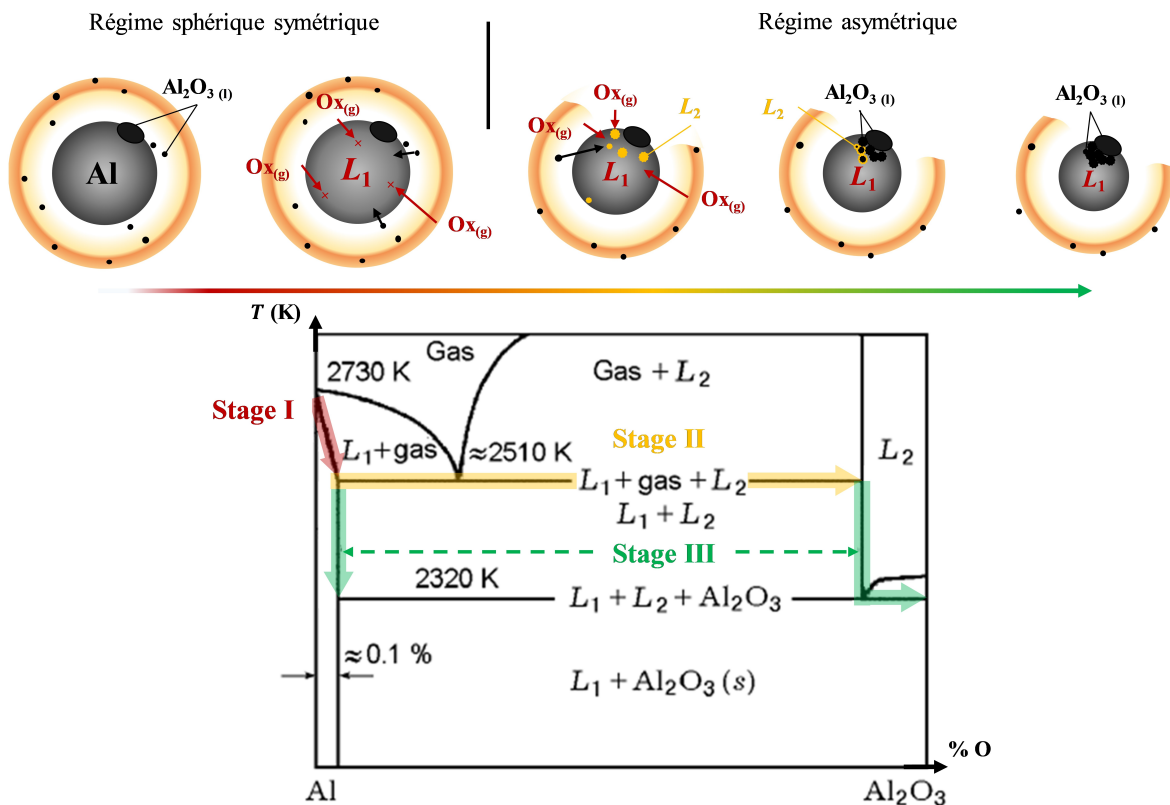


FIGURE 3.8 – Représentation schématique du processus de combustion d'une particule d'aluminium en régime de diffusion selon les observations établies expérimentalement (Dreizin [2003]).

La transition entre les phases de réaction est accompagnée par le passage d'un régime de combustion symétrique sphérique à un régime asymétrique (Fig. 3.8). Le régime asymétrique est caractérisé par la présence d'éléments condensés sur la surface de la goutte qui modifie la distribution des réactifs autour de la particule et donne une forme non-sphérique à la flamme. Durant cette phase, l'accumulation hétérogène d'oxydes

inhibe l'évacuation du métal vaporisé dans certaines zones et serait également à l'origine des trajectoires singulières constatées lors de la combustion en initiant la mise en rotation de la particule (spinning) et ses changements de direction brusques (jetting).

Diverses études ont donc été menées dans le but d'identifier les processus impliqués dans le transport d'éléments oxydés depuis la flamme vers la goutte. Les effets de convection naturels ou forcés peuvent potentiellement contribuer au transport des espèces (Turns et al. [1987]). L'analyse du phénomène de combustion en microgravité démontre que la transition vers un régime asymétrique subsiste après un intervalle de temps répétable (Dreizin [1999a]). Par conséquent, la convection n'influence pas le transport des espèces de manière significative. Différents autres mécanismes sont encore répertoriés pour expliquer la diffusion des espèces vers la goutte (Dreizin [1999b], Dreizin [2003]). Les éléments gazeux et condensés produits peuvent migrer sous l'influence de gradients d'espèce ou de température. Lors de la combustion, de forts écarts de température s'instaurent entre la surface de la goutte et la zone de réaction sur des distances relativement faibles. La diffusion thermique des gaz ou la thermodiffusion des espèces condensées (mécanisme de thermophorèse) peuvent donc initier la diffusion d'espèces de la zone la plus chaude vers la zone la plus froide, ainsi de la flamme vers la surface de la goutte. D'une façon similaire, les produits intermédiaires et les produits condensés sont majoritairement localisés dans la zone de réaction, créant un gradient d'espèces qui accentue l'influence des processus de diffusion massique et de diffusiphorèse entretenus vers la goutte. L'ensemble de ces mécanismes co-existe systématiquement lors de la combustion, néanmoins, la détermination de leurs contributions respectives reste un enjeu actuel dans la compréhension de la phénoménologie.

L'analyse des paramètres de combustion (température de flamme, taille de flamme, taux de réaction, temps de combustion, etc.) est également un axe de recherche important qui permet d'évaluer et de répertorier les facteurs d'influence. De manière non exhaustive, le tableau 3.2 rassemble les références de plusieurs études dédiées à l'acquisition de données sur les paramètres de combustion de l'aluminium.

Le temps de combustion t_c des particules d'aluminium est une donnée largement étudiée. Il est couramment estimé selon la durée de l'émission lumineuse enregistrée par un détecteur de photons (photomultiplicateur, photodiode, caméra, etc.). Expérimentalement, d'après les résultats proposés par les différents auteurs, il apparaît que le temps de combustion d'une particule d'aluminium est proportionnel au diamètre initial de la goutte tel que $t_c \propto D_0^n$ avec $0.1 < n < 2.5$. Dans l'ensemble, la dispersion de la valeur de l'exposant de combustion n est inhérente à la problématique précédemment évoquée sur l'utilisation de dispositifs expérimentaux dont l'influence sur le processus de combustion est différente. Néanmoins dans le cadre d'une même étude où l'influence du dispositif expérimental est fixe, la dispersion de la valeur de n renseigne sur l'existence probable de différents mécanismes de combustion et sur l'influence potentielle des conditions ambiantes en termes de pression (P), de température (T) et de composition chimique (propriétés intrinsèques de l'atmosphère gazeuse) qui sont alors les seuls paramètres variables. Il est à noter que les valeurs empiriques de l'exposant de combustion suggérées par les mesures directes du temps de réaction confortent la remise en cause du modèle du D^2 détaillé auparavant. Ainsi, lorsque n est proche de 2, la combustion est supposée être contrôlée par la diffusion et l'influence du lobe en surface reste restreinte. A l'inverse, si la valeur de l'exposant de combustion se rapproche de 1, cela suggère que la combustion est limitée, vraisemblablement par l'oxydation hétérogène ou l'accumulation d'oxydes sur la surface de la particule. Le temps de combustion reste en finalité une donnée globale dont l'évolution rend implicitement compte de la modification des paramètres de premier ordre (température de flamme, taux de réaction, etc.) ou de la phénoménologie.

Réf.	D ₀ (μm)	P (atm)	T (K)	Atmosphère gazeuse	Exposant <i>n</i>
Davis [1963]	1 - 103	1 - 200	3220	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - CO - N ₂ - HCl	1.8
Maček [1967]	32 - 49	1	2500	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - CO - N ₂	-
Wilson Jr and Williams [1971]	24 - 74	2 - 5	amb	O ₂ - Ar	1 - 1.75
Prentice [1974]	250 - 400	1	amb	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - N ₂ - Ar	1.3 - 2.5
Marion et al. [1996]	30 - 55	1 - 40	amb	Air	-
Olsen and Beckstead [1996]	40 - 80	1	3000	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - N ₂	2
Foelsche et al. [1998]	22	38 - 145	2630	O ₂ - H ₂ - N ₂	-
Melcher et al. [1999]	106	13 - 22	2300	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - CO - N ₂ - HCl	1.65
Dreizin [1999b]	90 - 200	1	amb	O ₂ - N ₂ - Ar - He	-
Zenin et al. [2000]	200 - 500	1 - 40	amb	O ₂ - CO ₂ - N ₂ - Ar	1.1 - 2
Zenin et al. [2001]	200 - 500	1	amb	Air - CO ₂ - H ₂ O	1.1 - 2.5
Rossi et al. [2001]	250	1	amb	CO ₂	2.5
Servaites et al. [2001]	5 - 10	8.5	2600	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - Ar	1.65
Sarou-Kanian et al. [2005a]	> 10 ³	1	400	O ₂ - H ₂ O - N ₂ - Ar	-
Glumac et al. [2005]	5 - 10	8.5	2650	CO ₂ - N ₂ - Ar	-
Bazyn et al. [2005]	10	3 - 30	2650	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - Ar	-
Bazyn et al. [2006]	0.8 - 40	4 - 32	2100	O ₂ - CO ₂ - N ₂	0.7 - 1.15
Lynch et al. [2009]	3 - 11	4 - 25	2400	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O	0.1 - 1.3
Gill et al. [2010]	3 - 20	1	amb	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - N ₂	0.3 - 1
Badiola et al. [2011]	2 - 20	1	amb	O ₂ - N ₂	0.35 - 0.5
Badiola and Dreizin [2012]	1 - 10	1	amb	Air	0.25
Feng et al. [2016]	100 - 300	1	amb	Air	-
Feng et al. [2018]	40 - 160	1	1500	O ₂ - CO ₂ - H ₂ O - N ₂	1

TABLEAU 3.2 – Récapitulatif des travaux expérimentaux sur l'analyse des paramètres de combustion de l'aluminium.

Les mesures de température de flamme peuvent être altérées par le dispositif expérimental (conditions expérimentales, diagnostics, méthodes de calibration, etc.), de plus, basée principalement sur l'interprétation des émissions spectrales, l'évaluation précise de la température de flamme est limitée par la présence d'éléments condensés dans la zone de réaction. En effet, bien que la température des particules submicroniques d'alumine soit représentative de celle de la flamme, ces produits condensés et la goutte ont chacun un spectre d'émission continu et la différenciation de leurs émissions respectives est par conséquent complexe. De plus, il a été montré que des espèces gazeuses comme l'intermédiaire AlO ont une contribution non négligeable dans le spectre d'émission global (Fig. 3.6). Néanmoins, en considération de la température relativement élevée des particules d'alumine, il est communément admis que les émissions radiatives globalement observées peuvent être attribuées à celles issues des produits condensés de la zone de réaction. Cette hypothèse est donc généralement utilisée pour déterminer expérimentalement la température de flamme bien que les mesures ne soient en réalité

qu'une valeur moyenne dont la pondération flamme/goutte reste souvent incertaine. La pyrométrie chromatique est généralement mise en œuvre pour évaluer temporellement la température de flamme moyenne (Dreizin [1999b], Rossi et al. [2001], Glumac et al. [2005], Sarou-Kanian et al. [2005b], Badiola et al. [2011]). Il est alors nécessaire de filtrer les longueurs d'onde du spectre global pour sélectionner celles uniquement issues du rayonnement de type corps noir, notamment en dehors des bandes d'émission de la phase gaz AlO. Une méthode de mesure basée sur un diagnostic PLIF a également été utilisée pour déterminer le profil radial de température autour de la goutte et fournir des informations discrètes non moyennées (Bucher et al. [1996]). De manière générale, les températures de flamme estimées sont essentiellement inférieures à la température de flamme adiabatique correspondante dans le milieu donné (≈ 3540 K dans l'air à pression atmosphérique) et les valeurs de température mesurées sont modulées en fonction des paramètres ambiants. Par ailleurs, les mesures par imagerie directe rapportent un constat similaire sur la taille de la flamme et sur le taux de combustion qui évoluent selon l'environnement ambiant.

En considération des observations réalisées, la phénoménologie de la combustion de l'aluminium semble donc étroitement liée au processus d'accumulation d'oxydes sur la surface de la goutte en réaction. Plus précisément, la formation d'éléments condensés en surface implique à la fois des mécanismes réactionnels complexes et des mécanismes de transport qui sont principalement régis par les gradients d'espèces et de températures. Les informations collectées au travers des nombreuses études mettent en évidence la dispersion considérable des données existantes, particulièrement sur la valeur de l'exposant de combustion n qui peut à la fois exprimer l'impact des méthodes expérimentales et l'interdépendance des paramètres de combustion avec les conditions ambiantes.

3.2.3 Influence des paramètres ambiants

Température

En théorie, pour un processus de combustion en régime de diffusion, la température du milieu ambiant T module principalement les transferts de chaleur entre l'ensemble goutte/flamme et l'environnement extérieur, mais peut aussi influencer la diffusion des espèces sensibles aux gradients thermiques. L'effet de ce paramètre peut ainsi potentiellement modifier la température de flamme et le taux de réaction de la goutte. L'énergie de réaction élevée de l'aluminium permet de relativiser cet aspect et l'impact attendu peut être supposé restreint dans le cas de différences mineures de températures. Expérimentalement, l'influence de la température ambiante sur le processus de combustion de l'aluminium reste peu documentée mais les données disponibles confirment le postulat émis. Pour Davis [1963], la variation de la température ambiante entre 2550 K et 2950 K affecte peu le temps de combustion des particules d'aluminium et les résultats de Belyaev et al. [1968] montrent que le temps de combustion réduit faiblement (10% - 15%) lorsque la température varie entre 1600 K et 2000 K puis ne dépend plus de la température au-delà de ce seuil. Le délai d'allumage est quant à lui sensiblement dépendant de T et une augmentation de la température du milieu favorise l'élévation en température de la particule, réduisant considérablement la durée de la phase avant combustion (Davis [1963], Belyaev et al. [1968]).

A l'inverse, l'influence de la température ambiante est marquée dans le cas d'une combustion limitée par la cinétique chimique. L'étude de Bazyn et al. [2006] évalue expérimentalement la combustion de nanoparticules ($D_0 \approx 80$ nm) dont la taille ne permet pas d'établir et d'entretenir un régime en phase vapeur. Dans ces conditions, faisant

varier la température de l'environnement entre 1200 K et 2100 K, l'auteur démontre que la décroissance du temps de combustion selon T suit une loi exponentielle d'Arrhenius. Ainsi, la hausse de température améliore la cinétique chimique des réactions de surface et accroît le taux de combustion global. Il peut être également supposé que ce phénomène contribue à la réduction des délais d'ignition par l'augmentation de l'apport énergétique issu des réactions hétérogènes.

Pression

L'influence de la pression ambiante sur le processus de combustion d'une goutte en phase vapeur est théoriquement négligeable. Le taux de régression des gouttes k défini par le modèle du D^2 (Eq. 3.18) prévoit que $k \propto \mathcal{D}_g \rho_g$. Or, la masse volumique d'un gaz ρ_g est directement décrite par la loi des gaz parfaits avec $\rho_g \propto P$ et le coefficient de diffusion massique d'un gaz $\mathcal{D}_g$ est typiquement inversement proportionnel à la pression et $\mathcal{D}_g \propto P^{-1}$. Cependant, la pression module directement les températures de fusion et de vaporisation des espèces qui sont des paramètres déterminants dans le cas de la combustion des particules d'aluminium. D'autre part, la cinétique moléculaire dans la phase gazeuse est également influencée par la pression. Expérimentalement, l'influence de la pression ambiante sur le taux de combustion (ou le temps de combustion) a été analysée et démontrée telle que $k \propto P^{[-0.3;1]}$. Plus précisément, de multiples études rapportent l'existence d'un seuil en dessous duquel le taux de réaction évolue selon la valeur de pression imposée (Davis [1963], Belyaev et al. [1968], Hartman [1971], Marion et al. [1996]). Ainsi, pour un diamètre initial de goutte donné, il est généralement constaté que le temps de combustion décroît lorsque la pression augmente sous la valeur limite puis reste relativement constant pour des pressions plus élevées. Néanmoins, variant de 20 atm à 70 atm selon les travaux considérés, cette valeur seuil reste discutée et Foelsche et al. [1998] montre par ailleurs que le temps de combustion diminue continuellement sur l'intervalle de pression étudié (38 - 145 atm). L'influence de pression observée peut être expliquée par la présence de particules submicroniques dans la zone de réaction qui modulent la diffusion des espèces (Kuryavtsev et al. [1979]). En effet, dans des conditions de basses pressions, la distance interparticulaire de la phase condensée est très inférieure au libre parcours moyen de la phase gazeuse dans la flamme ($Kn > 1$) et le coefficient binaire de diffusion corrigé $\mathcal{D}_g^c$ est inversement proportionnel au nombre de Knudsen Kn (Eq. 3.21).

$$\mathcal{D}_g^c = \frac{\mathcal{D}_g}{Kn} \quad (3.21)$$

Selon les équations 3.4 et 3.5, l'augmentation de la pression du milieu ambiant P permet d'accroître le coefficient de diffusion $\mathcal{D}_g^c$ grâce à la diminution inhérente du libre parcours moyen ($Kn \leq 1$). Kuryavtsev et al. [1979] indique ensuite que $\mathcal{D}_g^c$ est indépendant de la pression pour $Kn < 1$ où le mécanisme de diffusion est classiquement piloté par le produit $\rho_g \mathcal{D}_g$. Le taux de réaction k étant directement proportionnel au coefficient de diffusion, ce modèle apporte une explication théorique à l'effet seuillé de la pression sur le processus de combustion de l'aluminium. Il reste intéressant de mentionner qu'aucun effet de pression n'est répertorié sur le temps de combustion en microgravité (Zenin et al. [2000]).

De manière complémentaire, l'influence de la pression est aussi remarquable par l'augmentation significative de l'émission lumineuse globale de la particule et de sa flamme lors de la combustion (Marion et al. [1996]). En accord avec cette observation, les

travaux de Zenin et al. [2000] mettent en évidence une concentration croissante d'oxyde d'aluminium sur la surface des particules après réaction à haute pression, suggérant une production plus conséquente d'alumine à fort potentiel radiatif.

Composition chimique

Tout comme la pression et la température, la composition chimique du milieu ambiant (nature et concentration des gaz oxydants ou diluants) peut conditionner les transports de chaleur et d'espèce en fonction des propriétés intrinsèques des éléments considérés. De plus, l'énergie de réaction libérée est directement liée aux oxydants en présence d'après leur enthalpie de formation respective.

De manière générale, le taux de combustion augmente lorsque les proportions d'oxydant dans l'environnement sont élevés. Une concentration accrue d'oxydant permet d'instaurer des gradients d'espèces d'autant plus importants entre la zone de réaction appauvrie en comburant et le milieu extérieur encore riche. Les résultats expérimentaux de Prentice [1974] illustrent cet effet en analysant l'évolution du temps de combustion de particules d'aluminium isolées en fonction du taux de O_2 dans des mélanges définis de O_2/N_2 et de O_2/Ar . La durée de la réaction diminue alors considérablement lorsque la teneur en O_2 augmente, indépendamment du gaz diluant. L'étude de Badiola et al. [2011] confirme cette tendance et la conforte en mesurant des températures de flamme plus faibles quand la proportion de O_2 est réduite. De surcroît, Bazyn et al. [2005], Gill et al. [2010] et Lynch et al. [2009] montrent que l'influence de la concentration en oxydant X_{eff} est similaire pour plusieurs éléments i (O_2 , H_2O et CO_2) mais ces travaux mettent également en évidence l'existence de différentes efficacités d'oxydation e_i . L'oxygène est en effet systématiquement l'élément dont le pouvoir oxydant est le plus élevé et dans lequel les temps de combustion sont les plus réduits à proportions équivalentes. Concernant les espèces CO_2 et H_2O , les modèles analytiques et théoriques prédisent en majorité que la vapeur d'eau a une efficacité d'oxydation supérieure au dioxyde de carbone (Kuryavtsev et al. [1979], Brooks and Beckstead [1995], Widener and Beckstead [1998]). Expérimentalement, comme l'illustre la figure 3.9, cette prépondérance est néanmoins plus contrastée. Les mesures de Gill et al. [2010] sont en accord avec les prévisions des modèles et, qualitativement, $e_{H_2O} > e_{CO_2}$. Les résultats de Bazyn et al. [2005] présentent alors un constat opposé en quantifiant le pouvoir oxydant relatif des espèces. Enfin, d'après Lynch et al. [2009], l'efficacité relative du CO_2 et du H_2O dépend de la concentration en oxydant dans le mélange. Ainsi les temps de combustion dans le CO_2 sont inférieurs à ceux dans le H_2O pour $X_{eff} < \sim 0,45$ puis la tendance s'inverse pour des fractions molaires d'oxydant plus élevées.

Il est intéressant de constater que l'effet de pression évoqué précédemment varie selon le type d'oxydant. L'élévation de la pression réduit le temps de combustion dans le cas de l'oxygène mais ce paramètre augmente de façon plus ou moins marquée pour le dioxyde carbone et la vapeur d'eau dont la dissociation serait altérée dans ces conditions (Lynch et al. [2009], Bazyn et al. [2005]).

La comparaison des émissions enregistrées durant la combustion montre que l'intensité radiative est plus faible dans le CO_2 et le H_2O (Bucher et al. [1999], Servaites et al. [2001], Gill et al. [2010]). La figure 3.10 présente qualitativement l'évolution de l'intensité lumineuse émise par des particules d'aluminium en combustion dans différents milieux réactifs. L'aspect des empreintes lumineuses varie selon les oxydants présents dans l'environnement ambiant, suggérant que la dynamique de combustion diffère. Pour chaque oxydant, l'ensemble des travaux confirment le possible établissement d'une

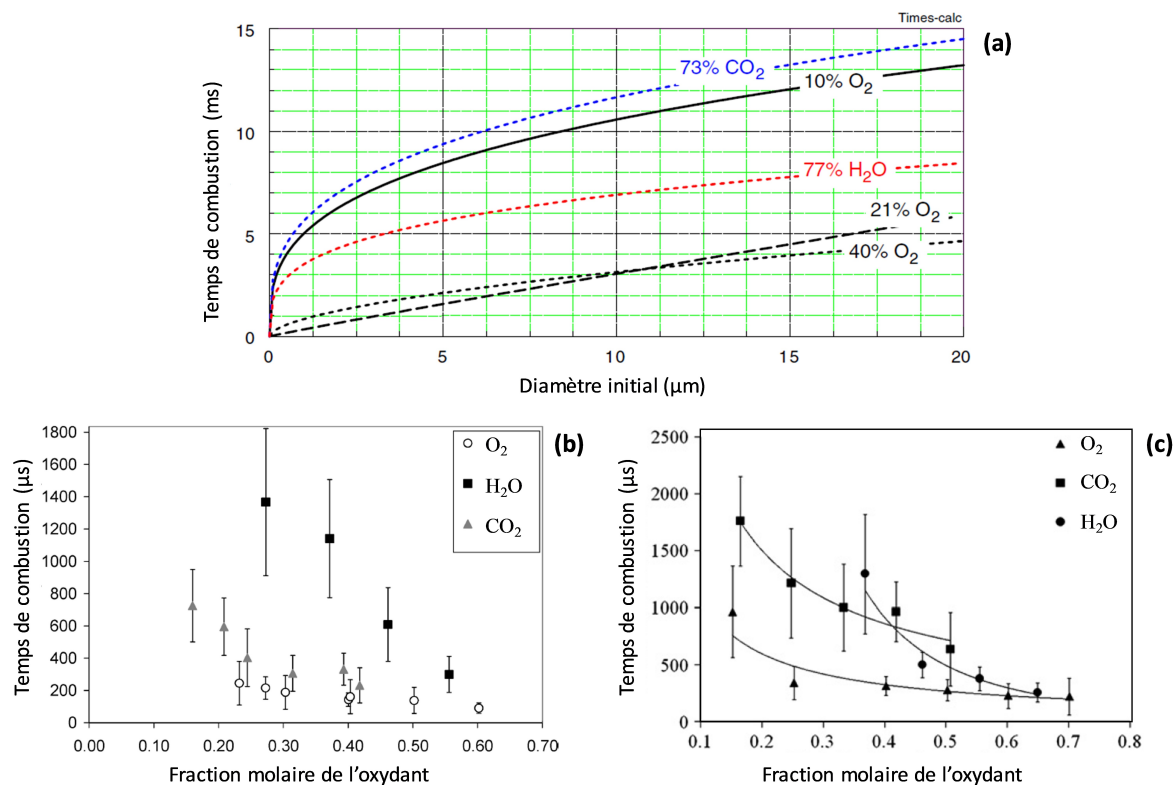


FIGURE 3.9 – Évolution du temps de combustion selon la composition du milieu ambiant. (a) Gill et al. [2010] - (b) Bazyn et al. [2005] - (c) Lynch et al. [2009].

flamme de diffusion dont la taille est la plus importante dans le cas du O₂. Pour des gouttes de taille limitée (~10 μm) réagissant dans un environnement riche en H₂O, les auteurs indiquent que la flamme est peu radiative et supposent que combustion résulte principalement de réactions hétérogènes avec une flamme en proche surface. Pour des tailles de particule supérieures (~100 μm), Bucher et al. [1999] constate sans réserve qu'une flamme de diffusion est observée lors de la réaction de l'aluminium dans la vapeur d'eau. De plus, des fluctuations et des oscillations sont observées sur les profils d'émission lumineuse des gouttes réagissant dans l'air, le CO₂ et le H₂O (Fig.3.10). Par conséquent, largement constatée dans des mélanges avec de l'oxygène, l'apparition d'une phase de combustion asymétrique est également présumée pour les particules brûlant dans des mélanges avec du dioxyde de carbone ou de la vapeur d'eau mais la transition de régime s'avère être moins marquée que dans le O₂ où des phénomènes de jetting/spinning brusques sont observés. Ainsi, de manière analogue aux observations faites sur des gouttes réagissant dans un milieu contenant du O₂, cette information suggère que des processus contribuant à la production et à l'accumulation d'oxydes sur la surface de la goutte demeurent lors de la réaction de l'aluminium avec d'autres oxydants. Dans ce sens, en analysant la composition de particules après réaction en CO₂ pur, Rossi et al. [2001] recense la formation de plusieurs phases issues du système Al-O-C et souligne l'existence de réactions de surface ou de changements de phases qui contribuent probablement au changement de régime dans ce type d'atmosphère. D'autre part, concernant les mécanismes de transport d'espèces, l'auteur émet l'hypothèse d'effets thermophorétiques plus prononcés dans le cas du CO₂ dus notamment à la réduction des actions opposées de la diffusiophorèse. Dans le cas moins documenté d'ambiances contenant des proportions conséquentes de H₂O, Sarou-Kanian et al. [2005a] montre que les résidus issus de la combustion comportent des cavités sphériques dont la présence est attribuée à la dissolution d'hydrogène dans la goutte liquide. Les quantités de H₂ relevées

étant faibles, aucun effet majeur de cette réaction n'est alors attendu sur la combustion.

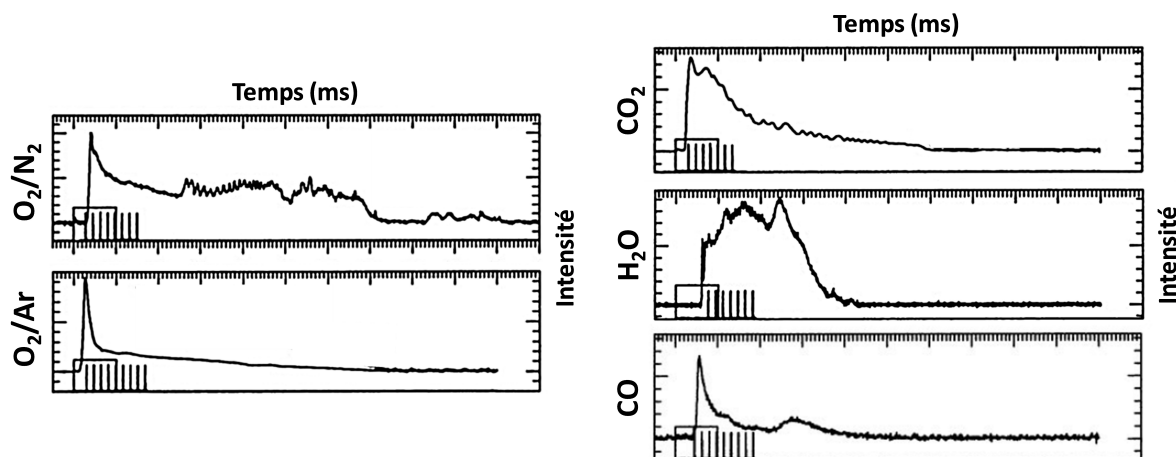


FIGURE 3.10 – Évolution de l'intensité lumineuse émise par des particules d'aluminium en combustion dans différents milieux oxydants (Bucher et al. [1999]).

Bien que la concentration de monoxyde de carbone soit significative dans l'environnement réactionnel des particules d'aluminium réagissant au sein des MPS, peu de données renseignent sur la combustion des gouttes dans le CO. Certaines études donnent une description qualitative du processus de réaction de l'aluminium dans du CO pur et indiquent qu'aucune flamme de diffusion n'est observée, ce qui soutient l'hypothèse d'un mode de combustion limité par la cinétique chimique dans ces conditions (Bucher et al. [1999]). Les mesures réalisées pour définir la composition chimique de particules prélevées durant leur réaction corroborent le possible établissement de réactions hétérogènes qui forment des produits condensés complexes en proche surface, en particulier de l' Al_2O_3 et des éléments carbonés.

Comme évoqué, les gaz diluants peuvent également moduler la combustion d'une goutte d'aluminium. L'effet des diluants est tout d'abord inhibiteur par la réduction de la concentration des gaz oxydants et l'augmentation de leurs proportions réduit le taux de combustion des gouttes. Les propriétés physiques et thermiques du milieu ambiant sont aussi fixées par la nature et la fraction des gaz inertes en présence. Pour analyser cette influence, l'analyse comparative de la combustion de l'aluminium dans des milieux oxydants dilués avec du N_2 , de l'Ar ou du He est indicative. Les paramètres qui pilotent le transport diffusif de la chaleur et des espèces sont similaires pour le diazote et l'argon, permettant d'analyser uniquement les effets relatifs à la nature chimique du gaz diluant. Parallèlement, l'hélium présente des caractéristiques qui favorisent les différents transports et permet ainsi d'analyser l'influence des propriétés diffusives du milieu ambiant. Pour un taux de dilution donné, la théorie prédit ainsi une augmentation des taux de réaction dans un mélange oxydant contenant de l'hélium. Les résultats expérimentaux de Dreizin [1999b] sont alors en accord avec les attentes théoriques. Les temps de combustion des gouttes en mélange O_2/N_2 et O_2/Ar sont équivalents et la durée de réaction est inférieure pour des mélanges O_2/He . L'influence des gaz diluant sur la phénoménologie de combustion est aussi avérée. Il a tout d'abord été mis en évidence que les trajectoires des particules brûlant en chute libre dans l'air sont différentes de celles enregistrées dans un mélange O_2/Ar avec un taux de dilution identique (Prentice and Nelson [1967]). Dans l'air, la trajectoire de la goutte est marquée par des mouvements de spinning/jetting et l'évolution de l'émission lumineuse présente des variations brusques (Fig.3.10). L'analyse des particules prélevées pendant leur réaction dans l'air montre la formation d'un lobe d'oxyde hémisphérique en surface de la goutte et la répartition des

produits condensés d'alumine dans la flamme apparaît comme étant asymétrique. Les fluctuations radiatives (Fig.3.10) et l'accumulation d'oxydes sur la surface des gouttes n'ont alors pas été observées lors de la combustion dans les mélanges dilués avec de l'argon. Basé sur ce constat, il est proposé que dans le processus d'accumulation d'oxydes précédemment introduit (Fig. 3.8) la formation de l'espèce faiblement réactive NO contribuerait à la diffusion additionnelle d'oxygène vers la surface de la goutte (Dreizin [1999b], Dreizin [2000], Dreizin [2003]). Le NO permettrait d'accroître la dissolution d'oxygène dans l'aluminium liquide ainsi que la cinétique des réactions hétérogènes, source de la production de phases condensées en surface. L'établissement du régime de combustion asymétrique est donc potentiellement favorisé dans les mélanges oxydants contenant du N_2 . Une autre hypothèse pourrait justifier l'influence du N_2 sur la combustion de l'aluminium. Les travaux de Sarou-Kanian et al. [2005a] ont permis de confirmer les suppositions de Bucher et al. [1999] quant à la formation de nitrures d'aluminium (AlN) issus des réactions de surface. Les nitrures produits interagissent avec le lobe d'alumine Al_2O_3 et forment un composé AlON d'oxynitride. Cette phase peut finalement recouvrir la goutte dans sa totalité et altérer l'entretien de la vaporisation du métal.

3.2.4 Bilan et objectifs des travaux de thèse

Ce chapitre introduit donc l'ensemble des aspects théoriques et expérimentaux nécessaires à la compréhension générale mais élémentaire du processus de combustion de l'aluminium.

La taille de la particule en réaction est un paramètre déterminant. Ainsi, selon le diamètre initial D_0 de la goutte, la combustion de l'aluminium peut s'établir en mode de diffusion avec la formation d'une flamme enveloppe détachée de la surface dont la température est limitée par la température de vaporisation-dissociation de l'oxyde d'aluminium. Pour les particules de faibles dimensions, le processus de combustion est limité par la cinétique des réactions chimiques où seules des réactions hétérogènes subsistent en surface de la goutte avec une énergie insuffisante pour vaporiser le métal. Un régime de combustion transitoire peut également s'établir avec des températures limitées entretenu par des réactions hétérogènes et des réactions en phase gazeuse au sein d'une flamme proche de la surface.

De manière générale, la fusion et la rupture de la couche protectrice d'alumine en surface sont requises afin d'initier le processus de combustion. En mode de diffusion, l'aluminium vaporisé réagit avec les oxydants en présence au sein de la zone de réaction, produisant principalement de l' Al_2O_3 sous la forme de particules submicroniques condensées. L'aluminium et son oxyde étant non miscibles, la couche d'alumine initialement présente se rétracte dès l'allumage et constitue un lobe en surface de la goutte qui demeure durant l'ensemble de la réaction. Selon les modèles analytiques primaires qui considèrent une analogie entre la combustion de l'aluminium et celle des hydrocarbures, la goutte s'évapore alors progressivement jusqu'à la consommation totale du métal et l'évolution temporelle de son diamètre suit la loi du D^2 avec un temps de combustion défini tel que $t_c \propto D_0^2$. Dans ces conditions, le résidu de combustion serait finalement constitué du lobe d'alumine initial et des nanoparticules d'alumine solidifiées.

Cependant, les travaux expérimentaux ont démontré que les hypothèses admises par la loi D^2 ne peuvent être strictement appliquées au cas de la combustion de l'aluminium. La présence d'éléments condensés en surface de la goutte affecte la phénoménologie globale du processus et limite l'analogie supposée. En effet, différents mécanismes peuvent contribuer à l'accumulation d'oxydes condensés au niveau de la surface de

la goutte en réaction, altérant notamment sa vaporisation et la distribution locale des espèces. Les constats expérimentaux suggèrent que ce processus est lié à la diffusion d'éléments oxydés gazeux ou liquides vers la goutte par gradient d'espèce et/ou par gradient thermique. L'oxygène ainsi transporté se dissout et réagit avec l'aluminium liquide par réaction hétérogène pour finalement produire différents composés condensés qui s'agglomèrent en surface de la goutte et la recouvre progressivement. Plusieurs phases de combustion sont alors identifiées, marquées par la transition du régime initial à géométrie symétrique sphérique vers un régime asymétrique où la forme de la flamme est considérablement modifiée. Des modèles théoriques représentatifs ont donc été développés pour considérer les phénomènes observés et une base de données expérimentale significative a été constituée sur les paramètres de combustion. La mesure directe du temps de combustion dans diverses études démontre que la durée de réaction suit en réalité une loi de type $t_c \propto D_0^n$ avec $0,1 < n < 2,5$ selon les conditions ambiantes.

La température, la pression et la composition chimique de l'environnement semblent effectivement affecter les paramètres et la phénoménologie de combustion de manière plus ou moins marquée. La température contribue essentiellement à accroître la cinétique des réactions hétérogènes mais n'a pas une influence notable sur le processus de réaction en phase vapeur. Sous une certaine valeur seuil, l'effet de la pression sur le taux de réaction est avéré puis cette influence devient négligeable pour des pressions supérieures. Enfin, la composition chimique du milieu ambiant affecte particulièrement la réaction de l'aluminium. Les paramètres de combustion sont sensiblement dépendants de la concentration et de la nature des gaz ambiants. Les oxydants ont des pouvoirs d'oxydation différents et les gaz diluants ont un effet établi selon leurs propriétés intrinsèques respectives. Il apparaît également que les mécanismes chimiques impliqués dans la production d'oxydes en surface de la goutte soient modulés selon les gaz en présence qui modifient le schéma réactionnel. Basée sur un large ensemble de résultats expérimentaux, l'analyse synthétique proposée par Beckstead [2004] établit par ailleurs une corrélation entre t_c et les différents paramètres d'influence. Le temps de combustion dépend alors de la pression et de la température ambiantes, respectivement P et T , de la fraction molaire X_i des oxydants i en présence et de leur efficacité e_i ainsi que du diamètre initial D_0 de la goutte avec $n = 1,8$ et a un coefficient empirique fixé à 0,00735 (Eq. 3.22 et 3.23).

$$t_c = \frac{aD_0^n}{X_{eff}P^{0,1}T^{0,2}} \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} X_{eff} &= e_{O_2}X_{O_2} + e_{H_2O}X_{H_2O} + e_{CO_2}X_{CO_2} \\ &= X_{O_2} + 0,6X_{H_2O} + 0,22X_{CO_2} \end{aligned} \quad (3.23)$$

Les différentes études réalisées ont donc indéniablement permis d'améliorer la définition et la compréhension de la combustion de l'aluminium. Cependant, les informations regroupées nécessitent d'être actualisées et complétées pour répondre aux problématiques suscitées par l'utilisation des particules d'aluminium dans les MPS.

L'estimation du temps de combustion des gouttes en fonction de leur diamètre initial est une donnée déterminante pour améliorer la stabilité et les performances des MPS. Les résultats concernant la valeur de l'exposant de combustion n présentent une dispersion conséquente qui, pour des conditions ambiantes fixes, est probablement due à la diversité des dispositifs d'analyse. Un constat similaire peut être aussi dressé sur la quantification de l'influence des conditions ambiantes sur le taux de régression des gouttes et la durée de réaction. Les lois de dépendance établies entre t_c , T , P et

X_{eff} demeurent variables selon les auteurs. Finalement, la détermination du temps de combustion selon les diverses corrélations proposées au travers de la littérature est restreinte par la dépendance aux méthodes expérimentales et les relations globales comme l'équation 3.22 sont en contrepartie soumises à des imprécisions. De plus, les études sont majoritairement effectuées dans des conditions non représentatives des moteurs-fusées. Les paramètres de combustion sont principalement évalués dans des milieux réactifs à faible pression où l' O_2 est l'oxydant principal. De manière générale, la combustion de l'aluminium dans des oxydants caractéristiques des MPS reste peu documentée, particulièrement pour le cas du H_2O et du CO . Le rôle exact du CO dans l'efficacité oxydante du milieu ambiant reste d'ailleurs indéterminé. Les expressions établies sur des résultats d'ensemble sont donc considérablement pondérées par des données obtenues dans des conditions académiques et les effets liés à l'atmosphère spécifique des moteurs sont potentiellement occultés. Différentes espèces présentes dans les produits de combustion du propergol solide ne sont d'ailleurs pas considérées dans la relation 3.22, notamment le CO .

Les connaissances sur la phénoménologie de combustion doivent être également développées. Tout d'abord, comme mentionné auparavant, peu d'observations renseignent sur la réaction de l'aluminium avec le CO_2 , le H_2O ou le CO . Plusieurs éléments corroborent que le développement du lobe d'oxyde en surface de la goutte gouverne la dynamique de combustion. Un effet particulier du diazote est supposé pour les particules réagissant dans du O_2 dilué, néanmoins, il est primordial de confirmer ce postulat pour les oxydants caractéristiques avec lesquels le N_2 peut interagir au sein des MPS. D'autre part, la compréhension du processus d'accumulation d'oxydes en surface de la goutte reste encore approximative, nécessitant des analyses complémentaires. Par exemple, malgré le constat évident de l'influence de la pression ou de la composition chimique de l'environnement ambiant sur la combustion de l'aluminium, aucune donnée ne permet d'évaluer l'effet de ces variables sur la dynamique de production ou de transport des oxydes. L'obtention d'informations détaillées sur cet aspect est alors fondamentale pour comprendre les mécanismes impliqués mais aussi quantifier l'impact du milieu environnant sur la phénoménologie.

Ainsi, l'analyse générale de l'état de l'art démontre que la combustion de l'aluminium est un phénomène complexe dont la compréhension demeure partielle. Au vu des enjeux inhérents à l'utilisation du potentiel énergétique de ce vecteur, en particulier ici dans le fonctionnement des MPS, la pérennité des activités de recherches à ce sujet paraît indispensable. Afin de disposer de données de référence sur les paramètres de combustion de l'aluminium et élaborer des lois empiriques non biaisées, il est nécessaire d'acquérir des résultats supplémentaires dans des conditions expérimentales dont l'influence est réduite avec une précision accrue, en particulier dans des environnements similaires aux MPS. La visualisation directe des phénomènes est également un enjeu principal qui constitue actuellement une limite majeure dans la compréhension globale du processus. Peu de dispositifs permettent effectivement d'observer la combustion des gouttes micrométriques en continu avec une résolution spatiale et temporelle suffisamment élevée pour corréler l'évolution des paramètres mesurés avec les phénomènes observés.

Ces travaux de thèse s'inscrivent donc dans l'ensemble de ces initiatives et sont dédiés à l'analyse de la combustion autonome de particules d'aluminium dans un environnement contrôlé. La technique expérimentale mise en œuvre assure l'isolement d'une particule unique et les diagnostics employés sont essentiellement basés sur des méthodes optiques permettant notamment la visualisation directe du phénomène avec une résolution spatio-temporelle significative. Les particules sont sélectionnées pour avoir un diamètre représentatif de celui des gouttes quittant la surface du bloc solide

de propergol, avec ou sans agglomération (30 à 150 μm). Les conditions expérimentales (pression et composition chimique) peuvent être précisément définies pour être représentatives des conditions retrouvées dans les MPS et chaque paramètre peut être modulé indépendamment pour discriminer leurs influences respectives. Les données (temps de combustion, taux de régression, taille de flamme, etc.) et les informations ainsi rassemblées contribueront à améliorer les connaissances fondamentales. Les résultats seront enfin exploités pour développer les capacités des modèles prédictifs numériques multi-échelle. A l'échelle microscopique de la goutte en réaction, les codes de simulation seront directement confrontés aux données expérimentales pour évaluer leur validité et accroître leur représentativité. A l'échelle macroscopique du moteur-fusée, les corrélations empiriques basées sur l'ensemble des résultats de cette étude permettront d'avoir une définition plus pertinente des caractéristiques de la phase dispersée (inerte et réactive) dans la chambre moteur pour optimiser la gestion des mécanismes instables et améliorer les performances des systèmes propulsifs.

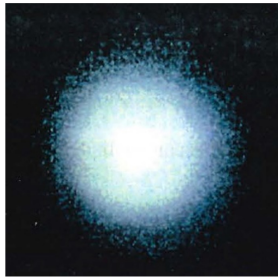
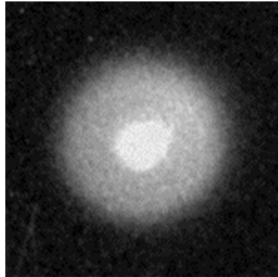
Après avoir introduit le dispositif expérimental exploité lors de ces travaux, les différents résultats obtenus seront présentés et analysés. Une étude préliminaire sur la combustion de l'aluminium dans l'air est tout d'abord établie afin d'évaluer les résultats obtenus en comparaison avec des données documentées. Cette analyse démontrera également l'intérêt des capacités expérimentales développées qui introduisent une approche nouvelle et avancée de la visualisation directe des phénomènes. Cette démarche est ensuite exploitée pour caractériser la combustion des gouttes d'aluminium dans des gaz diluants et oxydants représentatifs des MPS avec une pression variable pour finalement proposer une étude comparative et établir une corrélation pratique de référence.

Chapitre 4

Dispositif expérimental

Les recherches réalisées dans le cadre de ce projet de thèse sont basées sur l'utilisation du dispositif expérimental d'ores et déjà exploité dans les travaux de Marion [1996] et Legrand [2000]. Les fonctions principales du système initial ont été conservées, permettant d'isoler une goutte d'aluminium au sein d'une atmosphère contrôlée (pression et composition chimique) et d'initier sa combustion. Ainsi, confiné dans une enceinte haute pression (HP), un lévitateur électrostatique est utilisé pour isoler une unique particule et un laser CO₂ externe permet d'apporter l'énergie requise pour amorcer le processus réactionnel. De cette manière, les effets de groupe inhérents de la combustion de poudres dispersées n'interviennent pas dans le cas de l'analyse proposée. De plus, en comparaison avec les dispositifs expérimentaux précédemment présentés, l'intérêt de la méthode élaborée quant à l'isolation des particules consiste majoritairement en l'absence d'échanges thermiques additionnels dus à l'utilisation d'un support physique ou de techniques aérodynamiques qui induisent respectivement des échanges thermiques par conduction et par convection.

Néanmoins, la précision des résultats issus des études précédemment menées sur le lévitateur était limitée par les capacités relatives aux technologies existantes à cette période. La combustion d'une particule d'aluminium est rapide (< 70 ms) et son étude requiert des instruments de mesure dont la vitesse d'acquisition est élevée. De plus, il a été démontré que la trajectoire des gouttes en combustion peut être aléatoire et l'énergie émise par rayonnement lors de la réaction est relativement conséquente. La résolution spatiale et la sensibilité des moyens d'observation doivent donc être également adaptées pour obtenir des informations qualitatives et quantitatives précises sur le phénomène global. À titre de référence, le tableau 4.1 présente les performances des outils de visualisation directe utilisés par Marion [1996] et Legrand [2000] ainsi que des images de particules d'aluminium en combustion obtenues durant leurs travaux respectifs. Des caméras cinématographiques et analogiques ont été employées de façon complémentaire pour mesurer le diamètre initial de la particule et obtenir des séquences de combustion. L'analyse est donc restreinte par la résolution spatio-temporelle réduite des caméras et par les contraintes liées aux méthodes d'acquisition (analogique ou argentique) qui excluent la possibilité de réaliser un traitement systématique des séquences, notamment par imagerie numérique. Ainsi, les résultats et les interprétations sont principalement fondés sur un nombre limité d'images et sur les signaux des tubes photomultiplicateurs (PM) qui retranscrivent l'évolution des émissions lumineuses durant le processus de réaction pour en mesurer les temps caractéristiques d'inflammation et de combustion.

	Marion [1996]	Legrand [2000]
Technologie	Caméra analogique - Caméra cinématographique	
Vitesse d'acquisition	1000 fps	500 - 10000 fps
Image		

TABEAU 4.1 – Caractéristiques des outils de visualisation directe utilisés lors des études de Marion [1996] et de Legrand [2000]

Une approche expérimentale perfectionnée a donc été mise au point afin d'obtenir des résultats inédits dans l'étude fondamentale de la combustion de l'aluminium et de contribuer à l'amélioration des connaissances. En ce sens, une augmentation significative des capacités d'observation a été permise par la réalisation et l'installation d'un dispositif de visualisation intégrant une caméra numérique rapide. Une routine informatique de traitement d'images a par ailleurs été développée pour évaluer les paramètres d'intérêt et suivre leur évolution sur l'ensemble des séquences vidéo, permettant ainsi de constituer une base de données pertinente dans des conditions représentatives des MPS.

Ce chapitre introduit en détail le fonctionnement du dispositif expérimental utilisé pour démontrer son intérêt et sa viabilité quant à l'étude de la combustion de particules micrométriques d'aluminium. Les moyens d'analyse ainsi que la méthodologie relative au traitement des données seront également présentés pour apporter les éléments nécessaires à la compréhension et à l'interprétation des résultats.

4.1 Isolation d'une particule en atmosphère contrôlée

4.1.1 Système de lévitation électrostatique

L'isolement d'une particule unique sans aucun support matériel est un enjeu important pour l'étude fondamentale de la combustion de l'aluminium. D'ores et déjà employé pour diverses applications, le léviteur électrostatique est une approche intéressante qui permet de suspendre une particule immobile à une position répétable (Davis et al. [1990], Bar-Ziv and Sarofim [1991]). Le principe de ce dispositif consiste en la superposition de champs électriques continu et alternatif appliqués à la particule chargée pour s'opposer aux effets de la gravité. La figure 4.1 présente la structure du léviteur électrostatique utilisé pour cette étude et illustre son fonctionnement.

Pour établir un champ électrostatique maîtrisé et faire léviter une particule, le système est composé de trois électrodes distinctes alimentées par des courants haute tension. Une tension continue V_{dc} est appliquée aux électrodes inférieure et supérieure alors que l'électrode centrale est alimentée par un courant alternatif de tension V_{ac} et de fréquence f . Le courant continu génère un champ électrique vertical $E_{z,dc}$ qui compense notamment les forces de pesanteur P . L'électrode centrale produit un champ électrique E_{ac} résultant de composantes axiale $E_{z,ac}$ et radiale $E_{r,ac}$ qui induit essentiellement une force

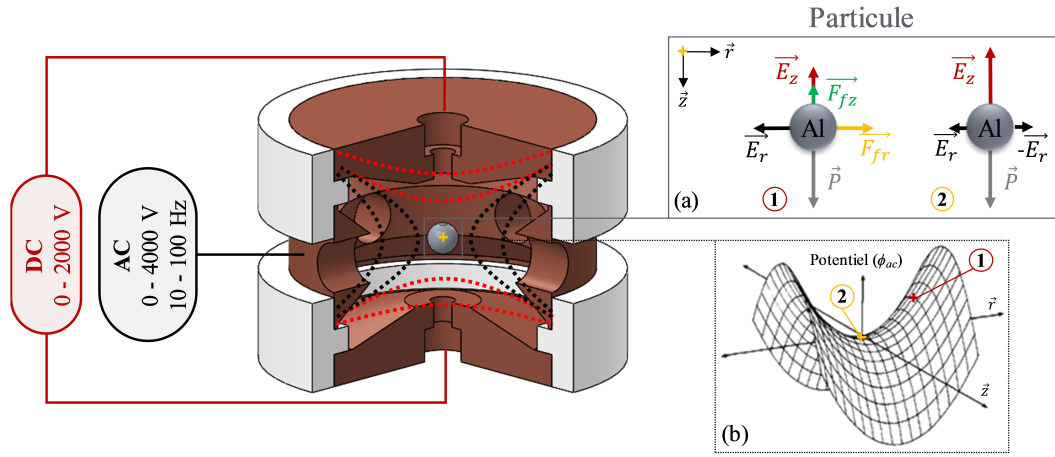


FIGURE 4.1 – Représentation schématique du lévitateur électrostatique. (a) Bilan des forces appliquées à la particule en lévitation - (b) Représentation bidimensionnelle du potentiel électrique alternatif Φ_{ac} (Bar-Ziv and Sarofim [1991]).

centripète pour centrer et stabiliser la particule sur l'axe de symétrie des électrodes. Le potentiel Φ_{ac} du champ alternatif E_{ac} est défini comme étant proportionnel à la distance entre le point central de la chambre électrostatique et le point d'application considéré (Eq. 4.1 et 4.2). La géométrie de la chambre et des électrodes est alors un paramètre particulièrement important qui module la valeur spatiale de Φ_{ac} , dont, d'après l'équation de Laplace, dérive le champ électrique E_{ac} ($E_{ac} = -\nabla\Phi_{ac}$). L'influence de la géométrie des électrodes sur le déplacement des particules au sein de la chambre a d'ailleurs été une problématique largement étudiée (Bar-Ziv and Sarofim [1991], Davis et al. [1990], Loyalka et al. [1995], Zheng et al. [2001]). Définie comme une référence optimale, la forme typique d'un potentiel au sein d'une chambre électrostatique hyperboloïdale est illustrée dans la figure 4.1 (b).

Ainsi, d'après la représentation schématique proposée pour une particule sphérique non stabilisée (éloignée du point central du lévitateur) de diamètre D_p , de masse m_p et de charge q_p (Fig. 4.1 (a)-1), si l'on considère un régime de Stokes pour décrire les forces de traînée F_f du gaz ambiant de viscosité μ_g sur la particule en lévitation, le bilan des forces peut être théoriquement formulé selon les équations 4.1 et 4.2 :

$$/\vec{r}: m_p \frac{d^2 r}{dt^2} = -3\pi D_p \mu_g \frac{dr}{dt} - q_p E_r \quad (4.1)$$

$$/\vec{z}: m_p \frac{d^2 z}{dt^2} = -3\pi D_p \mu_g \frac{dz}{dt} + m_p g - q_p E_z \quad (4.2)$$

Avec :

$$E_r = E_{r,ac} = \frac{V_{ac} \cos(2\pi f t) r}{z_0^2} \quad (4.3)$$

$$E_z = E_{z,ac} + E_{z,dc} = \frac{2V_{ac} \cos(2\pi f t) z}{z_0^2} + G(r, z) \frac{V_{dc}}{z_0} \quad (4.4)$$

Finalement, à l'équilibre (Fig. 4.1 (a)-2), pour des paramètres V_{dc} , V_{ac} et f adaptés (la fonction $G(r, z)$ pouvant être assimilée à une constante de valeur connue), la résultante des efforts distribués est nulle et la particule chargée peut rester immobile au point central du lévitateur.

En pratique, les champs électriques sont uniquement utilisés pour définir une position initiale reproductible de la particule. Néanmoins, mis en évidence expérimentalement sur une flamme de bougie (Brande [1814]), l'influence d'un champ électrique sur le mécanisme de combustion a aussi été observée sur des particules d'aluminium en réaction, modifiant notamment l'aspect visuel de la micro-flamme et les temps de combustion (Dreizin [1996]). Malgré ces constats, cet effet semble pouvoir être relativisé dans les conditions expérimentales imposées par le lévitateur. Comme il le sera illustré sur les images obtenues par visualisation directe de goutte en combustion au sein du dispositif électrostatique sous tension, contrairement à Dreizin [1996], la flamme de diffusion possède une géométrie sphérique. Ainsi, dans les conditions d'analyse, aucune déformation apparente du nuage de particules submicroniques dans une direction préférentielle n'est identifiée lorsque la surface de la goutte est homogène. Cette différence peut être hypothétiquement attribuée à la valeur des champs électriques générés qui est plus importante dans le cas de Dreizin [1996]. En effet, la valeur du champ induit par le dispositif de l'auteur varie entre $5 \cdot 10^4$ et $2 \cdot 10^5$ kV/m alors que la valeur maximale estimée pour le lévitateur est proche de 100 kV/m. Selon l'analyse proposée par Bar-Ziv and Sarofim [1991], il est supposé que des pertes de charge considérables se produisent à haute température par émission thermoionique lors de la combustion, inhibant toute influence du champ électrique relativement faible sur les espèces condensées. Divers essais ont été effectués en ce sens en chauffant une particule d'aluminium dans un milieu non réactif. Les observations soutiennent la théorie avancée et la goutte chauffée n'est pas maintenue en lévitation, chutant avec une vitesse typique d'une goutte en sédimentation selon les prédictions établies par la loi de Stokes (Fig. 4.2). Aussi, malgré la possible ionisation de la phase gazeuse de la flamme lors de la réaction de l'aluminium (Dreizin [1996]) et son inhérente sensibilité aux effets électriques perturbateurs (Ueda et al. [2002]), la forme sphérique de la zone de réaction observée ici corrobore également l'absence de ce type d'influence sur la phase gazeuse.

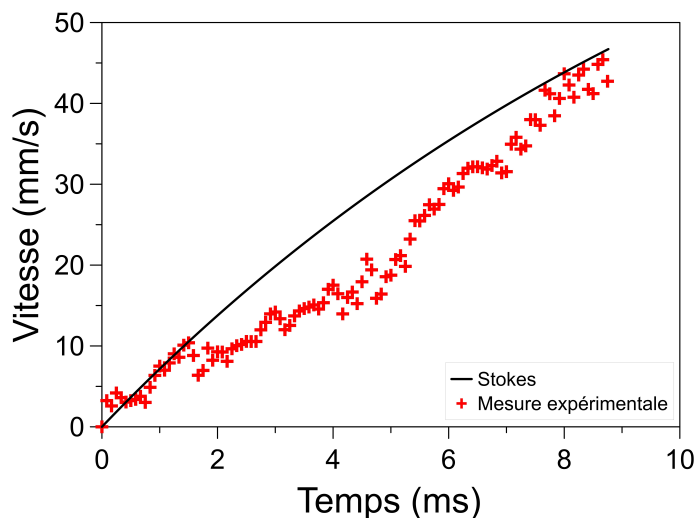


FIGURE 4.2 – Vitesse de sédimentation d'une goutte chauffée dans un milieu non réactif.

4.1.2 Chambre haute pression instrumentée

Le lévitateur électrostatique permet donc d'isoler une unique particule sans support matériel pour analyser la réaction de l'aluminium dans des conditions fondamentales. Afin de caractériser l'influence des paramètres ambiants sur ce processus, le dispositif doit être complété pour contrôler la pression et la composition chimique du milieu environnant la particule. Pour répondre à ce besoin, une chambre haute pression (HP) instrumentée a été développée pour confiner le système de lévitation dans un environnement statique maîtrisé et modulable qui pourra notamment, de manière partielle, être représentatif de la chambre de combustion des MPS (Fig. 4.3).

La chambre HP est composée d'un corps métallique de forme cylindrique en alliage d'aluminium AU4G fermé à chaque extrémité par un couvercle. Ainsi conçu, cet ensemble totalement hermétique résiste à des pressions élevées et à l'oxydation induite par les éléments chimiques utilisés. La pression de travail maximale soutenue par l'enceinte est de 120 bar à température ambiante. Cette dernière est alimentée en gaz par l'intermédiaire d'une installation composée de lignes HP indépendantes chacune pourvue de systèmes de détente et de contrôle (manomètre). Les gaz proviennent de bouteilles pressurisées stockées dans un local externe. Grâce à l'utilisation de vannes micrométriques, il est alors possible d'injecter séparément et précisément chaque gaz du mélange cible. Un manomètre numérique (0-4 bar, 1 mbar, $\pm 0,1\%$ / 0-31 bar, 10 mbar, $\pm 0,1\%$) permet à la fois de contrôler la pression absolue interne de la chambre et de fixer la composition du milieu ambiant avec exactitude en mesurant la pression partielle de chaque espèce.

La chambre HP est équipée de divers composants annexes pour assurer l'injection, l'allumage et la visualisation des particules isolées. Un piston compensé est intégré au couvercle supérieur de l'enceinte sur lequel est également fixé un injecteur en plastique PEEK contenant la poudre d'aluminium. Cet ensemble permet alors d'injecter des particules métalliques chargées au sein du lévitateur dans des conditions variables de pression et de température. Répartis par paire et diamétralement opposés, différents accès optiques sont disposés sur le plan médian du corps principal. Dans l'axe d'observation, deux accès laissent traverser l'ensemble de la lumière visible au travers de hublots en fluorure de baryum (BaF₂ / ZKN7). Deux autres accès sont ensuite prévus pour propager et focaliser le faisceau laser, constitués chacun d'un hublot en sélénure de zinc (ZnSe) et d'une lentille de focalisation ($f = 50$ mm) dont les propriétés optiques sont spécifiquement appropriées pour transmettre efficacement le rayonnement infrarouge à la longueur d'onde du laser.

4.1.3 Installations complémentaires

Présents parmi les produits de combustion des propergols solides, le CO₂ et le N₂ peuvent être directement approvisionnés par des bouteilles pressurisées reliées au réseau d'alimentation principal. Néanmoins, l'analyse de la réaction de l'aluminium dans des milieux caractéristiques des MPS requiert des installations additionnelles nécessaires pour alimenter la chambre HP en CO et en vapeur d'eau. Un caisson de confinement ventilé a été réalisé et associé au banc expérimental pour entreposer une bouteille de monoxyde de carbone dans des conditions de sécurité adaptées, permettant d'inclure le CO au sein des compositions chimiques étudiées. Une solution d'ensemble a été conçue pour générer de la vapeur d'eau sous pression dans la chambre HP. Ce dispositif inclut un réservoir d'eau couplé à un circuit dédié et un système de chauffage résistif complet permettant d'accroître et de réguler la température du réservoir, du réseau d'alimentation et de l'enceinte. La température de l'ensemble est paramétrée selon les

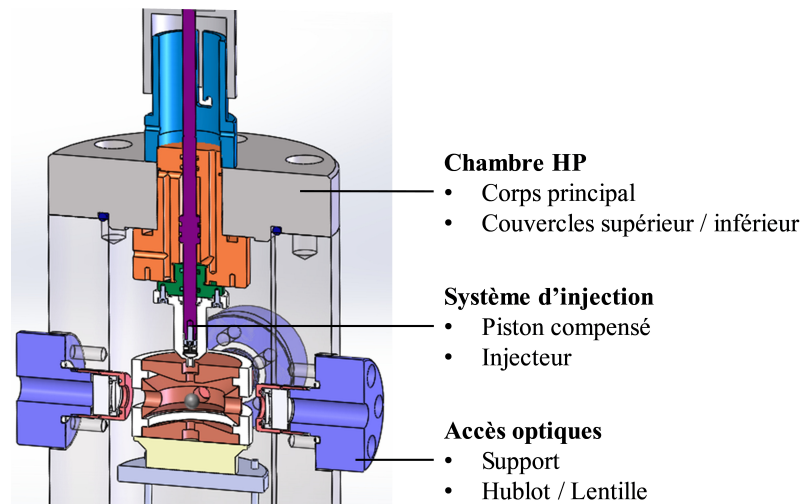


FIGURE 4.3 – Représentation schématique de la chambre HP instrumentée confinant le léviteur électrostatique.

conditions de pression souhaitées et d'après le diagramme de phase de l'eau. Initialement à faible pression (< 1 atm), l'eau liquide du réservoir est rapidement soumise à des températures supérieures à son point d'ébullition et se vaporise progressivement, élevant graduellement la pression dans l'ensemble du réseau d'alimentation et de la chambre HP jusqu'à la valeur cible. Ainsi, il est dorénavant possible d'établir un milieu oxydant contenant de la vapeur d'eau en proportions définies. Les systèmes conçus et mis au point étendent donc les capacités du dispositif original et permettent d'acquérir des informations sur la combustion de l'aluminium dans des conditions peu documentées dans la littérature.

4.2 Système d'allumage laser

Un laser CO_2 infrarouge ($\lambda_{\text{laser}} = 10.6 \mu\text{m}$) SYNRAD 48-5 est utilisé pour apporter l'énergie nécessaire à l'allumage de la particule visée.

Étudiée en détail (Marion [1996]), il a été démontré que dans cette application, l'interaction laser/matière (aluminium) contribue uniquement à l'élévation de la température de l'élément métallique, sans effet de photo-dissociation. D'après cette théorie, l'utilisation du laser permet d'établir des conditions de chauffage similaires à celles retrouvées dans la chambre de combustion des MPS où la chaleur est transmise par convection et par rayonnement.

Intégré à l'installation expérimentale, le laser génère un faisceau gaussien d'un diamètre (waist) $D_{0,\text{waist}}$ de 3.5 mm qui est directement divisé en deux par une lame séparatrice 50/50 en ZnSe. Ensuite, chaque faisceau est réfléchi par un ensemble de miroirs silicium avant d'être finalement focalisé sur la particule en lévitation par la lentille ($f = 50$ mm) incorporée à l'accès optique de la chambre HP (Fig. 4.6). De cette façon, la particule positionnée dans le plan focal des lentilles est impactée symétriquement, permettant ainsi de garantir une répartition homogène de l'énergie et de conserver une position fixe lors de la phase de chauffage. Selon les relations optiques de conjugaison gaussienne, le diamètre $D'_{0,\text{waist}}$ du faisceau dans le plan de focalisation image des lentilles dépend du diamètre objet du rayon, de λ_{laser} et de f (Eq. 4.6). La distance parcourue par le faisceau laser avant focalisation est inférieure à la distance de Rayleigh Z_R (Eq. 4.5), ainsi, le diamètre du faisceau peut être considéré constant et le diamètre objet

équivalent à $D_{0,waist}$. Dans le cas considéré, le diamètre $D'_{0,waist}$ est alors estimé à $193 \mu m$.

$$Z_R = \frac{\pi D_{0,waist}^2}{4\lambda_{laser}} \quad (4.5)$$

$$D'_{0,waist} = \frac{4f\lambda_{laser}}{\pi D_{0,waist}} \quad (4.6)$$

Piloté par une commande intermédiaire, le laser délivre une énergie paramétrable et stable sur un pulse défini. Avec une puissance maximale exploitée de 50 W et connaissant le coefficient de transmission global des trajets optiques ($\tau = 0.84 - 0.85$), la densité énergétique du faisceau après focalisation est évaluée à $1.5 \cdot 10^9 \text{ W/m}^2$, respectant le critère proposé par Wilson Jr and Williams [1971] pour permettre un allumage rapide tout en préservant la stabilité et l'intégrité de la particule. Enfin, pour une taille de particule donnée, l'énergie transmise par le laser et absorbée par l'élément cible est indépendante du milieu environnant (Marion [1996]), assurant la comparabilité des résultats.

4.3 Moyens d'analyse

Les mesures effectuées reposent principalement sur des diagnostics optiques. Tout d'abord, des tubes PM HAMAMATSU R2752 pourvus de filtres optiques sont utilisés pour transformer les émissions radiatives collectées en signaux de tension et renseigner sur l'évolution de la trace lumineuse de la particule pendant le processus de combustion. Un tube PM consiste plus précisément en un réseau de dynodes soumises à un champ électrique orienté qui, par émission secondaire d'électrons, permettent de multiplier le potentiel électronique initialement reçu. Une photocathode disposée à l'entrée du tube PM est exposée au rayonnement photonique issu de la particule émettrice et génère un flux d'électrons à sa sortie, également par émission secondaire. Ce processus est limité selon la réponse spectrale de la photocathode considérée (Fig. 4.4) et établit la source primaire d'électron qui sera ensuite transmise successivement aux dynodes pour être amplifiée. La sensibilité du réseau amplificateur est ainsi modulée par la norme du champ électrique induit au sein du tube. Une commande externe permet de paramétrer la tension d'alimentation des PM, modulant leur taux d'amplification. En sortie, une anode collecte l'ensemble des électrons produits et génère un courant d'intensité proportionnelle au débit de charge reçu. Les variations du courant induit sont finalement retranscrites sous la forme d'un signal de tension mesuré aux bornes d'une impédance de charge intermédiaire ($90 \text{ k}\Omega$) et compris entre 0 V et 10 V. Après amplification, une carte d'acquisition USB-1808X (Measurement Computing) permet de numériser le signal sur 18-bit avec une résolution de $75 \mu V$ et une fréquence de sortie de 100 kHz limitée par l'impédance globale du circuit.

Une caméra haute vitesse PHANTOM V1611 combinée à un microscope longue distance QUESTAR QM100 est également focalisée sur la particule en réaction. Le capteur photographique CMOS convertit et amplifie le rayonnement électromagnétique reçu pour reconstruire une image numérique par l'intermédiaire d'une matrice de photosites. L'intérêt de ce type de capteur réside dans sa rapidité de lecture qui permet ici d'obtenir des vitesses d'acquisition élevées, de 16000 fps à résolution maximale ($1280 \times 800 \text{ px}$) à 49000 fps à la résolution minimale utilisée lors de cette étude ($512 \times 512 \text{ px}$). En comparaison avec les technologies précédemment utilisées pour caractériser la combustion

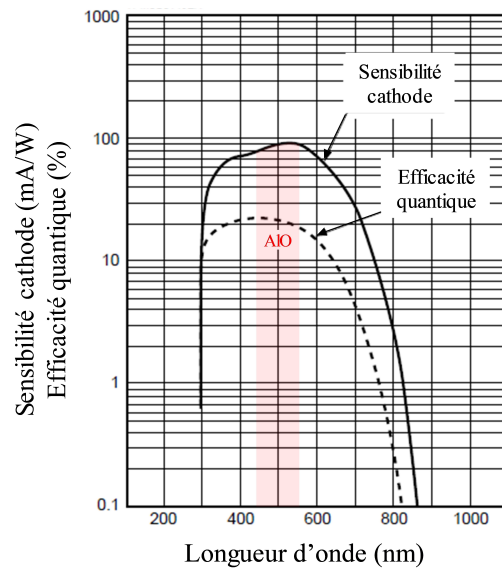


FIGURE 4.4 – Réponse spectrale de la cathode du tube PM HAMAMATSU R2752 et domaine spectral d'émission du gaz AlO.

de l'aluminium sur le dispositif de lévitation, la caméra numérique rapide intégrée au banc expérimental durant ces travaux offre la possibilité de traiter informatiquement et systématiquement chaque séquence d'images numériques. La précision de mesure est également accrue par l'amélioration considérable de la résolution spatiale du système de visualisation. En effet, le couplage entre la caméra et le microscope a été configuré pour assurer une résolution comprise entre $1.7 \mu\text{m}/\text{px}$ et $2.5 \mu\text{m}/\text{px}$ avec un grandissement et une profondeur de champ suffisants pour visualiser les phénomènes initiés durant la réaction des gouttes et suivre finement l'évolution des paramètres d'intérêt. La réponse spectrale de cet ensemble est principalement limitée par le capteur de la caméra dont les caractéristiques sont présentées par la figure 4.5.

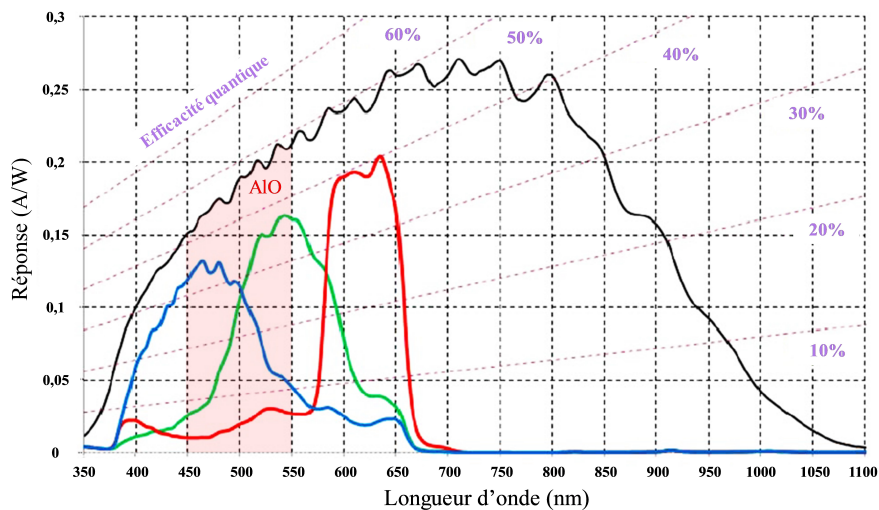


FIGURE 4.5 – Réponse spectrale de la caméra rapide PHANTOM V1611 et domaine spectral d'émission du gaz AlO.

L'ensemble des moyens d'analyse sont disposés selon l'axe d'observation perpendiculaire à l'axe des accès laser (Fig. 4.6). La caméra capte les émissions issues de la goutte en combustion sur un trajet optique direct au travers des hublots de la chambre HP et du microscope. Le trajet optique des PM se compose tout d'abord du hublot de la chambre HP et d'un objectif intégrant une lentille de focalisation ($f = 150 \text{ mm}$) positionné pour

collecter les émissions lumineuses et former un faisceau collimaté en sortie. L'image issue de l'objectif est ensuite divisée en sortie par un prisme séparateur qui dirige finalement les différents faisceaux vers les PM munis chacun d'un filtre interférentiel de bande passante 10 nm, respectivement à $\lambda_1 = 514.5$ nm et $\lambda_2 = 488$ nm.

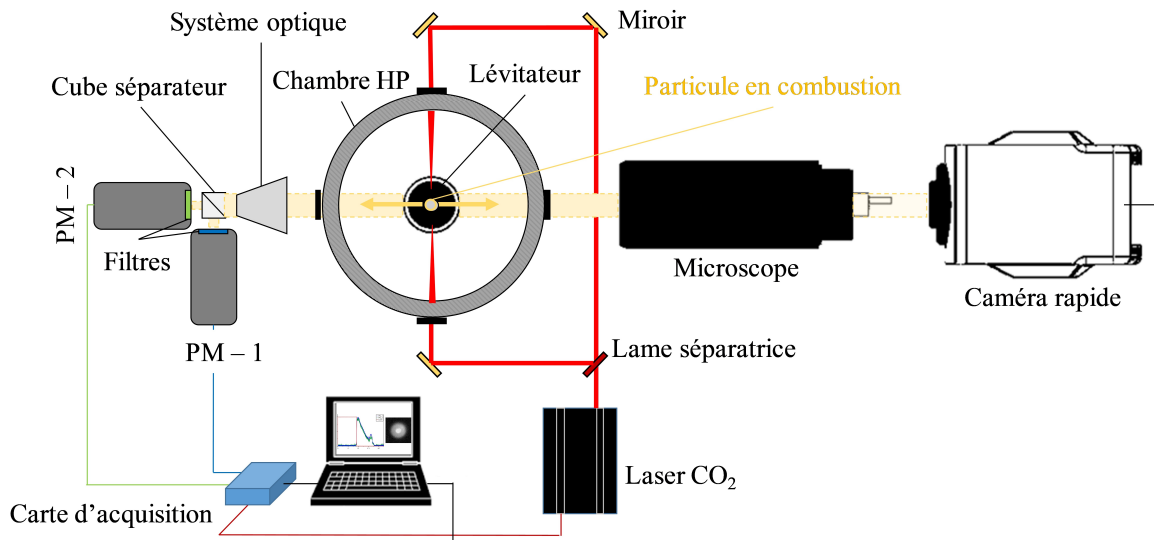


FIGURE 4.6 – Représentation schématique de l'ensemble de l'installation expérimentale.

4.4 Méthodologie expérimentale

Suivant le protocole expérimental, la première étape consiste à créer une atmosphère de paramètres connus au sein de la chambre HP en injectant successivement chacun des gaz et en fixant les proportions du mélange suivant leur pression partielle respective. Avant remplissage, une pompe à vide externe est actionnée pour générer un vide relatif dans l'enceinte à une pression absolue moyenne de 0.10 bar. Pour limiter l'imprécision suscitée par ce volume minimal permanent V_{vide} , notamment dans le cas d'un environnement à faible pression, la chambre est remplie du mélange de composition souhaité à haute pression (> 10 bar) avant vidange. L'opération est répétée et il est ainsi supposé, après balayage et évacuation, que V_{vide} est représentatif du mélange cible. Seul le volume des tuyaux d'alimentation entre la chambre HP et la nourrice d'approvisionnement constitue une source d'erreur dans la définition exacte des proportions du mélange ($\sim 0.8\%$).

Une fois les conditions ambiantes établies, les particules d'aluminium peuvent être dispersées dans le lévitateur par l'intermédiaire du système d'injection. Ces dernières sont chargées par frottement grâce à l'effet triboélectrique dans le réservoir interne en PEEK et sont alors sensibles aux champs électriques induits dans le lévitateur. Un nuage de particules est d'abord formé dans la chambre électrostatique, puis un seul échantillon est isolé en ajustant les paramètres de tension.

Le laser est préalablement aligné avec la position de la zone stabilisée du lévitateur. Son alignement relatif avec la particule isolée peut être vérifié par un pointeur diode permettant de visualiser le trajet du faisceau laser IR. Le déclenchement laser constitue alors la référence temporelle des séquences de visualisation directe et des signaux issus des PM. Les signaux PM assurent également l'extinction du laser dès lors que l'émission lumineuse de la particule chauffée dépasse un seuil défini, garantissant ainsi

la combustion autonome de la gouttelette d'aluminium.

4.5 Méthodologie d'analyse

Suivant les capacités du banc expérimental, l'étude proposée se base sur la caractérisation qualitative et précise des phénomènes observés ainsi que sur l'évaluation de différents paramètres d'intérêt (Tab. 4.2). Pour cela, une routine informatique a été développée avec le logiciel MatLab afin de traiter les signaux PM enregistrés et les images issues des séquences de combustion.

Paramètres primaires	Paramètres secondaires	Moyen d'analyse
Phénoménologie		Signaux PM Images caméra
Temps de combustion t_c	Exposant de combustion n	Signaux PM
Diamètre initial goutte D_0		Images caméra
Diamètre goutte $D_p(t)$	Taux de régression k	
Diamètre flamme $D_f(t)$	Luminosité surfacique goutte I_{s_p}	
Luminosité goutte $I_p(t)$	Luminosité surfacique flamme I_{s_f}	
Luminosité flamme $I_f(t)$	Rapports D_f/D_p , I_f/I_p et I_{s_f}/I_{s_p}	
Géométrie lobe		
Vitesse goutte $v_p(t)$		

TABEAU 4.2 – Tableau synthétique des paramètres d'intérêt caractérisés.

Tout d'abord, compte tenu de leur haute résolution spatio-temporelle, les séquences d'images obtenues sont inédites et apportent des informations substantielles. Les images brutes retranscrivent l'intégration spatiale des émissions perçues sur un temps d'exposition défini, pondérées par la sensibilité spectrale du capteur CMOS. La figure 4.7 présente l'image d'une goutte en réaction dans l'air ambiant. Cette illustration est directement issue de l'enregistrement caméra sans traitement numérique préalable. Dans le cas considéré, une flamme de diffusion peut être discernée en périphérie de la goutte, essentiellement grâce à la présence de particules submicroniques condensées rayonnant à haute température. Le lobe d'alumine est également identifiable en surface de la goutte d'aluminium.

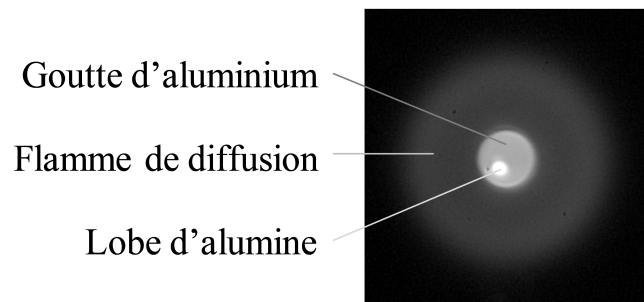


FIGURE 4.7 – Image d'une goutte d'aluminium en combustion dans l'air à pression atmosphérique.

L'objectif principal du traitement d'image élaboré sur MatLab est de suivre en continu l'évolution de l'ensemble visible. Dans un premier temps, la matrice de l'arrière-plan

enregistrée avant le déclenchement laser est soustraite à l'image brute pour réduire le bruit numérique résiduel. Une méthode de seuillage est alors utilisée pour localiser l'ensemble flamme/goutte et délimiter une zone d'intérêt centrée (Fig.4.8). Après le processus de réduction d'image, la détermination des diamètres respectifs de la flamme et de la goutte est basée sur l'interprétation des profils d'intensité médians.

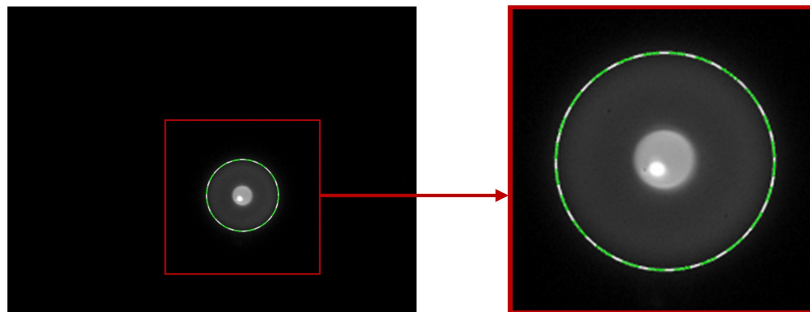


FIGURE 4.8 – Illustration de la détection de la zone d'intérêt (ligne verte discontinue) et de la réduction d'image.

La figure 4.9 illustre la méthode de détection du diamètre de goutte. L'interface entre la zone de flamme et la goutte est notamment identifiée par des gradients d'émission marqués. Se basant sur les données recensées quant au rapport entre la taille de la flamme et la taille de la goutte, un masque est créé pour occulter la majorité de la zone de flamme. De cette façon, la contribution d'éléments lumineux pouvant être situés en dehors de la goutte est limitée, facilitant ainsi la lecture des profils relevés. Par ailleurs, l'émission lumineuse du lobe d'oxyde peut altérer la détection de la goutte en créant d'importants gradients d'intensité. Par seuillage, la position approximative du lobe est déterminée et la valeur des pixels de cette zone est diminuée pour être similaire à celle des pixels adjacents. Le niveau de gris est finalement extrait sur plusieurs profils radiaux (~35 profils) et les extremums de leurs dérivés permettent de définir le diamètre de la goutte. Lors de la lecture du profil dérivé moyen, les pics extérieurs traduisent le passage masque/flamme et sont systématiquement ignorés.

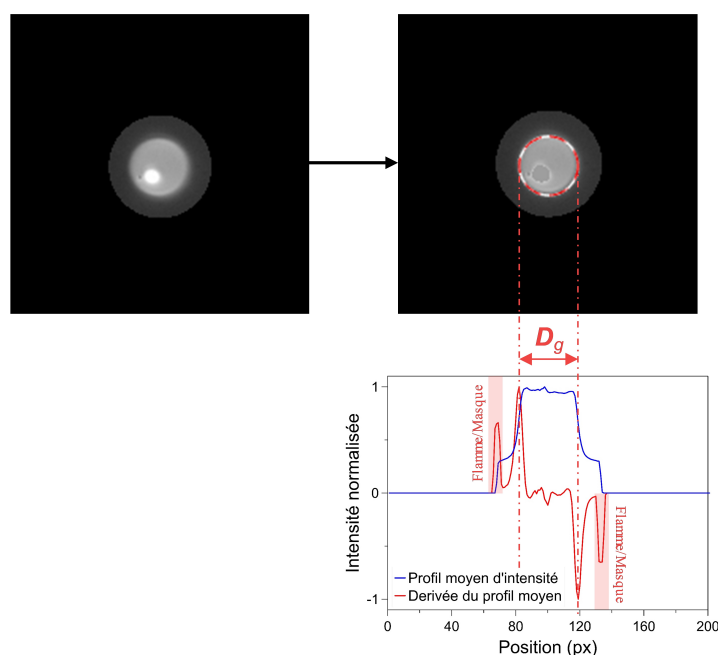


FIGURE 4.9 – Illustration de la méthode de détection du diamètre de goutte.

Ensuite, la limite de la zone de flamme peut être définie comme correspondant à la position où les produits de combustion intermédiaires tels que l'AlO sont consommés dans leur totalité. D'après les résultats expérimentaux proposés par Bucher et al. [1996] sur la structure de flamme d'une goutte d'aluminium isolée, le maximum du facteur combinant la température et la concentration en élément final $\text{Al}_2\text{O}_{3(l)}$ mesurées sur le profil radial semble correspondre à la fin de réaction de l'AlO. En ce sens, le flux rayonné par la flamme étant défini localement à la fois par la température et la concentration en particules de taille submicronique, le profil radial d'émission est alors potentiellement un traceur pertinent de ces critères. Cela reste valable si les émissions observées selon la réponse caméra sont principalement issues des éléments condensés de la flamme. La lecture du spectre d'émission d'une flamme aluminium-air et de la courbe de réponse caméra précédemment présentés (Fig. 3.6 et Fig. 4.5) corrobore cette hypothèse et, finalement, la localisation du maximum d'intensité dans la zone de réaction est une référence représentative de la limite spatiale de la flamme selon la définition proposée. Néanmoins, les images brutes enregistrées intègrent l'ensemble des émissions reçues et retranscrivent la somme des valeurs locales situées le long de la ligne de visée. Une méthode de déconvolution algorithmique est ainsi utilisée pour conférer une signification physique aux intensités mesurées. La flamme ayant une géométrie axisymétrique et étant optiquement mince, l'application de la transformée inverse d'Abel de type BASEX (Basis set expansion method) sera employée ici pour reconstruire les informations bidimensionnelles du plan de focalisation (Dribinski et al. [2002]). La figure 4.10 présente cette étape de traitement. La goutte en réaction opaque ne constituant pas un élément optiquement mince, les informations locales issues du processus de déconvolution n'ont aucune valeur physique dans cette zone. Afin de restreindre la contribution des données parasites, un masque est donc appliqué sur la goutte avant le traitement d'Abel. L'image résultante démontre l'intérêt de l'algorithme d'inversion qui met en évidence la structure de la flamme. Ainsi, en régime de diffusion, la flamme semble être détachée de la goutte et différentes zones sont identifiables. En accord avec la description proposée par Bucher et al. [1996] quant à la localisation spatiale des différentes espèces dans la flamme, la zone sombre correspond à la zone de réaction en phase gazeuse et les émissions plus intenses constatées en périphérie sont attribuées aux particules condensées d' Al_2O_3 à haute température. Ces observations confortent l'hypothèse selon laquelle le nuage de particules submicroniques d'alumine est la source principale de rayonnement au sein de la flamme.

L'exécution de ce processus de manière itérative sur l'ensemble des images de la séquence vidéo permet un suivi temporel de l'évolution des diamètres de goutte et de flamme, fournissant notamment des informations intéressantes sur le taux de régression des gouttes. L'évolution de la position de l'ensemble goutte/flamme et de ses paramètres géométriques étant connue, l'intensité des émissions respectivement issues de ces éléments peut alors être déterminée en additionnant la valeur des pixels contenus dans chaque zone correspondante. La vitesse linéaire de la goutte est également estimée en évaluant l'évolution temporelle du vecteur position pris au centre de l'ensemble goutte/flamme.

Selon la configuration présentée par la figure 4.11 où le plan de focalisation constitue le plan de symétrie de la goutte et du lobe d'alumine, le volume du lobe est caractérisé par différents paramètres géométriques. Cependant, bien que le lobe d'alumine puisse être observé en surface de la goutte, le suivi de ses paramètres géométriques est limité. Plus particulièrement, la détermination des hauteurs h_p et h_l des calottes sphériques de la goutte et du lobe est soumise à une incertitude importante liée à la résolution spatiale insuffisante pour réaliser précisément ces mesures. De plus, le lobe n'est pas

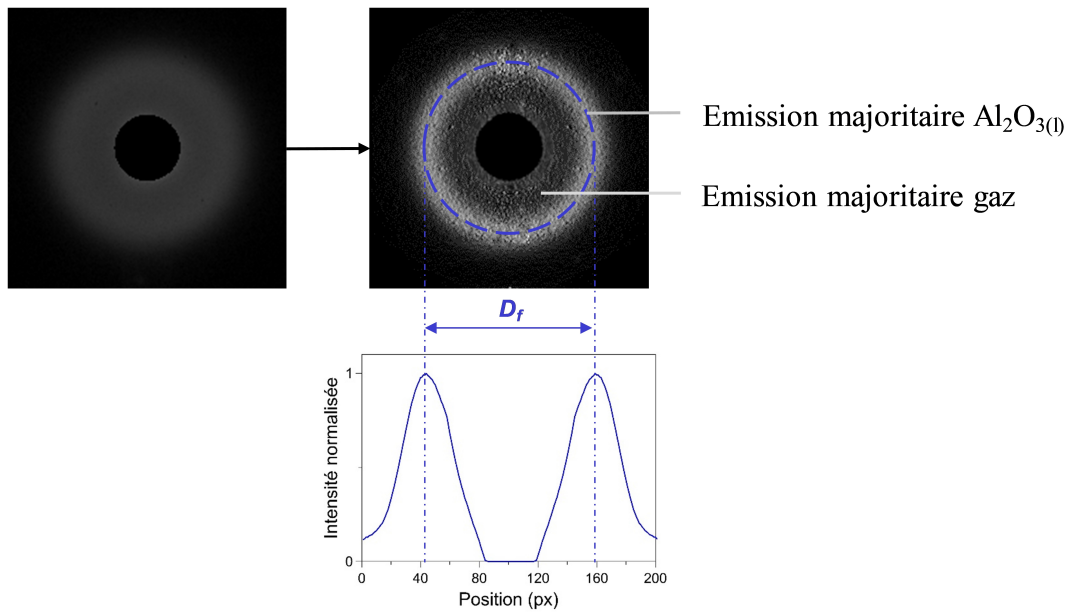


FIGURE 4.10 – Illustration de la méthode de détection du diamètre de flamme.

continuellement visible au cours du processus de combustion et son orientation par rapport au plan de visualisation influence directement les mesures. L'évolution du lobe sera donc uniquement décrite qualitativement dans le cadre de cette étude.

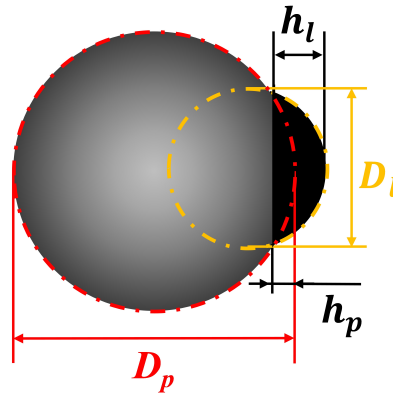


FIGURE 4.11 – Illustration des paramètres géométriques définissant le volume du lobe d'alumine.

Les mesures par imagerie assurent également une détermination fiable de la taille initiale de la particule observée. Le temps de combustion étant essentiellement dépendant du diamètre initial de la goutte D_0 , ce paramètre est fondamental pour évaluer correctement la relation liant t_c et D_0 . Le temps de réaction est directement mesuré grâce à la synchronisation des différents diagnostics optiques selon une méthode illustrée sur la figure 4.12 pour une particule d'aluminium en combustion dans l'air ambiant. En raison de leur forte sensibilité et de leur large fenêtre d'observation, les photomultiplicateurs renseignent temporellement sur l'intensité globale des émissions de la particule durant l'ensemble des phases inhérentes du processus de réaction (chauffage, allumage, combustion et extinction). Le champ de la caméra ayant une profondeur et une résolution limitée pour permettre un grandissement suffisant, les phases de combustion et d'extinction ne sont pas systématiquement observées dans leur totalité. Pour rendre l'intégralité des essais exploitable et permettre une collection conséquente de données, la visualisation directe est utilisée pour identifier précisément l'initiation de la combustion ($t = 0$) et le retour des signaux PM à leurs valeurs basses marque la fin du phénomène

de combustion et l'extinction ($t = t_c$). De plus, le délai d'allumage étant dépendant du moyen de chauffage employé, cette approche améliore davantage la mesure du temps de combustion et la rend indépendante de la stratégie expérimentale employée.

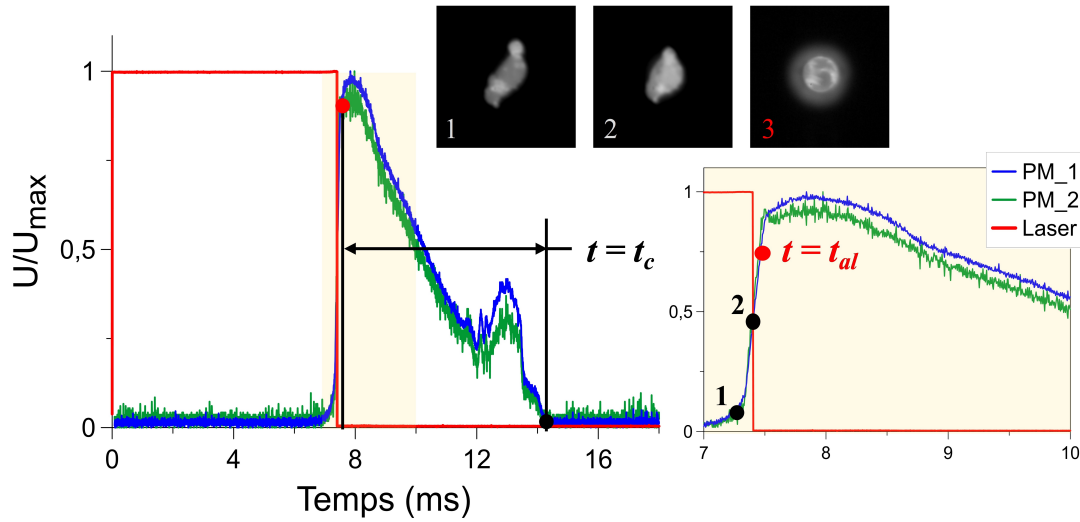


FIGURE 4.12 – Méthode de détermination du temps de combustion selon les informations caméra et PM.

Les incertitudes de mesure liées à cette méthodologie de traitement sont restreintes par les hautes résolutions spatiale et temporelle des moyens d'analyse. L'incertitude des mesures réalisées par imagerie est alors comprise entre 1 et 2 px et la précision relative aux temps mesurés est estimée à ± 0.1 ms.

Finalement, le banc expérimental développé et actualisé regroupe l'ensemble des capacités requises pour analyser précisément le processus fondamental de la combustion d'une goutte d'aluminium isolée dans un milieu contrôlé. L'installation de modules complémentaires élargit le champ d'étude en permettant de reproduire des conditions partiellement représentatives des MPS, notamment avec la possibilité d'intégrer des gaz oxydants tels que le CO ou la vapeur d'eau dans lesquels peu de données sont disponibles dans la littérature. Les moyens d'analyse mis au point proposent une approche expérimentale inédite avec l'obtention de séquences dynamiques à haute résolution spatio-temporelle. Enfin, l'apport du numérique favorise la collection d'un volume conséquent de données systématiquement traitées et améliore la précision de l'ensemble des résultats obtenus.

Chapitre 5

Résultats expérimentaux

5.1 Synthèse

Dans le cadre de ces travaux de thèse, la combustion des particules d'aluminium a été étudiée dans des conditions ambiantes diverses selon une démarche cohérente et progressive. Une synthèse de l'ensemble des cas d'étude est présentée par le graphique de la figure 5.1.

Tout d'abord, afin d'évaluer les capacités expérimentales du dispositif élaboré, des essais ont été préalablement menés dans l'air à température ambiante (~ 293 K) et à pression atmosphérique (~ 1 bar). Les résultats obtenus ont été directement confrontés aux données documentées dans la littérature pour identifier, en amont, d'éventuelles incohérences qui pourraient être liées à la méthodologie expérimentale. Cette phase préliminaire a alors permis de valider l'ensemble du processus d'expérimentation et a mis en évidence la pertinence du montage assurant la visualisation directe des phénomènes de réaction. Considérant le cas de la combustion de l'aluminium dans l'air ambiant comme référence, les observations réalisées sur la phénoménologie et les paramètres de combustion ont également orienté les axes de recherche principaux. Ainsi, l'effet de la pression a ensuite été initialement étudié dans l'air.

Selon les constats établis dans l'air et d'après l'analyse bibliographique précédemment présentée, une étude comparative de différents gaz diluants, similaire à Dreizin [1999b], a été initiée dans le but d'apporter des éléments de réflexion complémentaires. Le dioxygène O_2 a donc été conservé comme unique oxydant et le processus de réaction de l'aluminium a été analysé dans des mélanges O_2/N_2 , O_2/Ar et O_2/He en proportions variables.

Afin de répondre aux objectifs majeurs de ce projet de recherche, la combustion des gouttes d'aluminium a été également étudiée avec des oxydants typiques des moteurs à propergol solide dans des mélanges partiellement représentatifs. Présents dans des proportions significatives en environnement moteur, les rôles respectifs du CO_2 et du CO doivent être davantage analysés et précisés, d'autant plus que peu de données sont documentées à ce sujet. Des essais en atmosphères purement oxydantes CO_2 , CO , CO_2/CO et CO_2/O_2 ont été menés, notamment avec une pression variable dans les cas du CO_2 pur et du CO pur. Enfin, pour étudier la contribution du N_2 dans le processus de réaction de l'aluminium avec des gaz caractéristiques, des mélanges CO_2/N_2 ont aussi été expérimentés.

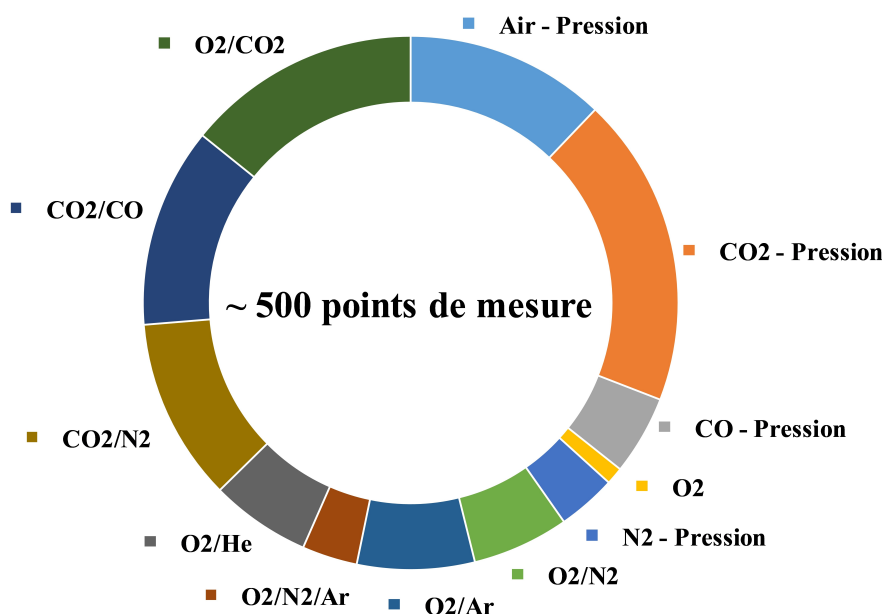


FIGURE 5.1 – Graphique synthétique de l'ensemble des conditions expérimentales analysées.

5.2 Étude préliminaire de la combustion de l'aluminium dans l'air

5.2.1 Étude à pression atmosphérique

L'étude de la réaction des particules d'aluminium dans l'air à pression atmosphérique permet de déterminer les caractéristiques phénoménologiques et les paramètres de référence du processus dans des conditions documentées. L'objectif de cette analyse préliminaire sera également de confronter directement les résultats obtenus aux données disponibles dans la littérature. En ce sens, la figure 5.2 présente une séquence de combustion typique d'une particule d'aluminium dans l'air ambiant ainsi que différentes mesures associées. Ce condensé d'informations permet ainsi d'apprécier les capacités d'analyse de la méthodologie expérimentale développée, basée sur les diagnostics et les outils de post-traitement précédemment détaillés. L'approche combinant la visualisation directe à haute résolution avec la sensibilité des tubes PM introduit alors des résultats inédits permettant de décrire et de caractériser précisément le processus de réaction d'une goutte d'aluminium isolée de taille micrométrique.

Observations phénoménologiques

Les images brutes offrent un visuel exploitable de l'évolution de la flamme, de la goutte et du lobe. Un filtre Laplacien est d'ailleurs appliqué à certaines images de la séquence afin d'améliorer la distinction des contours et mettre en évidence l'évolution du lobe d'oxyde (Fig. 5.2 5'-8'). Ce traitement d'image permet d'approximer la dérivée seconde de l'intensité lumineuse dans les deux directions spatiales puis de reconstruire une image filtrée en niveaux de gris. Comme introduit précédemment, le lobe d'oxyde correspond aux zones de forte intensité lumineuse en surface de la goutte sur les images non filtrées et est coloré en rouge sur les images filtrées. Les résultats issus du traitement d'images et de signaux apportent également des renseignements complémentaires sur l'évolution des paramètres géométriques de l'ensemble et sur les

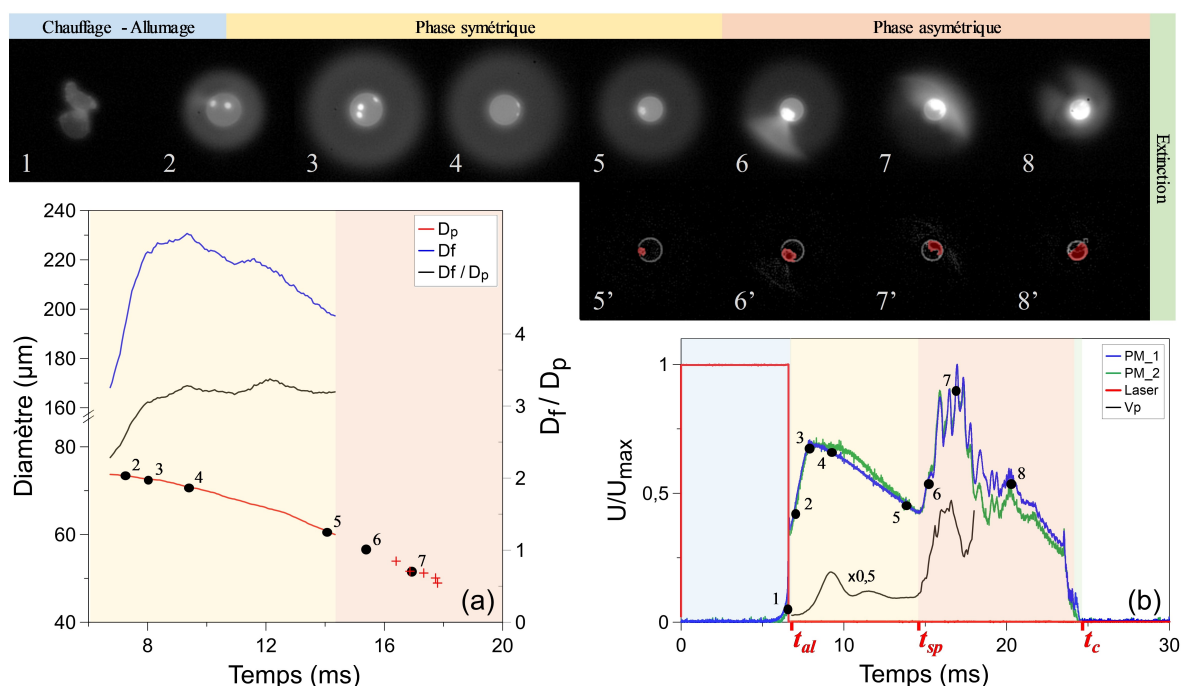


FIGURE 5.2 – Illustration de la séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium ($D_0 = 75 \mu m$) dans l'air à pression atmosphérique et de l'évolution des différents paramètres mesurés. (a) Paramètres géométriques de la goutte et de la flamme - (b) Signaux normalisés des PM et du laser / Vitesse linéaire projetée et normalisée de la goutte.

fluctuations des émissions radiatives. La phénoménologie du processus de combustion d'une goutte d'aluminium peut alors être finement décrite depuis les observations faites sur la figure 5.2.

Tout d'abord, l'énergie de chauffage, fournie ici par le laser CO_2 , permet d'atteindre le point de fusion de l'aluminium et la particule solide est transformée en une goutte liquide sphérique sous l'effet de la tension superficielle. Cette phase est caractérisée par une émission lumineuse croissante de la particule solide due à l'augmentation de sa température. Le point de fusion de l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 est finalement atteint et la couche passive initiale devient également liquide, formant un/des lobe(s) à la surface de la goutte de métal (Fig. 5.2 2). A ce stade, l'aluminium gazeux peut réagir avec l'environnement oxydant et le processus de combustion commence. Les observations renseignent sur l'établissement d'un régime de combustion en phase vapeur avec la formation d'une flamme de diffusion qui se développe autour de la goutte liquide sous une forme totalement sphérique et une symétrie apparente (Fig. 5.2 3). L'aluminium réagit ensuite de manière auto entretenue dans une phase vapeur symétrique et stable. Durant cette phase, les paramètres géométriques de l'ensemble réactif peuvent être mesurés (Fig. 5.2 (a)). Le diamètre de la goutte D_p et le diamètre de la flamme D_f diminuent avec un rapport constant proche de 3.4, similaire aux résultats répertoriés (Dreizin [1996], Bucher et al. [1996], Legrand [2000]) et le signal d'émission diminue progressivement (Fig. 5.2 (b) 3-5).

Néanmoins, la détection précise des contours par application du filtre Laplacien met en évidence le développement d'un agrégat d'oxyde sur la surface de la goutte en réaction. Contrairement aux observations faites par Sarou-Kanian et al. [2005a], la zone recouverte par le lobe s'étend progressivement et le débit d'aluminium vaporisé est alors localement altéré. Une transition de régime est observée lorsque le taux de recouvrement devient relativement significatif, modifiant la géométrie de la flamme dont

la forme asymétrique marque visuellement la rupture du régime en phase symétrique (Fig. 5.2 5'-6'). Ce phénomène est notamment identifiable sur la séquence d'images proposée et est également caractérisé par un pic d'intensité singulier sur les différents signaux d'émission, émanant de l'apparition de produits à forte émissivité (Fig. 5.2 (b)). Après transition, la vaporisation de la particule se poursuit et un écoulement gazeux d'aluminium est maintenu sur la surface réduite non recouverte. La quantité de mouvement générée par le flux gazeux n'étant cependant plus répartie de façon homogène, le déplacement de la goutte durant la phase asymétrique est marqué par des effets de poussée (jetting) et de rotation (spinning) induisant des variations brusques de trajectoire avec une vitesse relativement accrue (Fig. 5.2 (b)). Par conséquent, l'évolution de l'intensité lumineuse émise devient alors oscillatoire en phase asymétrique. L'oxyde liquide continue de s'accumuler en surface et semble finalement recouvrir la majorité de la goutte (Fig. 5.2 7'-8'). Enfin, la complémentarité entre les images caméra et les signaux PM démontre que la réaction de l'aluminium persiste dans ces conditions jusqu'à l'extinction complète. Les mesures par imagerie au cours de la phase asymétrique sont limitées et seuls quelques points de mesure peuvent être relevés sur le diamètre de la goutte à titre indicatif (Fig. 5.2 (a)), ne permettant pas de conclure explicitement quant au résidu de combustion final. En effet, au vu des observations, l'ensemble résiduel pourrait potentiellement contenir une fraction de métal imbrûlé si une couche passive d'oxyde s'établit sur l'intégralité de la surface de la goutte et inhibe la réaction de l'aluminium avec l'oxydant environnant.

Le postulat de Dreizin [1996] quant à l'existence de différentes phases de combustion inhérente de l'accumulation d'oxydes condensés sur la goutte est donc confirmé sans ambiguïté. Les observations réalisées ici ne permettent pas de statuer sur les mécanismes impliqués dans le processus d'accumulation mais précisent davantage la dynamique de formation du lobe. Visuellement, aucune production d'oxyde n'est identifiée en surface de la goutte lors de la phase de combustion symétrique et la taille du lobe initialement formé reste d'ailleurs similaire durant cette période. Dans ces conditions, le processus d'accumulation ne semble pas résulter d'une dynamique graduelle et le taux d'expansion de la couche d'oxyde croît de manière soudaine (Fig. 5.2 5-6). Ces informations soutiennent alors les différentes hypothèses précédemment introduites dans la partie 3.2.2 et qui supposent notamment que le développement de la couche d'oxyde résulte de changements de phase dans le système binaire Al-O suite à des réactions hétérogènes entre l'aluminium liquide et les espèces gazeuses oxygénées ayant diffusées jusqu'à la surface de la goutte (Dreizin [1996]). En effet, la dynamique observée peut correspondre avec celle des phénomènes thermochimiques impliqués lors d'un changement de phase. Il apparaît aussi sur l'ensemble des séquences que le processus d'accumulation est systématiquement initié depuis la position du lobe en surface. De plus, au début de son expansion, la forme de l'îlot d'oxyde présente temporairement une géométrie marquée par des discontinuités pouvant suggérer la co-existence possible de différentes phases liquides en surface (Fig. 5.2 6'-7'). Ces éléments sont donc également en accord avec les mécanismes décrits sur la figure 3.8 et confortent par conséquent le raisonnement développé par les travaux de Dreizin [2003].

Caractérisation détaillée du processus de réaction

La durée de la phase symétrique est un critère pertinent pour caractériser la dynamique du processus de réaction. Nommé ici t_{sp} , ce paramètre peut être précisément estimé d'après l'analyse des séquences d'images et des signaux PM en mesurant le temps écoulé entre l'allumage à t_{al} et l'émergence soudaine d'oxyde en surface de la goutte,

correspondant aussi à l'initiation du pic d'émission sur l'empreinte lumineuse des PM. Le diamètre de la goutte avant transition D_{sp} peut également être évalué de manière complémentaire. En moyenne, dans le cas de l'air à pression atmosphérique, la durée de la phase symétrique représente 44% du temps total de réaction et le diamètre de la goutte régresse de 26%. Les résultats expérimentaux sont présentés plus en détail sur la figure 5.3 et corroborent les données documentées de Dreizin [1996]. D'autre part, il apparaît que la quantité t_{sp}/t_c diminue lorsque le diamètre initial des gouttes augmente alors que le rapport D_{sp}/D_0 reste relativement constant (~ 0.7). Les valeurs renseignées mettent en évidence l'impact du processus d'accumulation d'oxyde sur la surface de la goutte et la phénoménologie constatée diverge donc sensiblement du comportement décrit par la loi du D^2 . En effet, même si certaines hypothèses suggérées par cette description théorique peuvent être supposées valables en phase symétrique, la transition de régime prématurée restreint rapidement l'application de la loi du D^2 qui n'est vraisemblablement plus applicable en phase asymétrique.

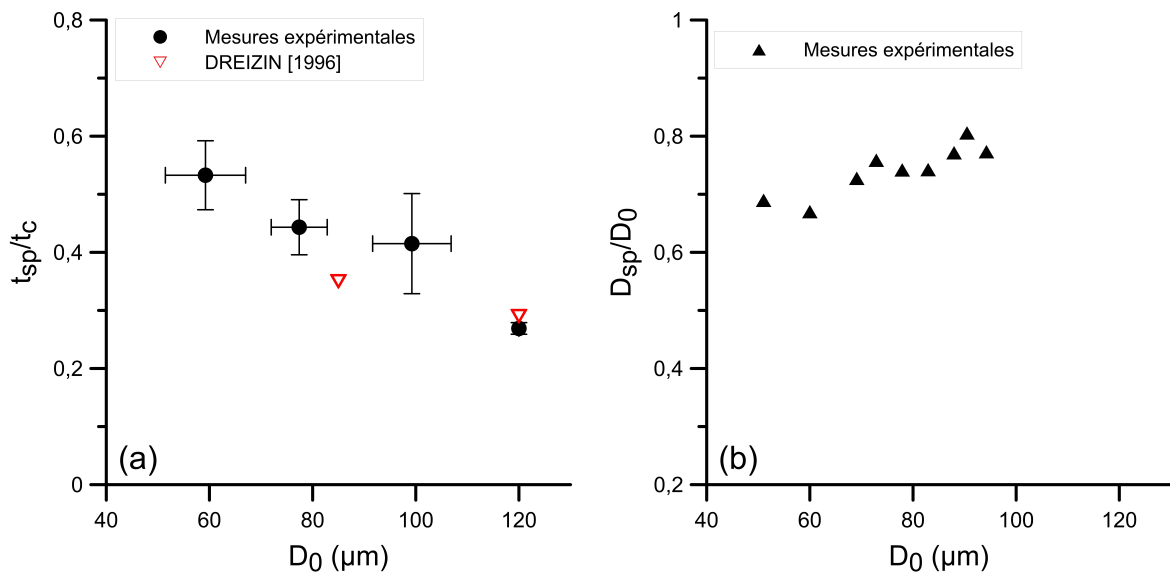


FIGURE 5.3 – Évolution des paramètres de transition. (a) Durée relative de la phase de combustion symétrique pour différents intervalles de diamètre initial de particule ([50 μm; 70 μm], [70 μm; 90 μm], [90 μm; 110 μm] et [110 μm; 130 μm]) - (b) Taille relative du diamètre de particule avant transition.

Comme détaillé dans la partie 3.1.3, l'évolution du diamètre de la goutte durant la phase de combustion symétrique peut être hypothétiquement définie selon la loi du D^2 d'après la relation 5.1 avec un exposant de combustion n fixé à 2 :

$$D_p^n(t) = D_0^n - kt \quad (5.1)$$

Cependant, au vu de la dispersion constatée au travers de la littérature quant à la valeur de l'exposant de combustion (Tab. 3.2), ce postulat reste incertain et sa validité doit être évaluée. En ce sens, les mesures obtenues durant la phase symétrique permettent potentiellement d'estimer l'exposant de combustion. La figure 5.4 - (a) introduit l'évolution temporelle du diamètre de plusieurs gouttes en réaction dans l'air à pression atmosphérique. Ces données sont ensuite normalisées pour être directement comparées et moyennées (Fig. 5.4 (b)) Les valeurs moyennes présentées incluent ici l'ensemble des essais pour lesquels la séquence vidéo permet un suivi précis du diamètre de la goutte lors de la combustion (17 essais) et les barres d'erreur illustrent l'intervalle de confiance global

à 95%. Les résultats quant à la régression temporelle normalisée des gouttes au cours de la phase symétrique ont donc une reproductibilité satisfaisante avec un écart type maximal de 6%.

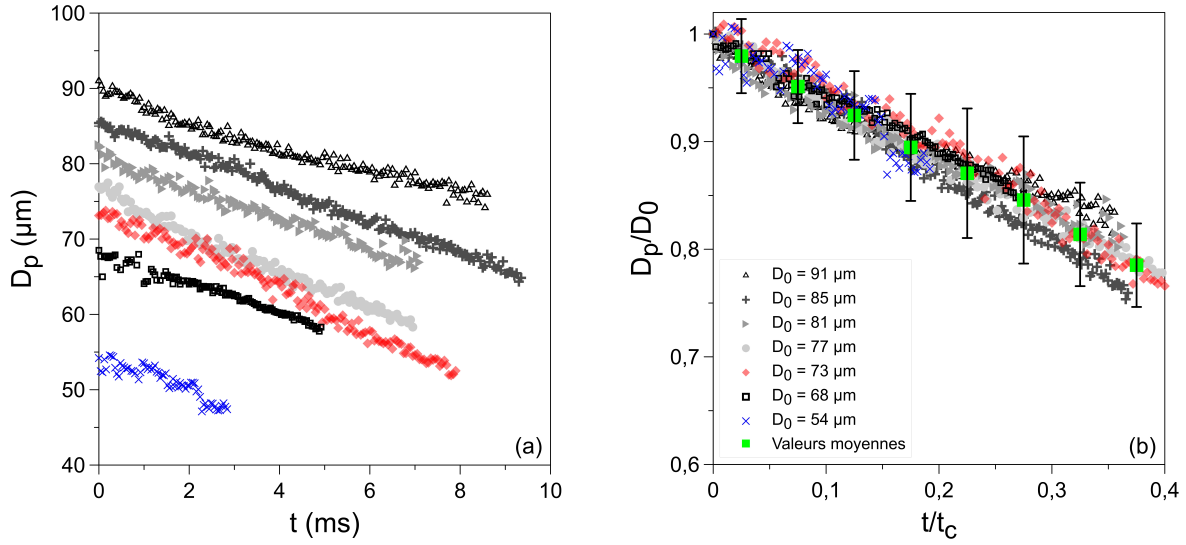


FIGURE 5.4 – Évolution du diamètre de goutte D_p pour différentes particules en réaction dans l'air à pression atmosphérique. (a) Résultats issus du traitement d'images - (b) Normalisation des données par rapport aux diamètres initiaux des gouttes D_0 et à leur temps de combustion t_c .

Ainsi, avec un nombre de point de mesure élevé (160 images), le cas proposé sur la figure 5.5 peut être retenu comme étant un exemple caractéristique de la tendance expérimentale pour estimer la valeur de n . L'exposant de combustion est alors déterminé avec une approche numérique de régression non linéaire suivant l'équation 5.2, basée sur un algorithme d'optimisation à région de confiance. Les paramètres n et k minimisant les moindres carrés établissent alors la loi de régression la plus représentative.

$$D_p(t) = (D_0^n - kt)^{(1/n)} \quad (5.2)$$

$$k = \frac{dD_p^n}{dt} \quad (5.3)$$

Dans le cas présenté en figure 5.5 - (a), l'exposant n optimal est évalué à 2.1, confirmant potentiellement l'hypothèse d'un comportement proche des attentes théoriques. Néanmoins, si n est fixé au préalable dans l'équation 5.2, il apparaît alors que l'approximation du profil est peu sensible à la variation de n avec un coefficient de détermination R^2 similaire pour l'ensemble des solutions étudiées (Fig. 5.5 (a)). D'après les courbes issues de l'équation 5.2, la durée du temps d'analyse et la diminution observée du diamètre de goutte sont insuffisantes pour sélectionner la loi de régression appropriée. D'autre part, cette observation demeure pour la totalité des essais. Dans cette configuration, la méthode employée semble finalement peu concluante pour une sélection pertinente de l'exposant de combustion.

Le taux d'évaporation des particules en réaction est ensuite un paramètre indicatif de l'effet des conditions ambiantes sur le processus de combustion. En considération des limites évoquées quant à la détermination précise de n , les expressions de la loi du D^2 seront conservées à titre de référence pour caractériser et comparer le taux de régression

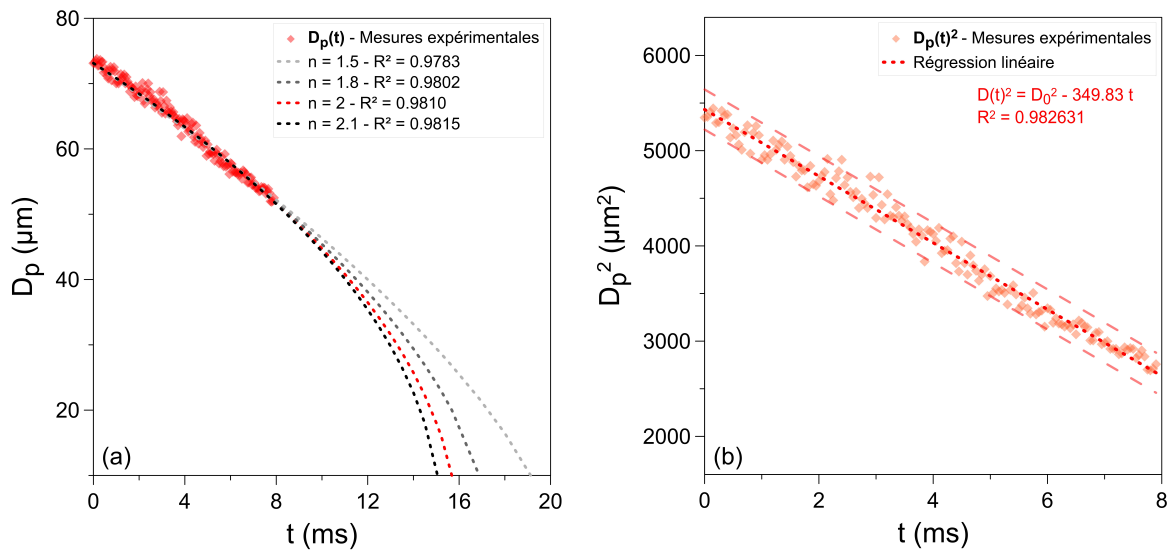


FIGURE 5.5 – Évolution du diamètre d'une goutte en réaction dans l'air à pression atmosphérique ($D_0 = 73 \mu\text{m}$). (a) Détermination de l'exposant de combustion n - (b) Détermination du taux de régression k selon la loi du D^2 .

des gouttes k dans les différentes conditions d'analyse. Selon cette théorie, k est une quantité scalaire définie par l'équation 5.3 pour $n = 2$ et déterminée en utilisant la visualisation directe, notamment à partir de l'évolution temporelle de D_p^2 en phase symétrique. Tel qu'il est exposé sur la figure 5.5 - (b), le taux d'évaporation correspond dans ce cas à la pente de la régression linéaire des points mesurés et la bande de prédiction à 95% renseigne quant à l'erreur de mesure faite sur l'estimation de k , évaluée en moyenne à 12% sur la totalité des essais. Cette démarche est appliquée pour l'ensemble des cas traités par imagerie et les valeurs ainsi déterminées sont regroupées sur la figure 5.6. D'après les résultats, et en accord avec la théorie, le taux de régression est considéré comme étant indépendant du diamètre initial des particules. Une valeur moyenne de k peut donc finalement être calculée pour des conditions ambiantes données, estimée dans le cas présent à $289 \mu\text{m}^2/\text{ms} \pm 12\%$. Cette méthode sera privilégiée par la suite pour la détermination du taux de régression.

Le taux de régression a aussi été estimé en renseignant les équations 5.4 et 5.5 introduites dans la partie 3.1.3 (Kuo [2005]) selon les informations extraites du code *NASA Chemical Equilibrium with Applications* (CEA) (McBride [1996]). L'utilisation de ce code permet alors de déterminer les paramètres de la phase gaz lors de la réaction de l'aluminium (capacité thermique massique C_p , masse volumique ρ_g et diffusivité thermique α_g) pour des conditions ambiantes connues (température T_∞ et fraction massique d'oxydant $Y_{O,\infty}$). Les paramètres d'état de la goutte d'aluminium sont imposés par la pression environnante, soit une température T_s fixée à 80% de la température d'ébullition de l'aluminium et une masse volumique correspondante ρ_l déterminées d'après des corrélations empiriques (Marion [1996]). En considération des hypothèses suggérées par la loi D^2 , le taux de régression d'une goutte d'aluminium en réaction dans l'air à pression atmosphérique est évalué à $371 \mu\text{m}^2/\text{ms}$. La valeur calculée est proche de l'intervalle de confiance des résultats expérimentaux en phase de combustion symétrique qui incluent notamment l'altération locale du débit d'aluminium gazeux par le lobe initialement formé en surface de la goutte. Il semble donc que l'effet de certains facteurs liés aux spécificités de la combustion de l'aluminium puisse être relativisé et que les fondements théoriques soient possiblement applicables en régime symétrique dans ces conditions.

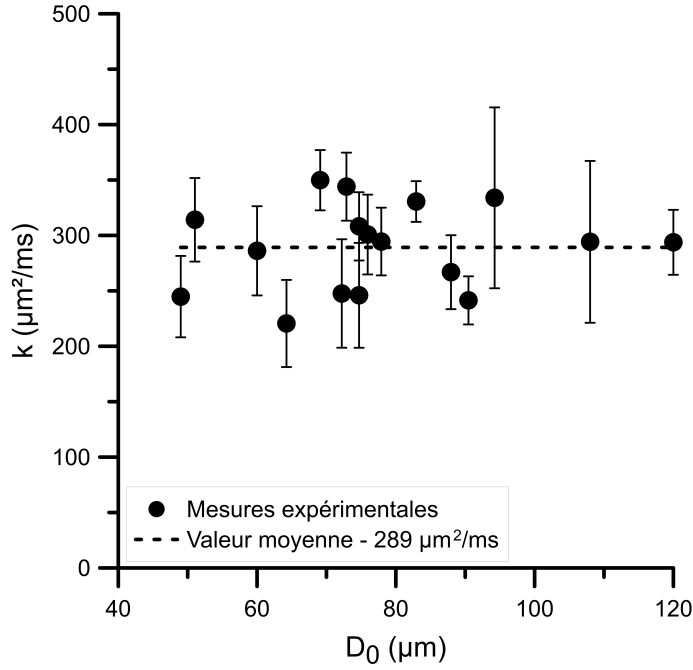


FIGURE 5.6 – Taux de régression des gouttes d'aluminium en réaction dans l'air à pression atmosphérique.

$$B_T = \frac{C_p(T_\infty - T_s) + (F/O)_{st} Y_{O,\infty} \Delta h_r}{\Delta h_v} \quad (5.4)$$

$$k = \frac{8\rho_g \alpha_g}{\rho_l} \ln(1 + B_T) \quad (5.5)$$

Enfin, le temps de combustion des gouttes dans l'air à pression atmosphérique a également été déterminé selon la méthodologie précédemment établie en se basant sur l'interprétation des signaux PM. La figure 5.7 rassemble les résultats obtenus et positionne les mesures effectuées par comparaison avec différents travaux répertoriés (Marion [1996], Dreizin [1996], Beckstead [2004]). Les tendances identifiées sont similaires et, de manière attendue, le temps de combustion croît non linéairement avec l'augmentation du diamètre initial des particules. Les valeurs expérimentales présentées sont en accord global mais il s'avère que la corrélation empirique formulée par BECKSTEAD (Eq. 3.22) surestime le temps de combustion des gouttes dans ces conditions (33% en moyenne comparativement aux résultats de cette étude). La figure 5.7 confronte par ailleurs les mesures réalisées sur le temps de combustion et la durée de réaction pour une goutte réagissant dans sa totalité selon le taux estimé expérimentalement en phase symétrique ($k = 289 \mu\text{m}^2/\text{ms} \pm 12\%$). Pour rappel, le temps de réaction t_c issu des signaux PM est une information globale qui intègre implicitement les effets liés à l'accumulation d'oxyde en surface de la goutte après la transition de régime (obstruction du débit d'aluminium gazeux sur une surface étendue, modification potentielle du processus d'extinction induisant éventuellement une combustion incomplète, etc.). De manière intéressante, la lecture de ces résultats montre de façon générale que les temps de combustion réels ne sont pas sensiblement différents des temps extrapolés d'après la valeur de k avec un écart relatif de 6% en moyenne. De plus, suivant l'exemple illustré par la figure 5.2, bien que le suivi du diamètre de la goutte après transition soit limité, les mesures relevées dans les

cas favorables suggèrent que la valeur du taux de régression en phase asymétrique reste incluse dans l'intervalle de confiance (Fig. 5.6). Dans ces circonstances, l'éventualité d'un résidu de combustion contenant des proportions élevées d'aluminium aurait entraîné une diminution notable, et non constatée, du temps de combustion t_c par rapport aux prédictions de la loi D^2 . A titre indicatif, si le temps de référence est fixé selon la loi D^2 pour $k = 289 \mu\text{m}^2/\text{ms}$, une réduction de t_c de 6% (soit la divergence moyenne constatée) représente une masse résiduelle d'aluminium de 1.5% de la masse initiale. Ainsi, les résultats ne semblent donc pas soutenir l'hypothèse d'après laquelle une quantité significative de métal reste imbrûlée. Néanmoins, aucune analyse concernant le résidu de combustion final issu de la réaction de l'aluminium dans l'air ne permet de valider cette conclusion.

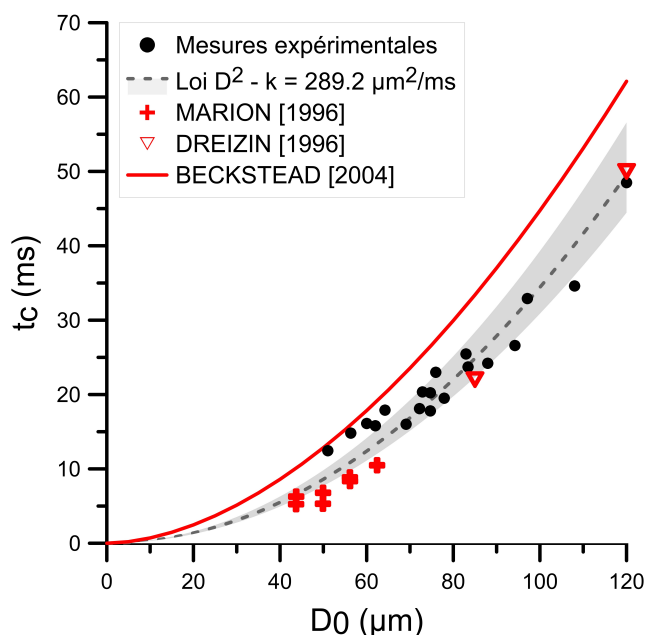


FIGURE 5.7 – Temps de combustion des gouttes d'aluminium en réaction dans l'air à pression atmosphérique.

D'un point de vue énergétique, certains paramètres de l'ensemble flamme/goutte peuvent être déterminés d'après le traitement d'image durant la phase symétrique, sommant notamment l'ensemble des valeurs des pixels appartenant à chaque zone correspondante. La figure 5.8 présente la répartition temporelle de la puissance radiative ainsi que l'évolution de l'émission surfacique de la flamme et de la goutte pour le cas précédemment décrit (Fig. 5.2). En moyenne, selon le spectre de réponse de la caméra, la flamme n'émet pas moins de 80% des émissions reçues et, de surcroît, cette balance énergétique est relativement stable durant l'ensemble de la période en régime symétrique (Fig. 5.8 (a)). Il est à noter que cette balance est principalement définie par la surface respective de chaque élément, l'émission surfacique de la goutte étant globalement plus élevée que celle de la flamme (Fig. 5.8 (b)). Sous l'hypothèse d'une émissivité constante, la stabilité de l'émission surfacique de la goutte renseigne vraisemblablement sur celle de sa température. La diminution constatée pour la flamme peut cependant suggérer une modification de la température sinon de la concentration ou de la taille des particules d'alumine dans la flamme.

La régression de la surface de la flamme et de la goutte étant connue (Fig. 5.2), l'évolution supposée du flux radiatif peut alors être estimée en phase symétrique à partir de ces informations. La tendance ainsi déterminée peut être comparée à celle résultante de l'intégration de l'intensité reçue par la caméra à chaque pas de temps (Fig. 5.9).

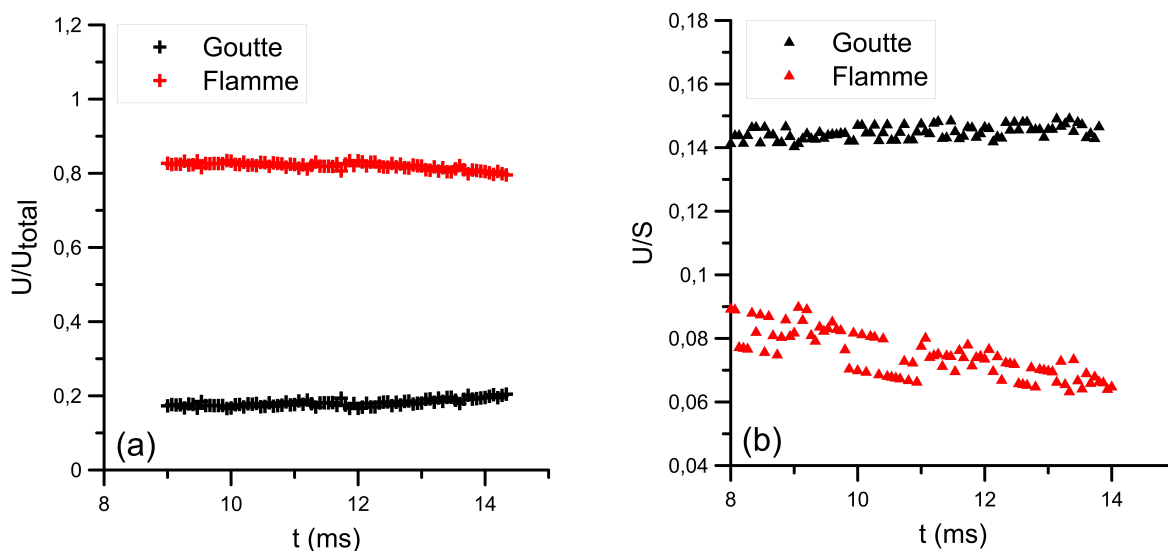


FIGURE 5.8 – Paramètres d’émission d’une goutte d’aluminium en réaction dans l’air à pression atmosphérique (Fig. 5.2 - $D_0 = 75 \mu\text{m}$). (a) Évolution de la contribution des émissions radiatives issues respectivement de la flamme et de la goutte - (b) Évolution de l’émission radiative de la flamme et de la goutte par unité de surface.

Cette comparaison montre une cohérence satisfaisante, validant l’approche développée pour prédire l’évolution du flux radiatif global. Cela motive également l’extrapolation des paramètres d’émission afin d’évaluer le potentiel radiatif dans le cas où le régime symétrique serait maintenu sur l’ensemble du processus de combustion avec un taux de régression constant, l’aire de la surface sous la courbe d’émission représentant l’énergie radiative libérée sur l’intervalle temporel considéré (Fig. 5.9). Le rapport des surfaces dans le cas illustré sur la figure 5.9 indique que l’énergie radiative globale augmente de 55% par rapport à un cas présentant une phénoménologie sans transition de régime. L’augmentation des émissions lumineuses constatée lors de la transition de phase suggère donc une modification notable de la balance énergétique par rapport aux prédictions attendues. La proportion d’énergie transmise par rayonnement étant visiblement accrue, principalement par l’intermédiaire des émissions issues du lobe en surface de la goutte, la chaleur dissipée suivant les modes de conduction et de convection est subséquemment réduite. D’un point de vue pratique, l’accroissement relatif de la part radiative peut alors être une information importante dans le cadre de la modélisation des transferts thermiques entre les gouttes en réaction et le bloc de propergol solide. En ce sens, la durée respective des phases de combustion et le taux de régression des gouttes sont des données substantielles pour définir le bilan énergétique de l’ensemble réactif au cours du processus de combustion.

5.2.2 Influence de la pression

La pression est un critère de premier ordre dans la caractérisation de l’environnement moteur. En effet, la pression de fonctionnement dans l’enceinte des systèmes propulsifs dépasse usuellement 50 bar et les particules d’aluminium réagissent donc dans des conditions particulières. Dans l’objectif de développer les connaissances et de constituer une base de données utile, l’analyse du processus de combustion de l’aluminium dans un milieu pressurisé est d’un intérêt essentiel. Dans une démarche similaire à celle présentée dans la sous-section précédente, l’influence de ce paramètre a donc été tout d’abord étudiée dans l’air, pour des valeurs comprises ici entre 1 et 31 bar. Par ailleurs, l’effet de

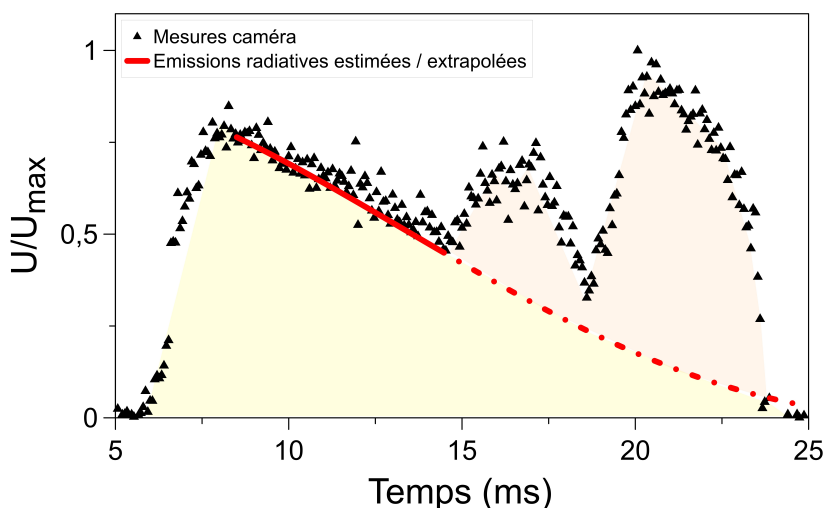


FIGURE 5.9 – Évolution normalisée de l'intensité lumineuse reçue par la caméra et du flux radiatif estimé selon les informations issues du traitement par imagerie pour une goutte en réaction dans l'air à pression atmosphérique (Fig. 5.2 - $D_0 = 75 \mu\text{m}$).

la pression dans des milieux contenant des espèces chimiques représentatives des MPS sera décrit ultérieurement.

Aspects phénoménologiques

Tout d'abord, afin de mettre concrètement en évidence l'effet de la pression sur le processus de réaction d'une goutte d'aluminium, la figure 5.10 expose des séquences de combustion obtenues par visualisation directe pour des particules réagissant dans l'air. Dans ce cas, l'exposition caméra diffère selon la gamme de pression considérée et l'intensité visuelle relevée ne peut donc être interprétée. En se référant aux observations réalisées dans l'air à pression atmosphérique, l'existence de différentes phases de combustion est également discernée pour l'ensemble des valeurs de pression étudiées. La transition depuis un régime symétrique vers un régime asymétrique est identifiée à la fois pour les basses et hautes pressions. Cependant, plusieurs processus sont observés lorsque la pression varie, pouvant être définis selon 3 phénoménologies caractéristiques. Sur la figure 5.10, chaque cas correspond à une couleur sur l'échelle de pression schématique et l'intensité des couleurs traduit leur probabilité d'occurrence.

Pour des pressions relativement basses (3 - 5 bar) le processus de combustion reste similaire au cas décrit à pression atmosphérique. Néanmoins, il semble que la taille du lobe initialement formé soit relativement plus importante que pour les cas observés à pression atmosphérique (Fig. 5.10 (a)).

Pour des pressions plus élevées (> 9 bar), d'autres aspects phénoménologiques sont remarqués (Fig. 5.10 (c)(d)). La flamme est chargée de particules d'alumine liquide dispersées tournoyant autour de la goutte en réaction et des éléments condensés semblent parfois impacter la surface de la particule d'aluminium, altérant la phase symétrique. Contrairement au cas à pression atmosphérique (Fig. 5.2), la lecture des séquences dynamiques ne permet pas ici d'identifier explicitement les phénomènes responsables de l'accumulation constatée d'oxyde en surface de la goutte. Bien que supposé, le développement soudain du lobe tel que visualisé à plus basse pression ne peut donc pas être avéré dans ces conditions. Un changement de régime de combustion est tout de même aussi initié à ces niveaux élevés de pression par le dépôt et/ou la production d'oxyde en surface de la goutte d'aluminium. La transition de régime observée coïncide

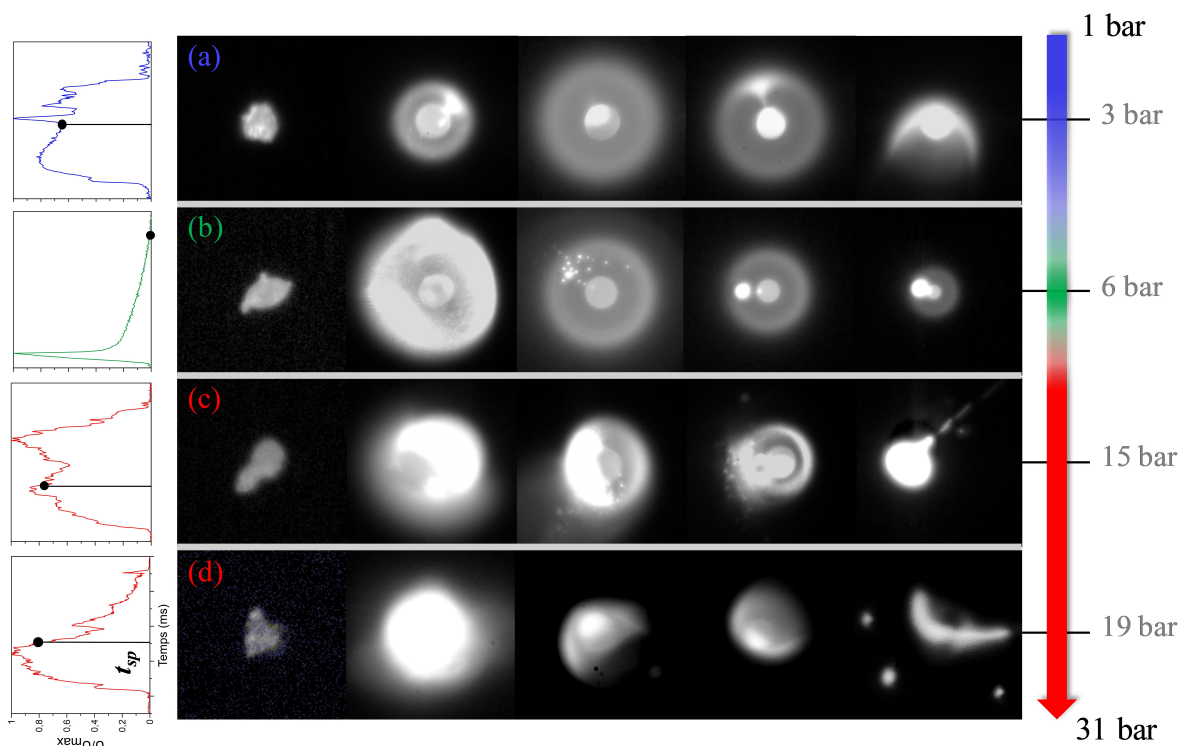


FIGURE 5.10 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium en réaction dans l'air à pression croissante et évolution de l'intensité caméra correspondante. (a) 3 bar $D_0 = 55 \mu\text{m}$ - (b) 6 bar $D_0 = 59 \mu\text{m}$ - (c) 15 bar $D_0 = 54 \mu\text{m}$ - (d) 19 bar $D_0 = 50 \mu\text{m}$.

ici avec une décroissance de l'intensité lumineuse mesurée qui s'explique visuellement par la réduction de la concentration en éléments condensés dans la flamme (Fig. 5.10). Au terme de la phase asymétrique la particule en réaction est finalement totalement recouverte par une couche d'oxyde, marquant la fin du processus de réaction suivant différents scénarios. En effet, soit la couche d'oxyde encapsule entièrement la goutte avec l'apparition de phénomènes éruptifs avec des fluctuations de volume apparentes (Fig. 5.10 (c)), soit la couche d'oxyde est immédiatement fragmentée (Fig. 5.10 (d)). Par ailleurs, ces observations sont similaires à celles rapportées par les travaux de Wainwright et al. [2019] sur la combustion de gouttes métalliques dans l'air qui mettent en évidence l'existence de mécanismes d'inclusion gazeuse et de micro-explosion résultant d'un processus de nucléation hétérogène.

Pour des pressions intermédiaires (5 - 9 bar), plusieurs phénoménologies ont pu être observées. Dans un premier cas, le processus de combustion correspond à celui présenté pour des pressions supérieures (Fig. 5.10 (c)(d)) et, comme illustré sur la figure 5.12, les empreintes lumineuses ont une dynamique similaire. Cependant, un processus différent a été identifié de manière récurrente, essentiellement à des pressions proches de 6 bar (Fig. 5.10 (b)). Dans ce cas, le diamètre de la goutte régresse significativement durant la phase symétrique et la durée de la phase asymétrique représente une période temporelle relativement courte. Le profil d'intensité mesuré par la caméra consiste alors uniquement en une décroissance progressive et quasi-totale des émissions radiatives, sans aucune perturbation majeure. Dans ces conditions, la formation d'un agrégat d'oxyde au sein de la zone de flamme est aussi fréquemment constatée (Fig. 5.10 (b)). Dans cette éventualité, l'agglomérat constitué suit le mouvement de l'ensemble flamme/particule et se développe progressivement. En fin de réaction, la transition de régime est initiée par l'émergence d'une couche d'alumine en surface de la goutte ou par l'interaction de cette dernière avec l'agglomérat d'oxyde formé dans la flamme. Statistiquement, il est à noter

que le processus décrit dans ce paragraphe n'a jamais été observé pour des particules d'un diamètre initial supérieur à 80 μm ni pour des pressions inférieures à 6 bar et supérieures à 9 bar sur l'ensemble des essais réalisés. Cette dynamique n'ayant jamais été observée dans les travaux documentés, des vérifications complémentaires ont été menées à ce sujet, suspectant qu'une exposition prolongée au laser CO_2 ou qu'une différence de potentiel marquée entre les électrodes du lévitateur pouvait être à l'origine de cette phénoménologie particulière. Finalement, aucune dépendance vis-à-vis des conditions expérimentales n'a pu être mise en évidence et les modalités d'occurrence de ce processus restent à déterminer.

Évolution des paramètres de combustion

La détermination de la durée relative des phases de combustion permet notamment de caractériser davantage l'influence de la pression sur la phénoménologie et la dynamique du processus de réaction de l'aluminium. Les résultats obtenus sont synthétisés sur la figure 5.11 - (a). Chaque point représente la valeur moyenne obtenue sur l'ensemble des diamètres de goutte initiaux recensés pour une pression donnée et les barres d'erreur renseignent sur l'écart type des mesures. De manière générale, il est ainsi montré que la dynamique de combustion évolue pour des pressions inférieures à 7 bar et qu'elle semble ensuite indépendante de la pression au-delà de ce seuil. Les plus fortes pressions ($P \geq 7$ bar) favoriseraient donc l'initiation de la transition de régime par rapport aux pressions inférieures et, par comparaison au cas de l'air à pression atmosphérique, la durée de la phase symétrique est réduite de 25% en moyenne. Pour la gamme de pression intermédiaire (6 - 9 bar), les résultats transposent également les observations précédemment décrites avec dans certains cas un maintien prolongé du régime symétrique sur plus de 90% de la durée de réaction.

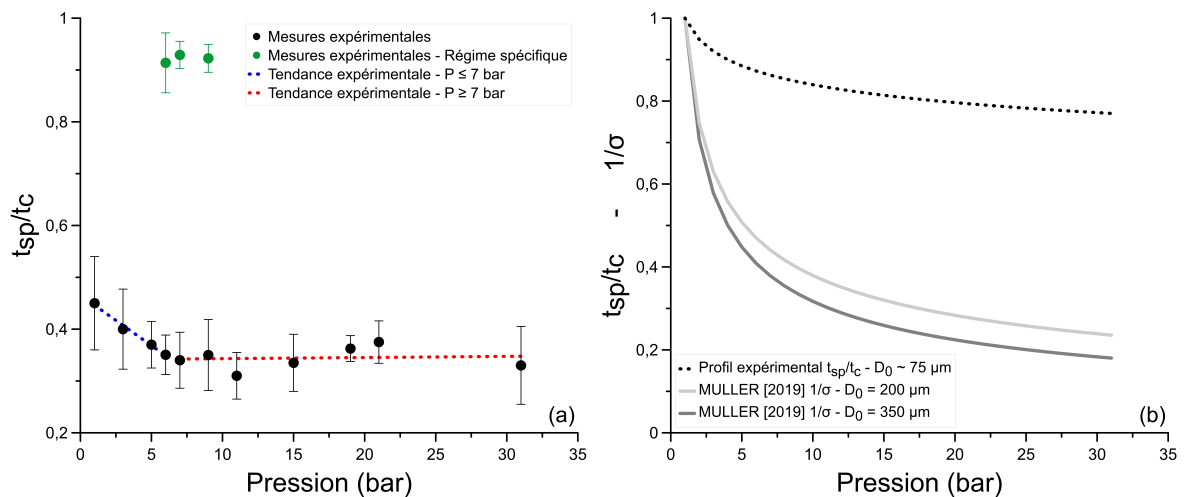


FIGURE 5.11 – Caractérisation de la dynamique de combustion. (a) Évolution de la durée relative de la phase de combustion symétrique en fonction de la pression - (b) Comparaison des profils normalisés de la durée relative du régime symétrique et de la quantité inverse de σ (Muller [2019]).

Ainsi, en considération des observations réalisées (Fig. 5.11), la modification du régime de combustion semble résulter, indépendamment de la pression, de l'accumulation de produits condensés en surface de la goutte. La formation de tels composés étant possiblement issue de réactions hétérogènes entre l'aluminium liquide et les espèces gazeuses oxygénées parvenant à diffuser vers la goutte, il pourrait donc être attendu que la durée relative de la phase symétrique puisse être inversement corrélée à la quantité

définissant le taux de production d'oxyde. En ce sens, un rapprochement peut être établi avec les résultats proposés par Muller [2019] et Zenin et al. [2000] sur l'évolution de la masse relative d'aluminium convertie en alumine durant le processus de combustion d'une goutte en fonction de la pression. En effet, nommé σ , ce paramètre rend compte de la dynamique de formation d' Al_2O_3 au sein de la goutte d'aluminium à partir de réactions hétérogènes de surface faisant ici uniquement intervenir des mécanismes Al-O. L'évolution normalisée de la quantité inverse de σ pour différents diamètres initiaux de goutte ($D_0 = 200 \mu\text{m}$ et $D_0 = 350 \mu\text{m}$) est présentée sur la figure 5.11 - (b) comparativement au profil expérimental normalisé de la durée relative de la phase symétrique pour un diamètre représentatif de l'ensemble des points expérimentaux ($D_0 = 75 \mu\text{m}$). Une apparente similitude peut alors être observée entre les tendances, à la fois en fonction de la pression mais également selon D_0 . L'évolution constatée sur la dynamique de combustion en fonction de la pression pourrait ainsi être liée à la cinétique des réactions de surface qui augmente à faible pression puis qui tend à se stabiliser pour des pressions plus élevées. Néanmoins, ce bilan reste appréciable au regard des conditions dans lesquelles il est établi et des données complémentaires sont ainsi nécessaires pour évaluer la pertinence de cette démarche comparative. Notamment, la complexité des phénomènes impliqués suppose à la fois des aspects surfaciques et volumiques, ce qui restreint la transposition des résultats de Muller [2019] pour des gouttes de taille plus réduite. De plus, les résultats extraits de la littérature sont établis pour des particules en réaction dans un mélange O_2/Ar avec 20% d'oxydant. Bien que les propriétés physiques du N_2 et de l'Ar soient similaires, différents schémas réactionnels peuvent être initiés, altérant possiblement la dynamique des réactions de surface et, par conséquent, le paramètre σ . Des données complémentaires sur la composition des résidus de combustion en ambiance azotée sont donc également requises. Au regard des hypothèses avancées, la dynamique observée pour des pressions intermédiaires avec une transition de régime tardive (Fig. 5.10 (b)) reste cependant inattendue, suggérant en l'état que la cinétique des réactions de surface soit restreinte ou inhibée pour la gamme de pression considérée. Cette intéressante singularité conforte alors la nécessité d'instruire des recherches complémentaires pour comprendre les mécanismes impliqués dans le processus d'accumulation d'oxydes en surface des gouttes qui initie la transition de régime de combustion.

La figure 5.12 présente l'empreinte lumineuse de gouttes en combustion dans l'air et les images correspondantes sélectionnées en début de réaction pour plusieurs pressions. Contrairement aux images précédemment présentées, il est à noter que l'ensemble des résultats comparés ici sont issus d'essais réalisés dans des conditions similaires (diamètre initial de goutte, sensibilité PM et temps d'exposition caméra équivalents), permettant d'isoler l'effet de la pression.

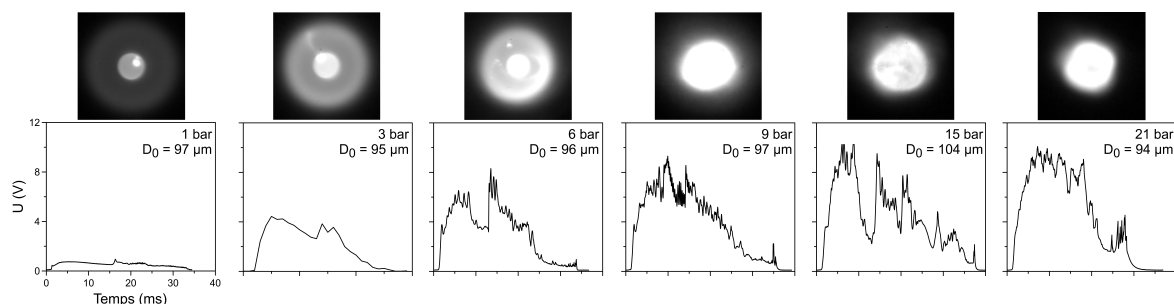


FIGURE 5.12 – Signaux PM caractéristiques et images de particules d'aluminium en réaction dans l'air pour différentes pressions.

Une croissance considérable de la valeur haute des signaux PM peut alors être

observée lorsque la pression augmente, néanmoins, cet effet semble être seuillé pour des pressions supérieures à 9 bar. Les images présentées révèlent que l'évolution globale de l'intensité lumineuse est inhérente à l'augmentation des émissions radiatives de la goutte et de la flamme. En effet, de manière qualitative, il peut être constaté que la contribution apparente de la goutte varie sensiblement entre 1 et 6 bar (Fig. 5.12). La contribution des particules submicroniques présentes dans la flamme est également considérablement accrue, se traduisant visuellement par l'opacification de l'ensemble de la zone de réaction. Ce phénomène constituera d'ailleurs une limite expérimentale pour la visualisation et la caractérisation respective de la flamme et de la goutte, empêchant un suivi temporel précis des différents paramètres géométriques. De plus, la sensibilité de la caméra est ici également restrictive. En effet, l'énergie radiative libérée par l'alumine présente dans la zone de réaction sature les pixels impactés du capteur dont la lecture n'est alors plus pertinente, même pour un temps d'exposition réduit (Fig. 5.12). Des solutions ont été expérimentées dans le but d'améliorer les conditions de visualisation à haute pression, basées notamment sur des méthodes de filtrage optique et d'ombroscopie. Néanmoins, les essais n'ont pas permis de proposer une alternative concluante. En considération de ces aspects limitants, les émissions respectives de la flamme et de la goutte ont alors été déterminées ici pour des pressions réduites (1 et 3 bar). La figure 5.13 expose l'évolution de l'émission radiative de la goutte et de la flamme par unité de surface, la valeur calculée pour la goutte à pression atmosphérique étant prise pour référence. Ces données permettent ainsi de quantifier et de discriminer l'augmentation des émissions visuellement observée sur les images à basse pression. Selon les résultats, l'intensité lumineuse émise par chaque élément croît avec la pression, cependant, la croissance de la densité de flux rayonné par la flamme est plus marquée que celle de la goutte avec une augmentation respective de 230% et 115%. De plus, les résultats obtenus pour une pression de 6 bar avec un temps d'exposition caméra diminué, et donc non comparables ici, montrent une inversion et la densité de flux rayonné par la flamme devient alors supérieure à celle de la goutte.

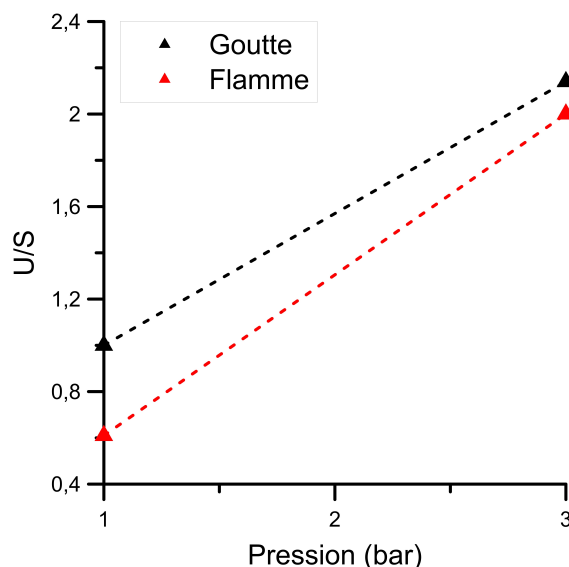


FIGURE 5.13 – Évolution de l'émission radiative de la flamme et de la goutte par unité de surface pour des particules en réaction dans l'air à pression variable.

De manière indicative, la température d'ébullition de la goutte et la température de flamme adiabatique ont été évaluées théoriquement en fonction de la pression (Fig. 5.14), respectivement selon la relation proposée par Marion [1996] et les résultats issus du code CEA. D'après ces estimations, la température de la goutte augmente davantage que

la température de flamme, notamment à basse pression. Au regard de l'évolution des valeurs présentées sur la figure 5.13, ces données supposent donc que la température n'est pas le seul paramètre impliqué dans l'accroissement des émissions radiatives. Plusieurs facteurs annexes peuvent effectivement intervenir, notamment la variation de l'émissivité de chaque élément avec la température. Dans le cas plus ciblé de la flamme, une modification de la taille ou de la concentration des produits condensés est également possible et cette hypothèse pourrait par ailleurs expliquer l'opacification constatée de la zone de réaction (Fig. 5.12). En ce sens, l'analyse des particules issues de la réaction de propergols contenant de l'aluminium pour des valeurs de pression variant entre 6 et 75 bar ne montre aucune modification notable de la taille des résidus associés à la condensation de l'alumine ($D < 2 \mu\text{m}$), mais relève un accroissement de leur fraction massique (Glotov and Zyryanov [1991], JL Eisel and Price [1975]). Ensuite, pour cette taille caractéristique, les travaux de Ranc-Darbord et al. [2018] sur les propriétés optiques des nuages de particules d'aluminium en réaction mettent en évidence que l'émissivité des produits d'alumine est indépendante de leur fraction volumique. Dans ces conditions, en accord avec les résultats de Lynch et al. [2010], l'émissivité spectrale des gouttelettes submicroniques ($D \leq 1 \mu\text{m}$) varie alors uniquement selon la température, suggérant une émissivité accrue à haute pression. Par conséquent, le constat réalisé sur l'évolution de la luminosité en fonction de la pression peut résulter de l'augmentation de la concentration en produits condensés combinée à l'augmentation de leur émissivité qui serait corrélée au changement de température. Suivant cette interprétation, l'existence observée d'un seuil d'émission est intéressante et peut renseigner quant à un possible plafonnement des paramètres considérés (température et/ou fraction massique). Aucune étude relatant l'effet de la pression sur la granulométrie des particules présentes dans la flamme d'une goutte isolée ne permet cependant de confirmer ces postulats.

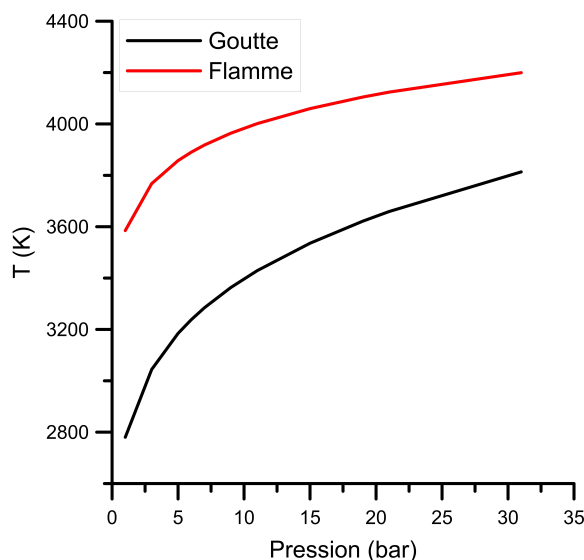


FIGURE 5.14 – Évolution théorique de la température de goutte (Marion [1996]) et de flamme (CEA) selon la pression ambiante.

D'autre part, d'après la figure 5.12, une réduction de la taille de la zone de réaction peut être supposée avec la pression. La taille relative de la flamme par rapport à celle de la goutte a donc été quantifiée selon la méthodologie décrite dans la partie 4.5. Pour les plus fortes pressions où la zone de flamme est complètement saturée après allumage, la taille de la zone de flamme est alors attribuée à la taille de la zone saturée. Les résultats exposés sur la figure 5.15 confirment la tendance visuellement observée et le rapport entre le rayon de flamme D_f et le rayon de goutte D_p diminue.

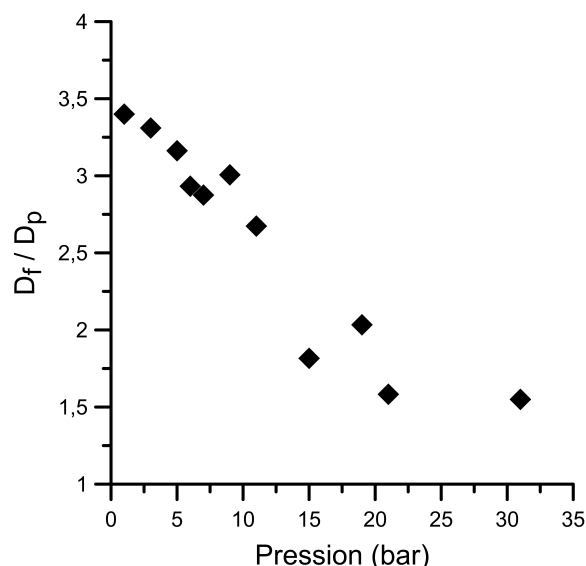


FIGURE 5.15 – Évolution du rapport entre le diamètre de flamme et le diamètre de goutte en fonction de la pression dans l'air.

Le taux de régression des gouttes k a été analysé en fonction de la pression sur les cas favorables aux mesures. Pour les plus fortes pressions, la méthodologie précédemment présentée n'a pu être appliquée dans son ensemble et certaines valeurs ont dû être estimées sur un nombre limité d'images sélectionnées. Les résultats obtenus sont présentés et comparés aux prédictions supposées par la loi D^2 sur la figure 5.16. Pour chaque pression, le taux de régression correspond à la valeur moyenne de l'ensemble des mesures dont les barres d'erreur illustrent l'écart type. Les valeurs ont été ici différenciées pour le cas particulier illustré sur la figure 5.10 - (b) à des pressions intermédiaires (6 - 9 bar). La courbe théorique a été estimée d'après les données issues du code CEA implémentées dans les équations 5.4 et 5.5. Cette démarche intègre de nouveau les fonctions approchées proposées par Marion [1996] pour définir l'évolution de la température de la goutte selon la pression considérée et celle de sa masse volumique ρ_l , la température de la goutte étant fixée à 80% de la valeur du point d'ébullition de l'aluminium dans les conditions définies. La loi D^2 prévoit donc une augmentation significative (37%) de k sur l'intervalle de pression étudié. Il a d'ailleurs été vérifié que cette augmentation du taux de régression théorique était expliquée par la forte diminution de la masse volumique de l'aluminium, k étant effectivement peu sensible à la pression pour un combustible liquide incompressible. Ensuite, une réduction du taux de régression semble être expérimentalement observée entre 1 et 15 bar avec 22% d'écart calculé. Ce constat reste soumis aux incertitudes de mesures qui sont notamment plus élevées à haute pression (nombre de point de mesure limité, durée de phase symétrique réduite, visibilité restreinte de la goutte, etc.) et estimées en moyenne à 20%. Ainsi, en considération de l'intervalle de précision et de la dispersion visible des résultats, la détermination précise d'une tendance expérimentale semble devoir être relativisée. Néanmoins, les résultats suggèrent en finalité des taux de régression considérablement inférieurs aux prédictions de la loi D^2 pour des pressions supérieures à 3 bar. Ce constat est aussi valable pour les mesures de k à pression intermédiaire pour un régime de combustion spécifique, les valeurs déterminées étant a priori faiblement plus élevées que la tendance expérimentale.

La diminution combinée du taux de régression et de la masse volumique de l'aluminium liquide suscite donc une réduction de la puissance globale alors que les observations précédentes démontrent une augmentation de flux énergétique rayonné. Il semble

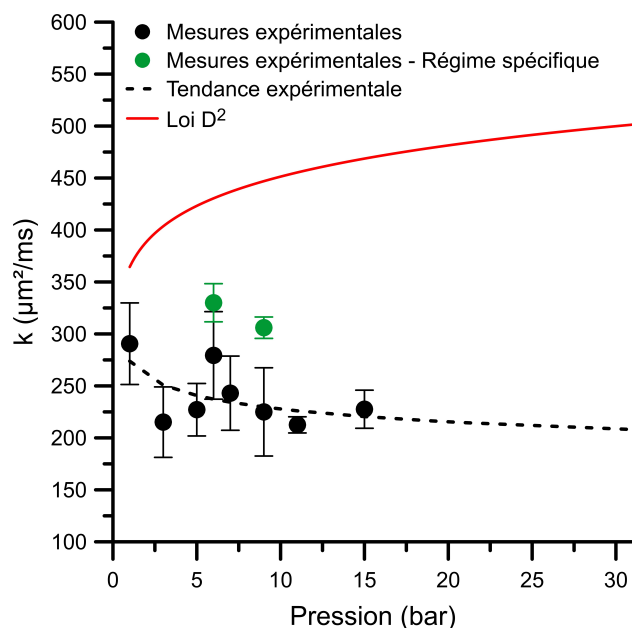


FIGURE 5.16 – Évolution du taux de régression des gouttes d'aluminium en réaction dans l'air en fonction de la pression ambiante.

ainsi que la pression modifie la balance énergétique du processus de combustion au détriment des transferts par convection et conduction. De plus, les valeurs de k présumées réduites par rapport aux attentes théoriques pour des pressions relativement élevées (Fig. 5.11) peuvent hypothétiquement résulter d'effets relatifs aux réactions hétérogènes dont la cinétique modulerait le taux de régression des gouttes. Ainsi, différents vecteurs sont potentiellement envisageables quant à la réduction de k due à l'initiation et à l'entretien de ce type de réaction, notamment une modification défavorable de la balance énergétique et/ou la production d'oxydes en surface de la goutte. Ce postulat serait compatible avec les précédentes suppositions faites quant à l'influence de la cinétique de surface sur la dynamique de combustion. À ce titre, les séquences observées en régime spécifique à pression intermédiaire (Fig. 5.10 (b)) sont également intéressantes. La surface de la goutte semble effectivement être homogène durant la majorité du processus réactionnel, suggérant que les effets liés à la présence du lobe ou aux réactions hétérogènes soient négligeables dans ce cas. Pour autant, même dans ces conditions, l'écart entre les valeurs de k mesurées et les prédictions supposées de la loi D^2 reste significatif. Il semblerait donc que d'autres aspects éloignent le cas de la combustion de l'aluminium des fondements théoriques. Cependant, cette approche comparative par rapport à la loi D^2 peut être discutable, étant soumise aux incertitudes liées aux données utilisées pour établir les calculs théoriques. En particulier, les données disponibles sur la masse volumique de l'aluminium dans ces conditions de pression et de température sont limitées. Des validations annexes sont alors nécessaires pour soutenir les hypothèses introduites.

Enfin, la figure 5.17 présente l'évolution du temps de réaction t_c des particules d'aluminium dans l'air en fonction de leur diamètre initial D_0 et de la pression ambiante imposée.

Les résultats obtenus ont permis de déterminer une loi d'évolution entre t_c et D_0 pour chaque pression. Basée sur ces corrélations, la figure 5.18 montre l'évolution de t_c pour une particule de diamètre initial D_0 défini et représentatif tel que $D_0 = 80 \mu\text{m}$, proposant une lecture différente de l'influence de la pression sur le temps de réaction. La démarche initiée à pression atmosphérique est reproduite ici et les temps mesurés par PM sont alors

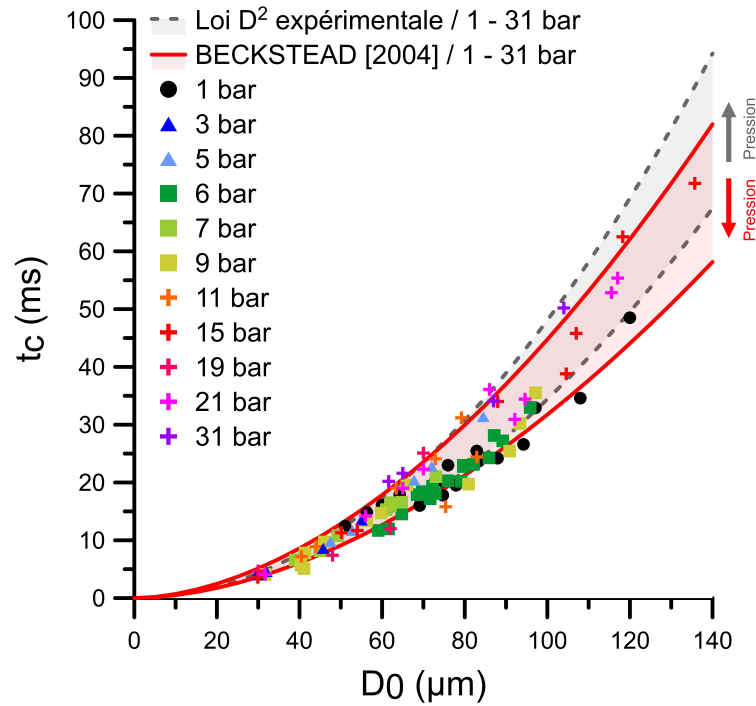


FIGURE 5.17 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en réaction dans l'air en fonction du diamètre initial D_0 et de la pression ambiante.

comparés aux temps de réaction supposés dans le cas d'une consommation totale de la goutte suivant le taux de régression déterminé expérimentalement par imagerie pour une loi de type D^2 . De nouveau, les temps de réaction calculés selon la loi empirique de BECKSTEAD (Eq. 3.22) sont également exposés à titre de référence. Pour rappel, la loi de BECKSTEAD prévoit notamment que le temps de réaction dépend du diamètre initial de la goutte et de la pression ambiante tel que $t_c \propto D_0^n / P^\alpha$ avec $n = 1.8$ et $\alpha = 0.1$.

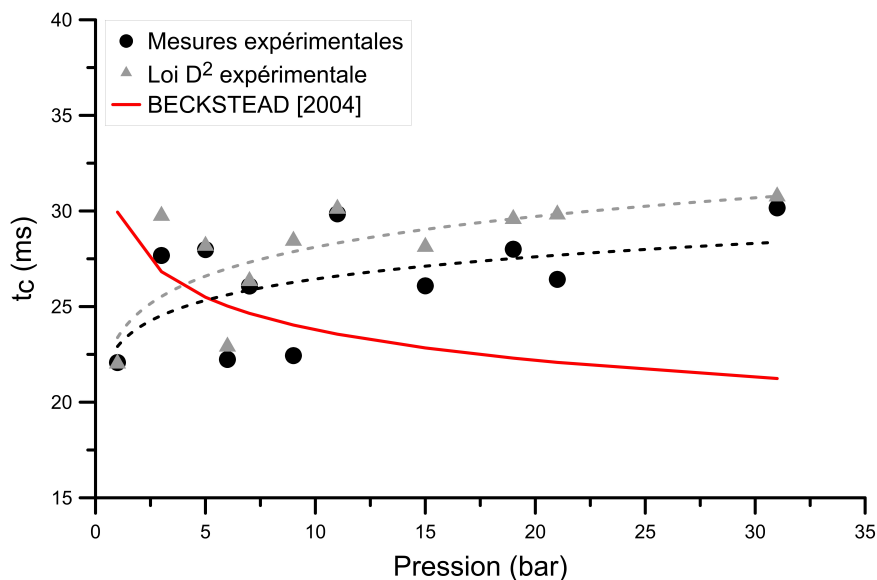


FIGURE 5.18 – Évolution du temps de combustion d'une goutte d'aluminium de diamètre initial $D_0 = 80 \mu\text{m}$ en réaction dans l'air en fonction de la pression ambiante.

Ainsi, il est intéressant de constater que les temps de réaction mesurés sont globalement semblables et qu'aucune influence majeure de la pression sur ce paramètre n'est constatée malgré une modification de la dynamique de combustion. Une augmentation

contenue de t_c est tout de même observée entre 1 et 31 bar, évaluée à moins de 30% pour $D_0 = 80 \mu\text{m}$. Les figures 5.17 et 5.18 démontrent également que les extrapolations faites depuis les valeurs expérimentales de k déterminées par traitement d'images semblent satisfaisantes et représentatives des temps de réaction mesurés par PM avec un écart relatif moyen proche de 7%. Comme avancé à pression atmosphérique, cela suppose que la quantité d'aluminium imbrûlée est faible ou inexistante et que le taux de régression estimé en phase symétrique est potentiellement préservé après la transition de régime malgré une altération notable de la phénoménologie. Dans leur ensemble, les valeurs attendues d'après la corrélation de BECKSTEAD sont similaires, néanmoins, la loi empirique prévoit à l'inverse une réduction du temps de réaction avec la pression. Plus précisément, l'optimisation d'une loi de même type sur l'ensemble des points de mesure (110 points) permet d'évaluer expérimentalement une relation entre t_c et les paramètres D_0 et P tels que $n = 1.87$ et $\alpha = -0.1$. Cette différence peut être attribuée à la dispersion des mesures sur lesquelles la corrélation empirique de BECKSTEAD est établie. Les données intégrées sont effectivement issues de configurations expérimentales multiples pour des tailles de particule significativement différentes et des espèces gazeuses variables. Dans ces conditions, l'établissement d'une loi expérimentale généralisée doit alors être reconsidéré.

5.2.3 Bilan

L'étude préalable de la réaction de l'aluminium dans l'air a donc permis d'éprouver les capacités d'analyse globales du dispositif élaboré qui propose des résultats inédits dans cette thématique de recherche. Les diagnostics et les méthodes de post-traitement mis en place permettent d'observer finement la phénoménologie de combustion de particules microniques et de quantifier les paramètres d'intérêt qui caractérisent le phénomène. Au regard des spécificités apparentes du processus de réaction, certaines limites ont également été mises en évidence quant aux moyens expérimentaux utilisés.

Ainsi, une description qualitative détaillée de la phénoménologie de réaction dans l'air a été proposée, mettant en évidence l'existence de plusieurs phases de combustion distinctes et une influence marquée de la pression. L'ensemble des observations confirment le rôle prépondérant du processus d'accumulation d'oxyde en surface de la goutte, ce dernier étant notamment impliqué dans la modification du régime de combustion (symétrique/asymétrique). De manière complémentaire, l'analyse des différents paramètres mesurables montre que la balance énergétique et la dynamique de combustion semblent être modulées par la pression. En effet, avec la pression, la part d'énergie rayonnée s'avère être plus conséquente et la contribution des modes de transfert par convection et/ou conduction est alors probablement réduite. La transition de régime symétrique/asymétrique est également déclenchée prématurément lorsque la pression augmente, laissant supposer que le développement du lobe est possiblement dépendant du facteur de pression. Dans ces conditions, il apparaît que la régression de la goutte ne peut pas être convenablement décrite par la loi D^2 théorique, en particulier pour des pressions supérieures à la pression atmosphérique. Confortée par les observations et les résultats de la littérature, l'interprétation des images et des données rassemblées suggère que la cinétique des réactions hétérogènes pilote en partie le processus de production d'oxyde en surface de la goutte et, par conséquent, la dynamique de combustion. Malgré les phénomènes observés, les résultats présentés sur le taux de régression en régime symétrique k (mesuré par imagerie) et le temps de réaction global t_c (mesuré par PM) montrent que le processus de vaporisation des gouttes n'est pas sensiblement altéré en phase asymétrique après la transition de régime. De plus, il est aussi finalement

intéressant de constater que t_c , qui est une résultante a priori définie par l'ensemble des mécanismes et des paramètres intervenant, est faiblement dépendant de la pression tel que $t_c \propto D_0^{1.87}/P^{-0.1}$.

Cette phase préliminaire avance donc des hypothèses fortes, principalement quant au mode de développement du lobe durant le processus réactionnel qui est attribué en partie à la production d'oxydes inhérente de réactions de surface entre l'aluminium liquide et des éléments gazeux. Observée à pression intermédiaire, l'existence d'une phénoménologie avec régression totale de la goutte suscite néanmoins des interrogations majeures quant aux mécanismes impliqués dans ce phénomène. Comme évoqué précédemment, la comparaison avec la théorie du D^2 est discutable et les suggestions faites à cet égard nécessitent d'être approfondies. De plus, des données et des informations supplémentaires sont nécessaires pour compléter et élargir les éléments de réflexion apportés. Sur la base des travaux de Dreizin [1999b] et de Bucher et al. [2000], une analyse paramétrique des produits de combustion résiduels en fonction de la pression serait notamment pertinente tout comme la caractérisation directe des espèces chimiques présentes dans la flamme. Dans la limite des capacités actuelles du dispositif, il est proposé de poursuivre différentes études dans l'objectif de caractériser la sensibilité du processus d'accumulation d'oxyde selon la composition chimique de l'environnement et d'identifier également si les effets constatés de la pression sont similaires en la présence d'oxydants différents. La constitution d'une base de données substantielle reste également une perspective parallèle et indispensable à la compréhension de la phénoménologie.

5.3 Étude comparative de la contribution du diazote N_2

L'environnement réactif des particules d'aluminium au sein des MPS a une composition spécifique qui intègre différents oxydants mais également une quantité non négligeable de N_2 (Tab. 2.3). D'après des études documentées, le diazote contribue possiblement à la transition de régime pendant le processus de combustion des gouttes. Différentes hypothèses présentées en partie 3.2.3 ont d'ailleurs été avancées sur cet aspect (Prentice and Nelson [1967], Dreizin [1996], Dreizin [1999b]) et les constatations faites précédemment confortent ces suppositions. Ainsi, afin de compléter les données existantes et d'approfondir les connaissances établies sur le développement observé du lobe d'oxyde, une analyse comparative de la combustion de l'aluminium dans des mélanges oxydants N_2/O_2 , Ar/O_2 et He/O_2 est présentée. Cette démarche permet alors d'étendre les travaux de Dreizin [1999b] en proposant des résultats nouveaux dans des conditions expérimentales fondamentales pour une gamme élargie de taille initiale de particule.

La figure 5.19 donne un aperçu des propriétés de l'environnement gazeux en proche surface de la goutte selon la composition du mélange oxydant. D'après ces données extraites du code CEA, les propriétés du mélange pour les cas N_2/O_2 et Ar/O_2 sont relativement équivalentes alors que celles du milieu He/O_2 diffèrent. De plus, dans l'hypothèse d'un nombre de Lewis Le unitaire, il est à noter que la diffusivité thermique est égale à la diffusivité massique. La comparaison entre les cas N_2/O_2 et Ar/O_2 est ainsi la plus intéressante pour analyser les effets qui seraient principalement dus au schéma réactionnel de la combustion. En effet, en tant que gaz noble, l'argon n'est effectivement pas impliqué dans les réactions chimiques et seuls les mécanismes Al-O sont considérés. À l'inverse, le N_2 intervient potentiellement dans des mécanismes surfaciques Al-O-N et la formation de NO thermique gazeux est également possible. Au même titre que l'argon,

l'hélium ne réagit pas avec les espèces en présence. L'influence des propriétés du milieu sera donc davantage mise en évidence par la comparaison entre les cas He/O₂ et Ar/O₂ où les schémas réactionnels sont supposés identiques.

Une étude paramétrique sur l'influence du taux de dilution sera alors détaillée et les résultats obtenus en faisant varier le gaz diluant seront présentés pour évaluer les modifications suscitées par ce paramètre.

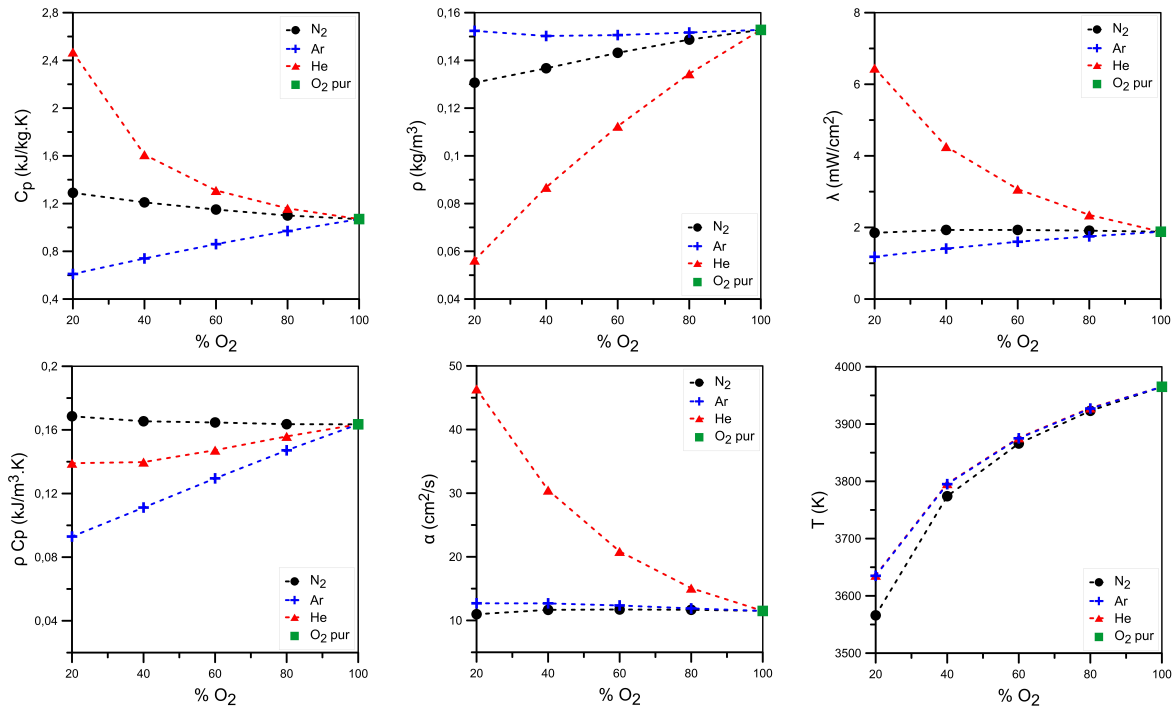


FIGURE 5.19 – Évolution des propriétés physiques de l'environnement proche goutte en fonction du mélange oxydant (calculs thermochimiques CEA).

5.3.1 Influence sur la dynamique de combustion

Les processus de combustion de gouttes d'aluminium dans différentes atmosphères oxydantes sont illustrés sur les figures 5.20, 5.21 et 5.22. Pour chaque cas, des images brutes et des images traitées avec un filtre Laplacien sont proposées pour mettre en évidence le lobe d'oxyde (rouge) et les particules submicroniques de la flamme (orange).

Tout d'abord, indépendamment de la composition du mélange et de son taux de dilution, la formation du lobe initial peut être observée et, qualitativement, sa taille relative reste visiblement équivalente pour les cas présentés. De plus, le processus de combustion est invariablement constitué d'une phase symétrique suivie d'une phase asymétrique avec une transition de régime provoquée par la présence d'oxyde en surface de la goutte. Cependant, la dynamique du processus et les paramètres de transition semblent être modulés selon la nature et les proportions du gaz diluant. L'évolution relative de t_{sp} et de D_{sp} est exposée sur la figure 5.23 pour l'ensemble des conditions ambiantes étudiées, incluant également des mélanges N₂/Ar/O₂. Chaque point correspond alors à la moyenne des valeurs mesurées.

Pour de forts taux de dilution (%O₂ ≤ 40%), où l'effet des gaz diluants est donc le plus notable, l'expansion soudaine de l'îlot d'oxyde survient de manière prématurée en atmosphère N₂/O₂ alors que la durée de la phase symétrique en atmosphères Ar/O₂ et He/O₂ est significative, représentant en moyenne 90% du temps de réaction des gouttes

(Fig. 5.23). Les observations laissent par ailleurs suggérer que le mode de développement du lobe en milieux Ar/O_2 et He/O_2 est similaire à celui identifié en N_2/O_2 mais initié de manière plus tardive. En conséquence, il apparaît que la réduction relative du diamètre de la goutte avant transition est plus faible dans un milieu N_2/O_2 (Fig. 5.20 (a)(b)(c) 4). A titre d'exemple, pour un taux de O_2 fixé à 20%, la régression de la goutte est effectivement plus marquée lorsque l'argon ou l'hélium sont utilisés comme diluant, le diamètre de la goutte diminuant en moyenne de 63% avec de l'argon ou de l'hélium et de 26% avec du diazote (Fig. 5.23).

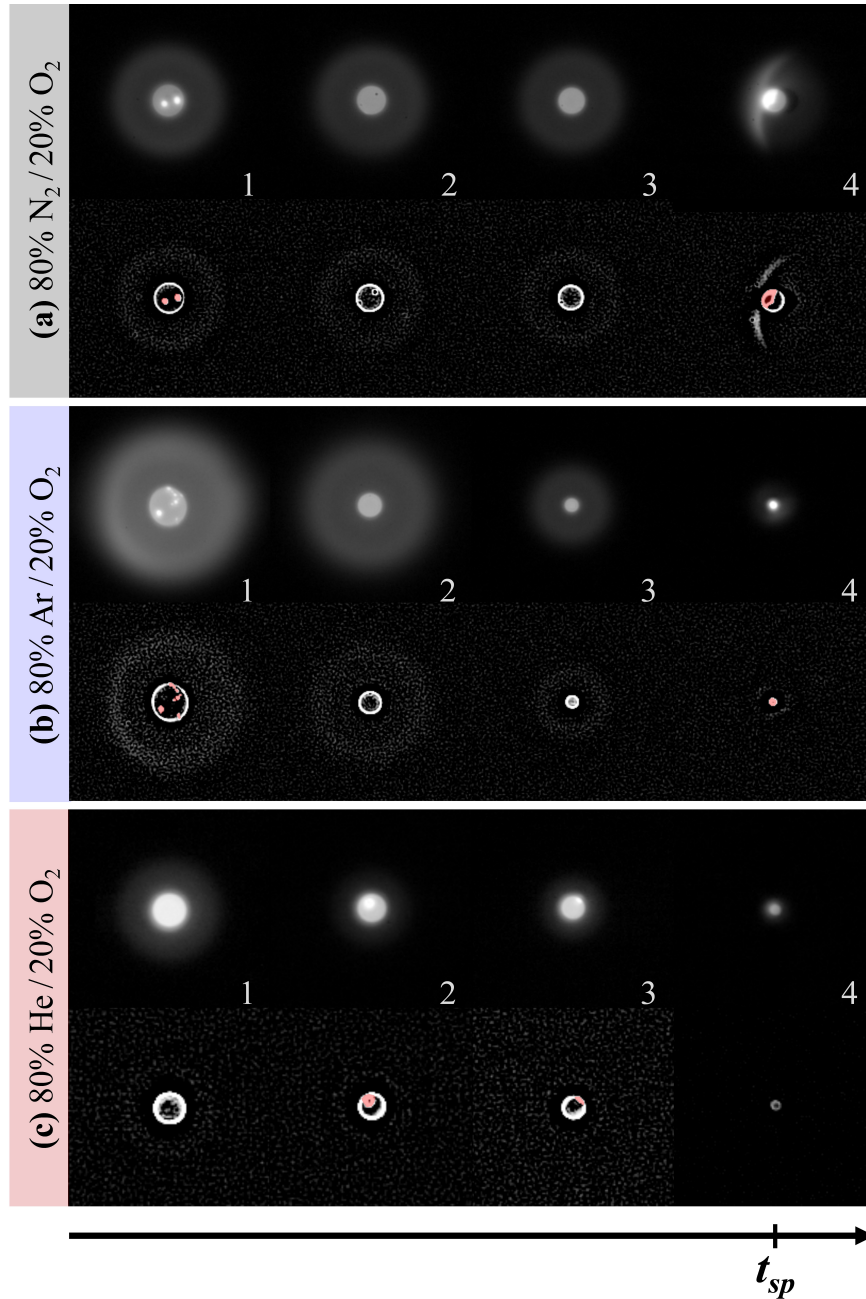


FIGURE 5.20 – Séquences d'images de la combustion de gouttes d'aluminium dans différents mélanges oxydants avec $\% \text{O}_2 = 20\%$. (a) N_2/O_2 / $D_0 = 75 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = $10 \mu\text{s}$ - (b) Ar/O_2 / $D_0 = 90 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = $8 \mu\text{s}$ - (c) He/O_2 / $D_0 = 55 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = $20 \mu\text{s}$.

Pour des taux de dilution plus faibles ($\% \text{O}_2 \geq 60\%$), les effets des gaz diluants sont supposés restreints et, comparativement à des taux de dilution plus élevés, la durée relative de la phase symétrique ainsi que la réduction de la taille de goutte avant

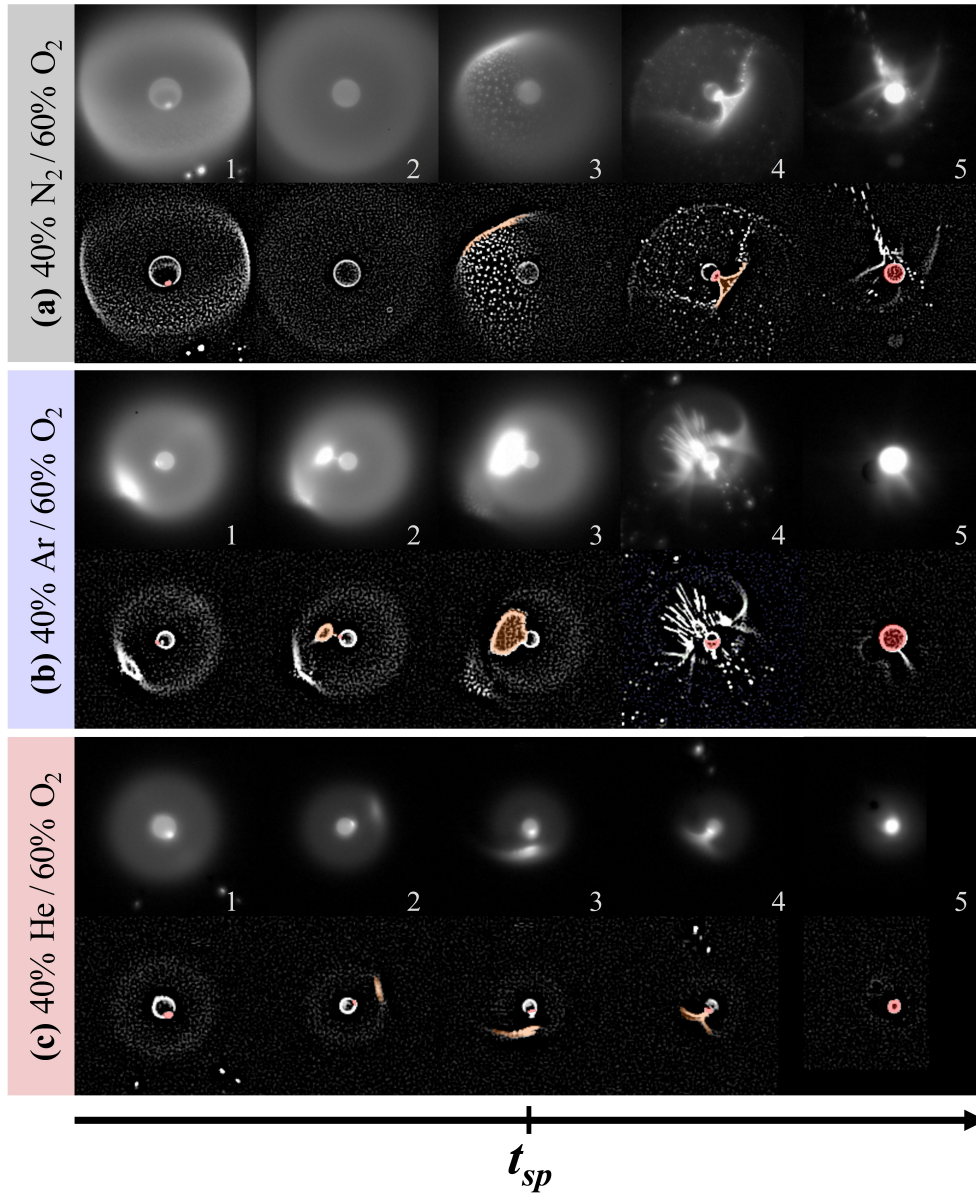


FIGURE 5.21 – Séquences d’images de la combustion de gouttes d’aluminium dans différents mélanges oxydants avec $\%O_2 = 60\%$. (a) N_2/O_2 / $D_0 = 93 \mu m$ / Temps d’exposition caméra = $3 \mu s$ - (b) Ar/O_2 / $D_0 = 50 \mu m$ / Temps d’exposition caméra = $6 \mu s$ - (c) He/O_2 / $D_0 = 52 \mu m$ / Temps d’exposition caméra = $6 \mu s$.

transition sont inférieures, notamment pour les atmosphères Ar/O_2 et He/O_2 . Dans ces conditions, les ratios t_{sp}/t_c et D_{sp}/D_0 ont respectivement une valeur maximale de 50% et une valeur minimale de 76% (Fig. 5.23). Bien que nuancée par la dispersion des données, une tendance spécifique semble néanmoins être remarquée pour les cas en atmosphère N_2/O_2 où les paramètres de transition s’avèrent relativement constants, quelles que soient les proportions de O_2 (Fig. 5.23). Finalement, la dynamique de combustion pour des proportions élevées de dioxygène est similaire pour l’ensemble des mélanges étudiés. Parallèlement, la phénoménologie visualisée est différente de celle observée précédemment pour des teneurs en oxydant plus faibles. Comme illustré sur la figure 5.21, l’accumulation d’oxyde sur la goutte semble directement résulter du transport d’éléments condensés submicroniques depuis la flamme jusqu’à la surface de la particule en réaction. En effet, en fin de phase symétrique, une zone de forte émission s’établit dans la flamme à l’aplomb du lobe d’oxyde (Fig. 5.21 (a) 3 / (b)(c) 2-3). L’émission

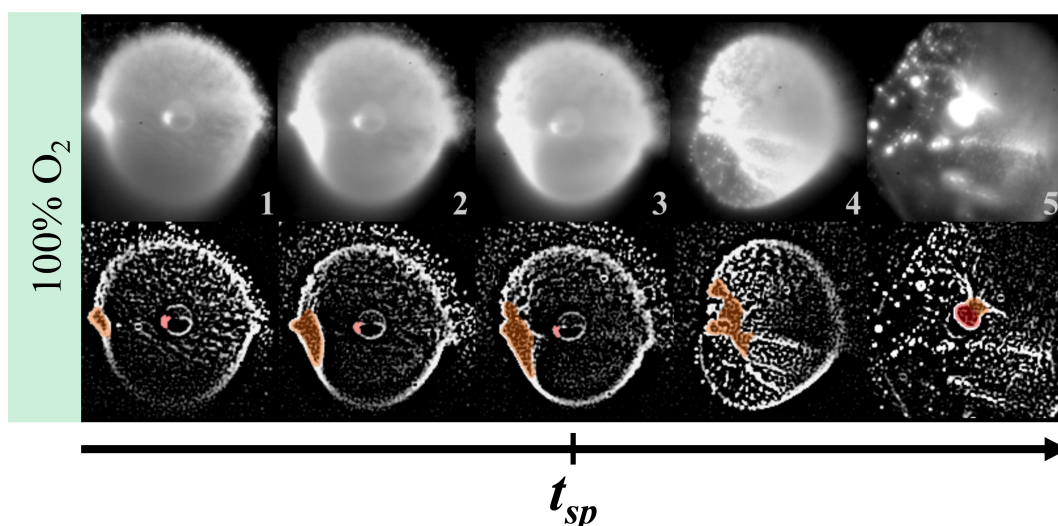


FIGURE 5.22 – Séquence d’images de la combustion de gouttes d’aluminium en ambiance purement oxydante avec $\%O_2 = 100\%$ / $D_0 = 64 \mu m$ / Temps d’exposition caméra = $3 \mu s$.

localisée dans cette zone peut être attribuée à une évolution marquée des paramètres liés à la phase condensée dans la flamme (température, concentration et taille des produits condensés). Cette zone se développe et atteint ensuite le lobe initial dont la taille évolue alors considérablement, initiant le régime asymétrique. En phase asymétrique, la goutte est rapidement recouverte dans sa totalité par des éléments condensés (Fig. 5.21 (a)(b)(c) 5) et la fin du processus de combustion est marquée par des phénomènes de micro-explosion éjectant la couche d’oxyde. Il est à noter que la goutte et sa flamme sont parfois discernées après l’évacuation brutale de la couche d’oxyde. Par ailleurs, la figure 5.22 présente le processus de combustion d’une particule d’aluminium brûlant dans un environnement contenant uniquement de l’ O_2 . Comme observé précédemment dans des conditions faiblement diluées, les particules submicroniques d’oxyde liquide contenues peuvent être transportées vers la goutte en réaction (Fig. 5.22 1-3) et être adsorbées en surface (Fig. 5.22 4). La taille du lobe d’oxyde croît de manière significative (Fig. 5.22 5), changeant brusquement le régime de combustion. La dynamique du processus est alors proche de celle évaluée pour un taux d’oxygène de 60% et 80% (Fig. 5.23).

Ainsi, d’après les images observées et les résultats obtenus, la dynamique de réaction reste étroitement associée à celle du processus d’accumulation d’oxyde en surface de la goutte. Visuellement, le mode de développement du lobe semble être modifié selon les proportions d’oxydant dans le mélange réactif. Pour de faibles concentrations en O_2 , l’expansion du lobe résulte a priori d’un processus localisé en surface de la goutte sans aucune interaction manifeste ou visible avec la flamme. L’hypothèse consiste dans ce cas en la diffusion d’intermédiaires oxygénés gazeux jusqu’à la surface de la goutte, produisant des oxydes par réaction avec l’aluminium liquide. Pour des proportions élevées de dioxygène, les éléments condensés formés dans la zone de réaction sont transportés depuis la flamme vers la goutte, s’accumulant ainsi en surface. Néanmoins, cette différence constatée n’exclut pas la possibilité que les mécanismes impliqués dans ce processus puissent être identiques pour tous les cas étudiés, se manifestant simplement de manière plus prononcée lorsque le taux d’oxygène est élevé. De surcroît, les images présentées ne montrent aucun indicateur visible sur l’existence de réactions en surface de la goutte. Le transport de particules submicroniques depuis la flamme jusqu’à la surface de la goutte doit donc être aussi considéré pour de fortes proportions de gaz diluants.

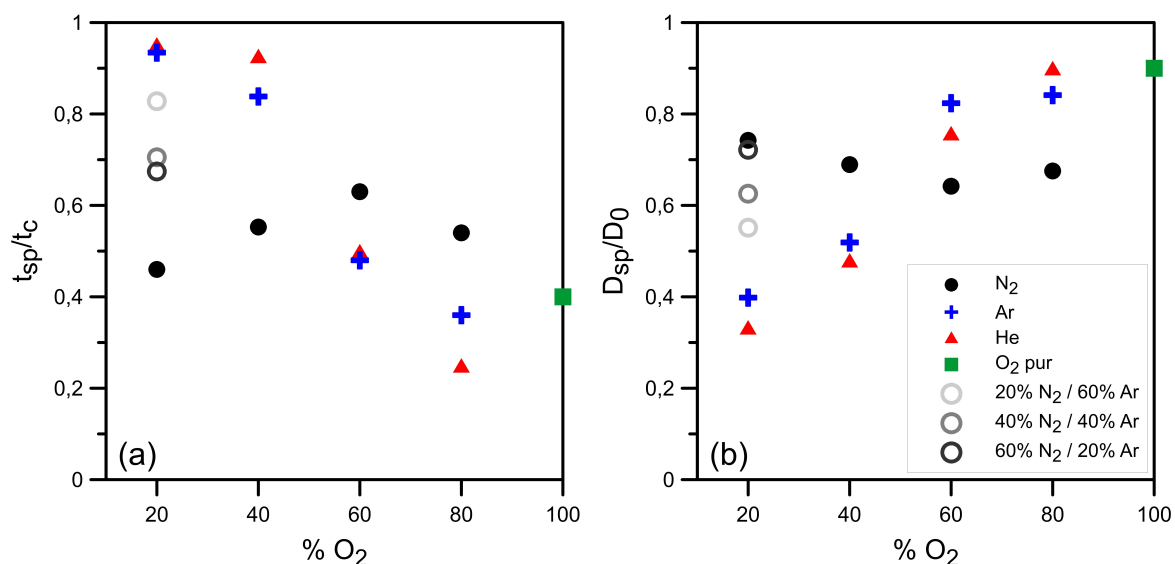


FIGURE 5.23 – Paramètres de transition du processus de combustion en mélanges N₂/O₂, Ar/O₂, He/O₂ et N₂/Ar/O₂. (a) Durée relative de la phase symétrique - (b) Taille relative du diamètre de goutte avant transition.

Sous l'effet de gradients d'espèces et/ou de gradients thermiques, divers mécanismes peuvent être impliqués dans le transport d'éléments gazeux ou condensés, entraînant en l'occurrence une expansion soudaine du lobe d'oxyde. Les phénomènes de diffusion massique et thermique des gaz sont inéluctables et assurent typiquement l'apport d'oxydant nécessaire à la réaction du combustible vaporisé dans l'environnement proche goutte. A ce titre, la comparaison des processus de combustion en Ar/O₂ et en He/O₂ est intéressante. Dans ces conditions, les schémas réactionnels sont identiques mais la présence d'hélium augmente considérablement le coefficient de diffusion du milieu et favorise de ce fait le transport des espèces gazeuses vers la goutte. Les résultats sur les paramètres de transition concernant les mélanges Ar/O₂ et He/O₂ n'indiquent alors aucune disparité significative, y compris pour des taux de dilution élevés. Par conséquent, le rôle de la diffusion des espèces gazeuses dans le développement du lobe d'oxyde semble être limité. Par ailleurs, la présence de N₂ contribue vraisemblablement à diminuer la durée relative de la phase en régime symétrique par rapport à l'argon ou à l'hélium. Les résultats obtenus pour des mélanges N₂/Ar/O₂ avec une concentration de dioxygène fixe corroborent davantage ce postulat, la durée relative de la phase symétrique et la réduction de la goutte avant transition diminuant lorsque les proportions de N₂ augmentent (Fig. 5.23). Le diazote et l'argon ayant des propriétés de transport similaires, ces résultats suggèrent donc notamment que le schéma réactionnel est différent pour la combustion des gouttes d'aluminium en milieu N₂/O₂. Ce constat est alors compatible avec l'hypothèse de la formation d'intermédiaires NO gazeux faiblement réactifs dans la flamme qui pourraient contribuer au transport d'oxygène vers la goutte (Dreizin [1999b]). Ainsi, ce vecteur augmenterait l'apport en oxygène disponible pour l'entretien de la cinétique hétérogène qui est potentiellement à l'origine de la production d'oxyde condensé à la surface des gouttes. De plus, l'azote peut également être impliqué dans la formation de composés aluminisés AlN en surface. Comme suggéré par les données présentées (Fig. 5.23), ce phénomène serait principalement identifiable pour des proportions importantes de N₂ où la formation de NO pourrait être favorisée, initiant prématurément la transition de régime en comparaison des mélanges Ar/O₂ et He/O₂ dilués avec des gaz inertes. Cette éventualité laisserait aussi supposer qu'en raison de leur forte réactivité les éléments O ou O₂ diffusant vers la goutte sont majoritairement consommés au

sein de la zone de réaction. De ce fait, leur taux de concentration en proche surface est donc limité, voire quasi nul, expliquant que le processus de développement du lobe soit similaire pour les mélanges Ar/O₂ et He/O₂. Les travaux numériques récents de Muller [2019] ont étudié l'effet des phénomènes liés à la réactivité du N₂, démontrant que la formation de NO thermique et les réactions de surface du système Al-O-N peuvent effectivement mener à la formation de sites surfaciques sur la goutte. L'analyse menée montre cependant que le modèle développé aboutit à des résultats d'ensemble proches de ceux obtenus lorsque le N₂ est considéré comme un gaz inerte. Le bilan proposé est finalement peu concluant et met en évidence les difficultés inhérentes à la modélisation des mécanismes réactionnels pour les gouttes réagissant en milieu N₂/O₂. D'autre part, les observations faites sur la réaction des gouttes dans des milieux peu dilués ou purement oxydants montrent que des mécanismes supplémentaires peuvent intervenir en agissant sur l'ensemble des particules submicroniques de la flamme. En ce sens, l'existence de phénomènes de diffusiophorèse et/ou de thermophorèse est une hypothèse pertinente dont la contribution doit être davantage analysée.

5.3.2 Influence sur les paramètres de combustion

Visuellement, l'augmentation de la teneur en O₂ contribue globalement à accroître la luminosité perçue, cela est particulièrement notable entre les figures 5.20 et 5.22. Les résultats d'imagerie permettent de discrétiser cette information et la figure 5.24 montre que la contribution de la flamme augmente progressivement lorsque les proportions de gaz diluant diminuent. La nature du gaz diluant module également la contribution des émissions radiatives provenant de la flamme. En milieu He/O₂, l'énergie rayonnée par la flamme est relativement réduite, notamment pour des taux de dilution élevés. Dans des environnements N₂/O₂ et Ar/O₂, seule une différence limitée est constatée pour une concentration en O₂ de 20%, la part rayonnée par la flamme étant dans ce cas modérément diminuée quand le diazote est utilisé. La part rayonnée par la flamme est ensuite identique pour ces mélanges lorsque le taux de O₂ est plus important. De manière complémentaire, il est à noter que la densité de flux surfacique évaluée au niveau de la goutte reste constante, ne dépendant pas du taux de dilution ou de la nature du gaz diluant. La température de vaporisation de l'aluminium étant supposée peu sensible aux paramètres étudiés ici, ce constat pouvait être effectivement attendu. L'accroissement de la part rayonnée par la flamme résulte donc d'une intensification des émissions radiatives émanant de cette zone et non d'une diminution de celles issues de la goutte. Cette variation traduit alors finalement une modification des facteurs qui définissent l'énergie radiative de la flamme comme la température ainsi que la fraction massique et/ou la taille des produits condensés submicroniques.

Par ailleurs, les résultats présentés sur la figure 5.25 montrent que la position de la limite de flamme dépend aussi de la composition du milieu ambiant. Globalement, le rayon normalisé de la flamme augmente avec la teneur en oxygène et la flamme est plus proche de la surface de la goutte lorsque cette dernière réagit dans un mélange He/O₂, même pour des proportions significatives de dioxygène. Les mesures réalisées en atmosphère N₂/Ar/O₂ mettent aussi en évidence que, comparativement à l'Ar, le N₂ réduit la taille de la zone de flamme lorsque le taux de dilution est élevé.

Ensuite, le taux de régression des gouttes est un indicateur global sur l'influence de la composition du milieu ambiant. En effet, de manière théorique, k est attendu pour être directement dépendant des propriétés thermo-diffusives de l'environnement et l'augmentation des proportions d'oxydant est supposée favoriser la vaporisation des

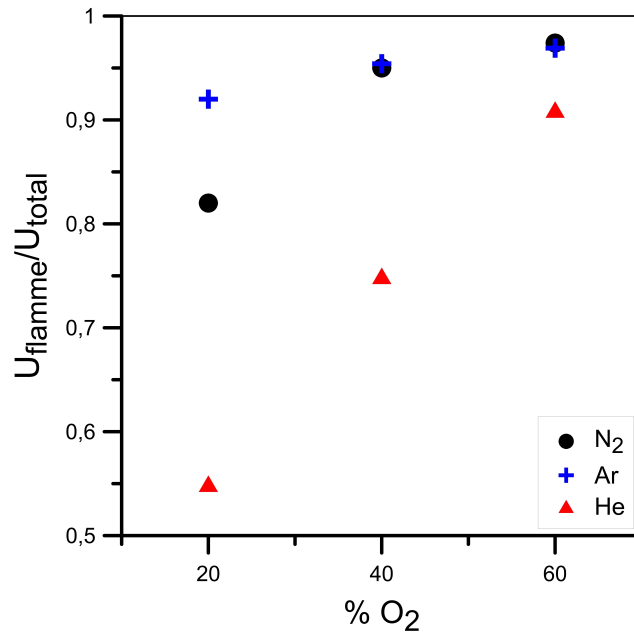


FIGURE 5.24 – Évolution de la contribution des émissions radiatives issues de la flamme en fonction de la fraction molaire de O_2 et du mélange oxydant.

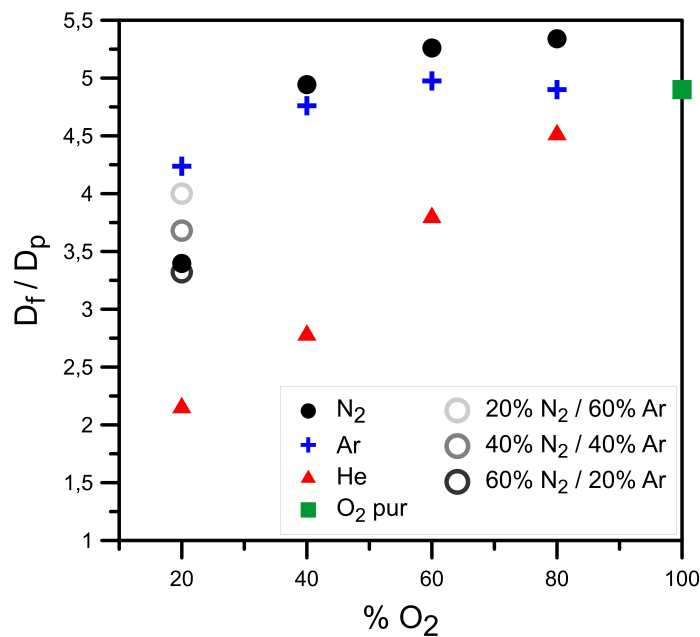


FIGURE 5.25 – Évolution du rapport entre le diamètre de flamme et le diamètre de goutte en fonction de la fraction molaire de O_2 et du mélange oxydant.

gouttes (Eq. 5.4 et 5.5). Les résultats obtenus numériquement par l'exploitation du code CEA et expérimentalement par imagerie en phase symétrique sont comparés sur la figure 5.26. Pour les mélanges N_2/O_2 et Ar/O_2 , le taux de régression augmente significativement lorsque le taux de dilution diminue et les valeurs mesurées sont proches des prédictions de la loi D^2 avec un écart moyen de 20% sur l'ensemble des points relevés. Néanmoins, les données expérimentales divergent sensiblement des attentes théoriques pour les mélanges He/O_2 , en particulier pour les environnements fortement dilués. En effet, comparativement aux cas N_2/O_2 et Ar/O_2 , la loi D^2 suppose une faible évolution du taux de régression ainsi que des valeurs de k supérieures en mélanges He/O_2

où les paramètres de diffusivité (thermique et massique) sont relativement plus élevés (Fig. 5.19). En opposition à la théorie, les résultats expérimentaux montrent finalement que le taux de régression évalué dans ces conditions est comparable à ceux estimés en atmosphère N_2/O_2 et Ar/O_2 , indépendamment de la concentration en oxydant (Fig. 5.26). Les observations ayant démontré que le processus de combustion en He/O_2 est similaire à celui en Ar/O_2 , la divergence des résultats théoriques et expérimentaux constatée avec l'hélium ne provient pas d'un aspect phénoménologique et certaines hypothèses de la loi D^2 semblent donc particulièrement limitées pour décrire ce cas. Notamment, la contribution de l'effet Soret dans la diffusion massique des espèces gazeuses est attendue pour être relativement plus marquée avec les mélanges contenant de l'hélium et, par conséquent, le postulat d'un nombre de Lewis unitaire pourrait ici être discutable.

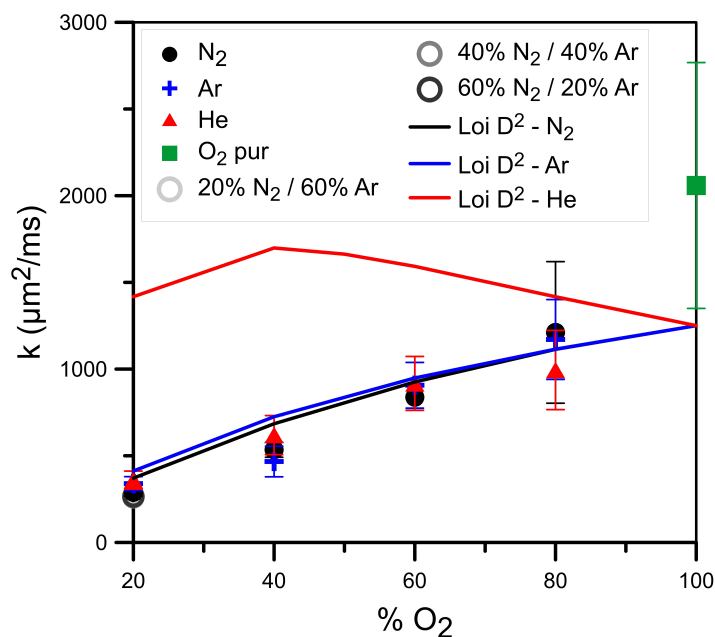


FIGURE 5.26 – Évolution du taux de régression des gouttes d'aluminium en fonction de la fraction molaire de O_2 et du mélange oxydant.

En finalité, les propriétés thermo-diffusives des milieux ambiants analysés dans cette étude n'ont pas une influence majeure sur la vaporisation des gouttes d'aluminium en réaction. En d'autres termes, il apparaît au travers de ces résultats que seuls les paramètres du couple comburant/combustible définissent le taux de régression de la goutte en régime symétrique. Ce constat est d'autant plus intéressant dans le cas de la combustion des gouttes en mélanges N_2/O_2 , ne suggérant aucune altération de la vitesse de vaporisation qui pourrait résulter de la formation de NO thermique ou de mécanismes surfaciques $Al-O-N$. De plus, le développement progressif du lobe durant la phase symétrique aurait potentiellement suscité une réduction de la surface disponible pour l'évaporation de l'aluminium et une diminution du taux d'évaporation aurait ainsi pu être attendue. Les estimations de k en mélanges N_2/O_2 ne traduisent pas l'existence de tels effets, soutenant que l'expansion du lobe d'oxyde en surface des gouttes ne résulte pas d'un processus graduel. Par ailleurs, ces données permettent de préciser davantage les observations faites précédemment sur la contribution des émissions radiatives de la flamme (Fig. 5.24) et la position limite de la zone de réaction (Fig. 5.25). En effet, la valeur de k étant indépendante du gaz diluant pour un taux d'oxydant donné, aucune variation notable de la concentration en produits condensés dans la flamme n'est alors envisagée. De plus, les données numériques du code CEA (Fig. 5.19) et les résultats expérimentaux de Dreizin [1999b] suggèrent que la nature du gaz diluant ne modifie pas

sensiblement la température de flamme. L'évolution constatée de la part rayonnée par la flamme selon le type de diluant utilisé n'est donc probablement pas majoritairement liée à ces paramètres. Cependant, d'après les résultats proposés sur la figure 5.25, l'évolution de D_f/D_p présente des similitudes pertinentes avec celle de la contribution des émissions radiatives de la flamme, en particulier pour de forts taux de dilution. Ainsi, l'énergie radiative de la flamme semble essentiellement être pilotée par la surface globale de cette dernière.

Le temps de combustion des gouttes d'aluminium est finalement présenté sur la figure 5.27 en fonction du diamètre initial des particules D_0 et de la composition du mélange réactif. Globalement, les résultats indiquent que le temps de combustion augmente avec le diamètre initial des gouttes pour l'ensemble des conditions analysées. L'optimisation d'une fonction de type BECKSTEAD sur la totalité des points de mesure montre alors que $t_c \propto D_0^{1.97}$. Il peut être également observé que la durée de réaction diminue progressivement lorsque les proportions de O_2 augmentent, quel que soit le gaz diluant.

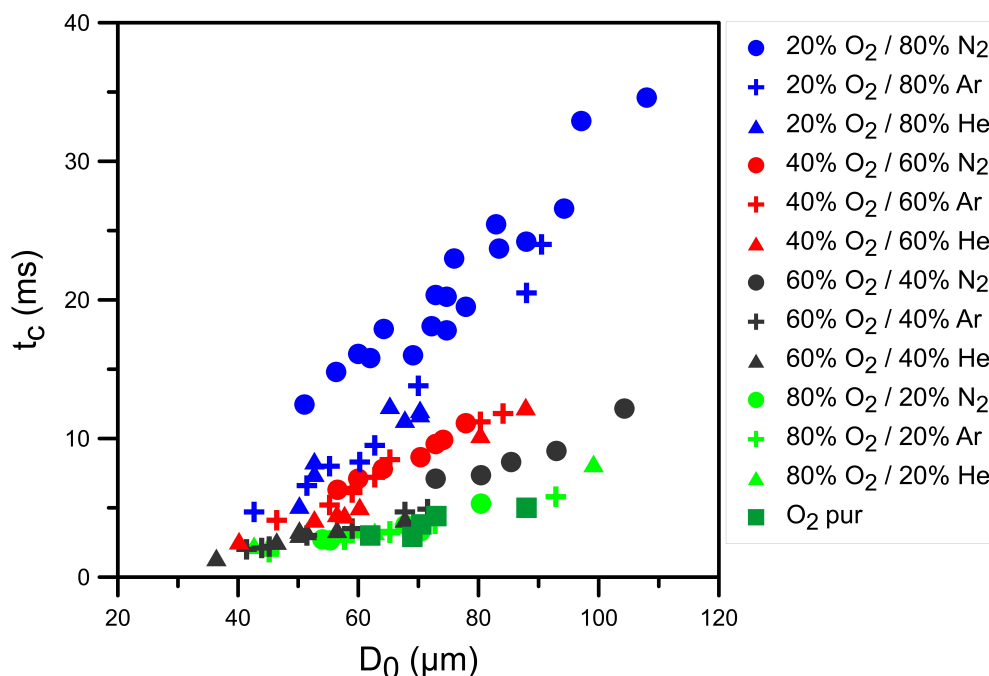


FIGURE 5.27 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 dans des mélanges N_2/O_2 , Ar/O_2 et He/O_2 .

Pour comparer l'influence des gaz N_2 , Ar et He , les résultats sont détaillés sur la figure 5.28, présentant séparément la durée de réaction pour chaque taux de dilution en fonction de D_0 . La nature du gaz diluant n'influence vraisemblablement pas le temps de combustion des gouttes de manière notable. Bien qu'une augmentation de t_c puisse être discutée pour le mélange N_2/O_2 avec 20% de O_2 , les résultats obtenus en atmosphère $N_2/Ar/O_2$ permettent dans ce cas de relativiser cette observation, les temps de réaction étant similaires pour des proportions de N_2 variant de 20% à 60%. Cela suggère alors que les modifications perçues de la dynamique de combustion, notamment pour des taux de dilution élevés, n'altèrent pas la durée de réaction finale. Les valeurs de t_c mesurées par PM sont comparées à celles extrapolées depuis le taux de régression expérimental k déterminé par imagerie et qui supposent une réaction totale des gouttes. La cohérence des lois D^2 expérimentales avec les temps de combustion mesurés est satisfaisante et corrobore la valeur de l'exposant de combustion déterminée ($n = 1.97$).

Par conséquent, il semble à nouveau ici que le taux de régression en phase symétrique soit possiblement maintenu en phase asymétrique malgré l'accumulation prononcée d'oxyde liquide en surface de la goutte, de plus, les quantités de combustible imbrûlées sont donc supposées être limitées. Des données documentées sont également présentées sur la figure 5.28 (Beckstead [2004], Dreizin [1999b], Badiola et al. [2011]). Les points expérimentaux sont en accord avec les résultats de Dreizin [1999a], l'écart relatif moyen étant de 12%. La corrélation de BECKSTEAD présente une tendance similaire ($t_c \propto D_0^{1.8}$) mais les prédictions surestiment systématiquement le temps de combustion avec un écart relatif moyen compris entre 45% et 75% selon le taux de dilution considéré. Enfin, la loi établie par Badiola et al. [2011] dans l'air n'est pas représentative des données expérimentales de cette étude, proposant une tendance différente ($t_c \propto D_0^{0.35}$) et minimisant considérablement t_c avec un écart relatif atteignant plus de 80% pour un diamètre initial D_0 de 110 μm . La comparaison des données met aussi en évidence la dispersion des mesures expérimentales, notamment pour les mélanges contenant 20% de dioxygène. En effet, la corrélation de BECKSTEAD reste une optimisation globale des points répertoriés au travers de la littérature et la loi empirique de BADIOLA est établie sur des résultats pour des gouttes d'aluminium de taille inférieure ($2 \mu\text{m} \leq D_0 \leq 20 \mu\text{m}$). Ce constat motive alors l'intérêt de renforcer les bases de données existantes.

5.3.3 Bilan

Une étude comparative sur la combustion de gouttes d'aluminium isolées dans des mélanges N_2/O_2 , Ar/O_2 et He/O_2 a été menée. Des résultats ont été présentés sur la phénoménologie de combustion ainsi que sur les paramètres d'intérêt pour analyser notamment la contribution du diazote dans le mécanisme réactionnel des particules. Par ailleurs, l'effet de la concentration en oxydant a également été étudié.

De manière générale, indépendamment de la composition du milieu ambiant, le processus de réaction de l'aluminium reste caractérisé par l'existence de phases de combustion distinctes. La durée respective des phases symétrique et asymétrique est systématiquement déterminée par la dynamique des mécanismes suscitant l'accumulation d'oxyde condensé en surface de la goutte. La composition du mélange peut alors moduler la dynamique de combustion. L'augmentation des proportions de O_2 dans l'environnement ambiant réduit globalement la durée relative de la phase symétrique. En comparaison des gaz diluants Ar et He, le N_2 contribue au déclenchement prématuré de la transition de régime. Plusieurs phénomènes ont été observés quant au mode de développement du lobe. En effet, pour des taux de dioxygène relativement faibles, l'expansion du lobe d'oxyde semble résulter de mécanismes essentiellement surfaciques induisant la production d'éléments condensés directement en surface de la goutte alors que pour des concentrations de O_2 plus importantes, les particules submicroniques de la flamme sont visiblement transportées depuis la zone de réaction jusqu'à la surface de la goutte.

Les mesures réalisées démontrent que les paramètres de combustion sont principalement définis par le taux de O_2 dans le mélange oxydant. Dans l'ensemble, la dilution réduit le taux de régression des gouttes et augmente le temps de réaction. Cependant, malgré l'influence constatée sur la dynamique de combustion, la nature du gaz diluant et donc les propriétés inhérentes de l'environnement proche goutte n'affectent pas significativement les valeurs de k et de t_c . De plus, dans les conditions étudiées ici, il apparaît que la loi D^2 est une approche a priori valable pour décrire la vaporisation des gouttes sur l'ensemble de la réaction et l'exposant de combustion déterminé depuis les

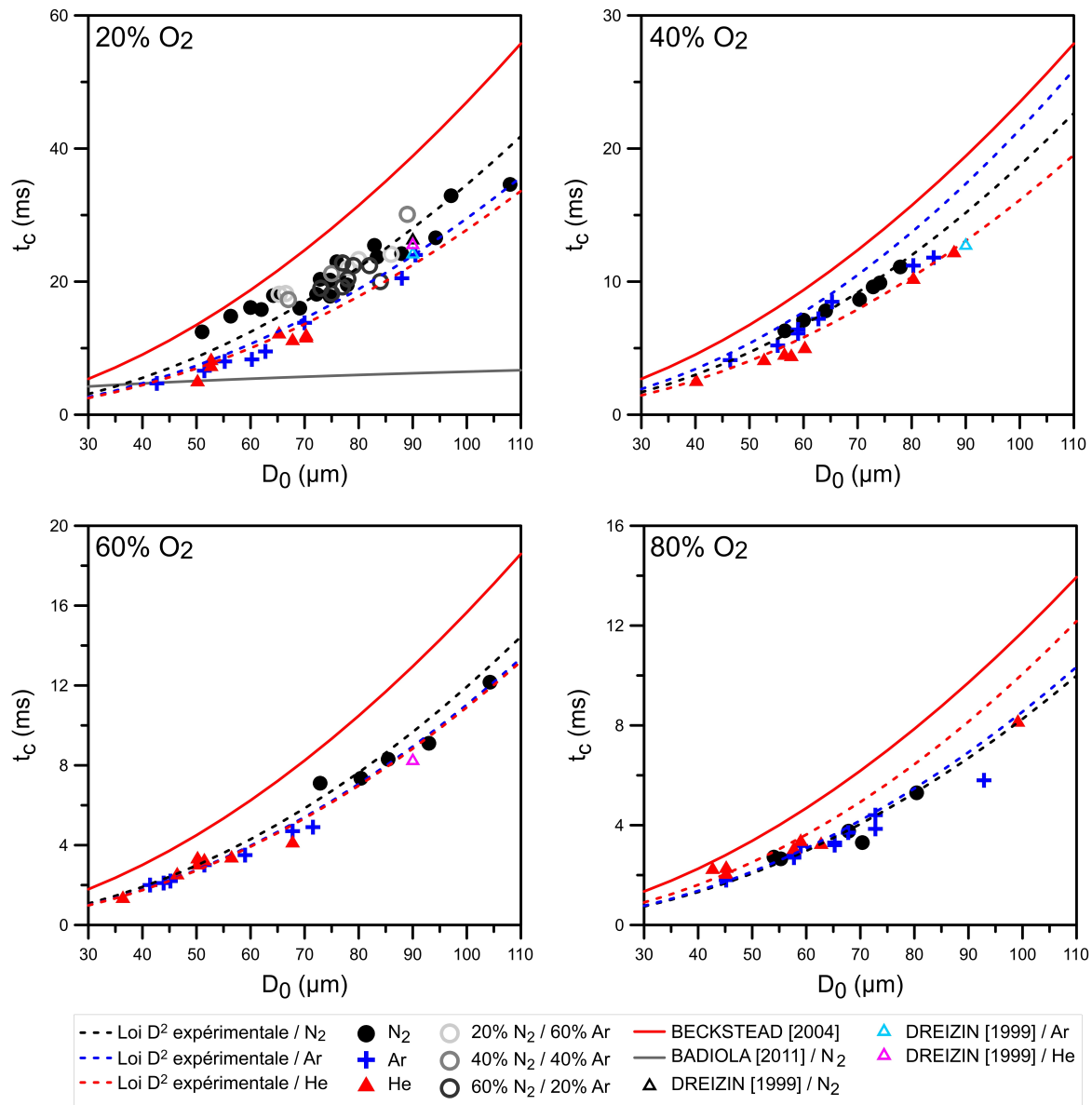


FIGURE 5.28 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 dans des mélanges N₂/O₂, Ar/O₂, He/O₂ et N₂/Ar/O₂.

résultats empiriques sur le temps de réaction montre d'ailleurs que $t_c \propto D_0^{1.97}$. Il est aussi à noter que les caractéristiques de la flamme sont modifiées par la composition du mélange, tant par le taux de dilution que par le gaz diluant en présence.

L'analyse des observations et des données permet finalement de corroborer certaines hypothèses émises sur le rôle du N₂ dans le processus de combustion de l'aluminium. Ainsi, pour des taux de dilution élevés, le diazote favorise visiblement l'initiation de la transition de régime et, par conséquent, contribue potentiellement aux mécanismes impliqués dans la production d'oxyde en surface de la goutte. Cela soutient le postulat issu des travaux de Dreizin [1999b] sur la formation d'intermédiaires gazeux NO qui, de par leur faible réactivité, améliorent l'apport d'oxygène en surface de la goutte et entretiennent les réactions hétérogènes issues du système Al-O-N. En opposition, sans un vecteur de transport intermédiaire, les éléments O et O₂ purs sont en grande partie consommés dans la zone de flamme et leurs proportions à la surface de la goutte semblent restreintes. Enfin, si la transition de régime est possiblement liée à la rétro-diffusion d'espèces gazeuses, le transport supposé d'une partie des produits condensés

de la flamme suscite également des interrogations majeures sur la contribution des phénomènes de diffusiophorèse et de thermophorèse (effet Soret) dans le processus de combustion des particules.

5.4 Réaction de l'aluminium avec des oxydants caractéristiques des MPS : CO_2 et CO .

Le dioxyde de carbone (CO_2) et le monoxyde de carbone (CO) sont des espèces oxydantes présentes en quantité relativement importante dans l'environnement des particules d'aluminium réagissant au sein des MPS. Néanmoins, peu de données sont globalement disponibles sur le processus de combustion d'une goutte isolée dans un environnement purement oxydant contenant du CO_2 ou du CO , de surcroît pour des particules dont la taille est représentative de celles retrouvées dans les MPS. Ainsi, dans une démarche similaire à celle développée précédemment pour l'air, cette partie est dédiée à l'analyse de la réaction des gouttes d'aluminium dans des milieux constitués uniquement de CO_2 ou de CO pour rendre compte de la phénoménologie globale et des paramètres de combustion dans ces conditions. L'effet de la pression sera également étudié jusqu'à des valeurs de 15 bar pour mettre en évidence les phénomènes induits et présenter des données inédites pertinentes pour le développement des modèles prédictifs.

5.4.1 Combustion de l'aluminium dans le CO_2 pur à pression variable

Le processus de combustion d'une goutte d'aluminium dans une atmosphère purement CO_2 est illustré sur la figure 5.29. Les images supérieures sont brutes et un filtre Laplacien est appliqué pour les images inférieures. Le signal d'intensité mesuré par PM ainsi que l'évolution du diamètre de goutte sont également présentés sur le graphique correspondant.

Tout d'abord, durant la phase de chauffage, la couche d'oxyde est observée dans une phase intermédiaire colorée en orange (Fig. 5.29 2-3), n'étant pas complètement liquide mais suffisamment ductile pour suivre l'évolution de la surface de la goutte. Une réaction en phase gaz est d'ailleurs observée avant que la couche d'oxyde initiale ne soit totalement fondue (Fig. 5.29 3) et donc possiblement avant que le point de fusion de l'alumine ne soit atteint, corroborant les suppositions de Yuasa et al. [1992]. Après allumage, un lobe d'oxyde (coloré en rouge) est initialement formé (Fig. 5.29 4) et une flamme de diffusion relativement sphérique peut être visualisée autour de la particule en réaction (Fig. 5.29 4-7), constituée des zones typiques d'émission (émission majoritaire gaz et émission majoritaire des oxydes condensés). En outre, avec un rapport D_f/D_p proche de 2.2 lors de la réaction dans le CO_2 à pression atmosphérique, la position de la flamme est sensiblement plus proche de la goutte en comparaison des cas en O_2 pur. Le processus de combustion de l'aluminium peut alors visiblement s'établir de manière auto-entretenu en phase vapeur malgré l'énergie importante requise pour la dissociation complète du CO_2 en comparaison du O_2 . Néanmoins, les observations faites et les empreintes lumineuses relevées suggèrent des différences perceptibles en comparaison des cas précédemment évoqués en mélanges O_2 . Notamment, la dynamique de développement du lobe d'oxyde en surface de la goutte s'avère différente. Dans un premier temps, par analogie avec les séquences de combustion obtenues en mélanges O_2 , la taille du lobe initial paraît relativement plus importante en atmosphère CO_2 . Puis, la taille relative du

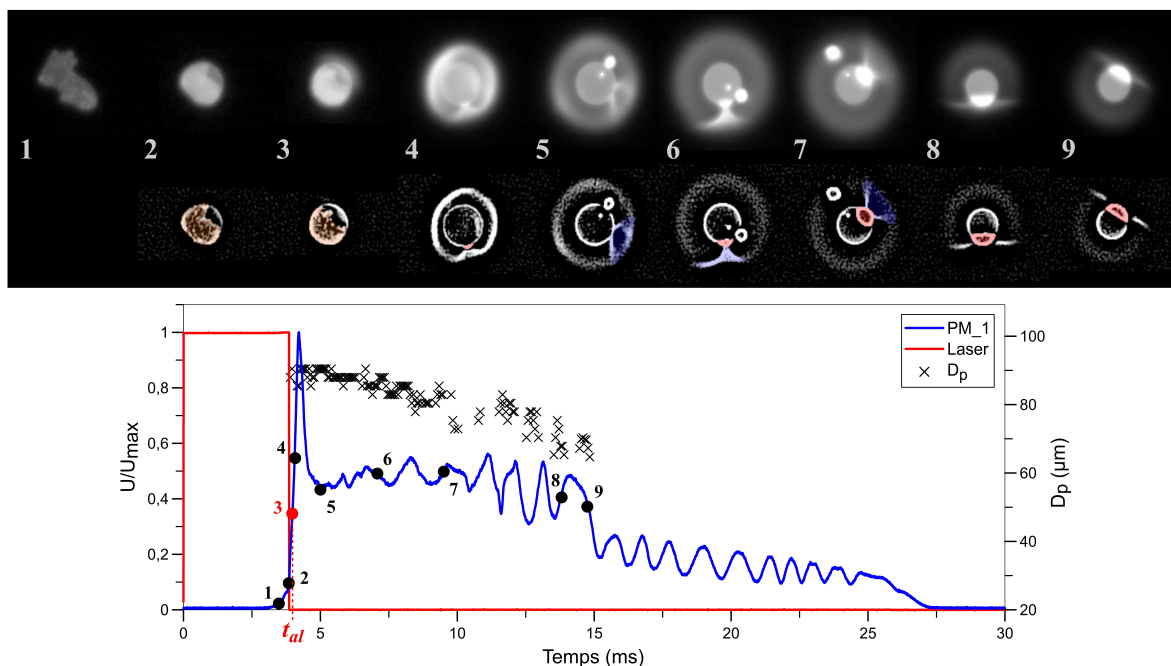


FIGURE 5.29 – Séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium ($D_0 = 90 \mu\text{m}$) dans le CO_2 pur à pression atmosphérique et évolution correspondante du signal PM et du diamètre de goutte D_p .

lobe semble croître pendant la phase de régression de la goutte en régime symétrique, recouvrant progressivement la surface de cette dernière. Le régime asymétrique est par la suite initié lorsque le taux de recouvrement de la goutte par le lobe devient significatif, sans qu'aucun phénomène particulier ne soit identifié. La transition de régime dans le cas de la combustion de l'aluminium dans le CO_2 est donc plus progressive et moins soudaine que dans les milieux contenant du O_2 . Dans ces conditions, l'intensité lumineuse globale réduit au cours du processus et, contrairement aux cas précédents, aucune variation majeure ou singulière n'est remarquable. Les profils mesurés pendant la combustion présentent alors fréquemment des fluctuations entretenues jusqu'à la fin de la réaction dues à la rotation de l'ensemble goutte/lobe. Aussi, bien que l'asymétrie de la flamme puisse être clairement constatée (Fig. 5.29 8), la détermination exacte de l'initiation de la transition de régime reste subjective. En effet, la flamme est rapidement altérée par la présence du lobe en surface avec la formation d'une zone spécifique (colorée en bleu) mais ne présente pas pour autant une asymétrie marquée (Fig. 5.29 5-7). Par ailleurs, compte tenu de la durée importante du temps de combustion des particules dans le CO_2 à pression atmosphérique, la phase d'extinction n'a jamais été observée dans le champ de visualisation caméra et ne peut être discutée ici.

La figure 5.30 illustre une séquence de combustion d'une particule d'aluminium dans un milieu contenant uniquement du CO_2 sous pression. La figure 5.31 rassemble les empreintes lumineuses de la combustion de gouttes de diamètre initial similaire ($D_0 \sim 73 \mu\text{m}$) pour diverses pressions et présente, entre autres, le signal d'émission correspondant à la séquence de la figure 5.30. Tout comme dans l'air, l'élévation de la pression se traduit notamment par une augmentation des émissions radiatives (Fig. 5.31) et une intensification de la zone de flamme (Fig. 5.30 3-4). De nouveau, l'accroissement de l'énergie rayonnée résulte probablement d'une modification de la fraction volumique des particules submicroniques de la flamme et/ou de leur température. De manière complémentaire, la figure 5.32 qui présente l'évolution du rapport D_f/D_p en fonction de la pression montre que le diamètre relatif de la flamme diminue d'environ 20% entre

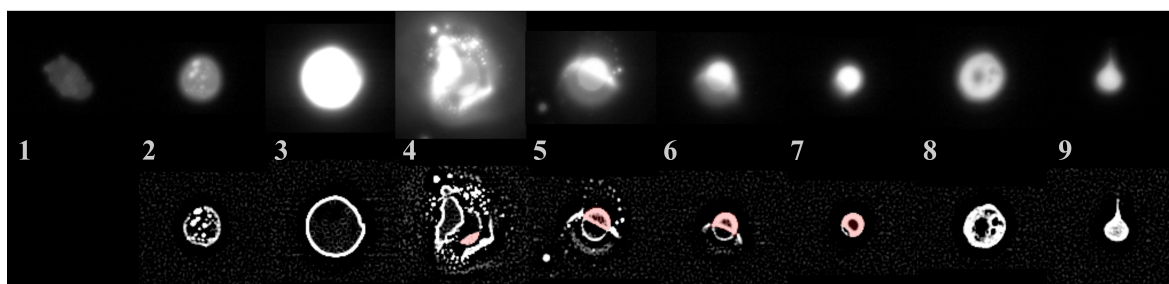


FIGURE 5.30 – Séquence de combustion caractéristique d’une particule d’aluminium ($D_0 = 78 \mu\text{m}$) dans le CO_2 pur avec une pression ambiante de 5 bar.

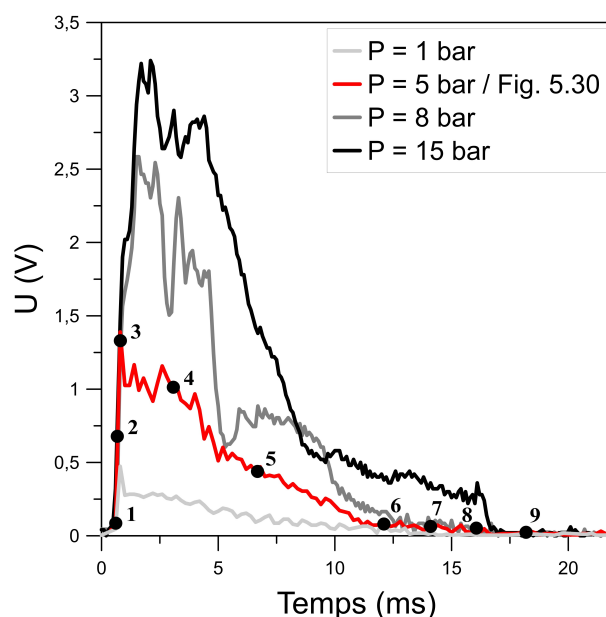


FIGURE 5.31 – Signaux d’émission PM de particules d’aluminium en réaction dans du CO_2 pur pour des conditions de pression variables.

1 et 15 bar dans le cas du CO_2 . A titre comparatif, la position de la flamme diminue de plus de 45% dans l’air sur le même intervalle de pression et le rapport D_f/D_p tend dans l’ensemble des cas vers une valeur seuil proche de 1.7.

Ensuite, il peut être constaté que l’évolution de l’ensemble des signaux PM est analogue pour les gammes de pression relativement élevées (≥ 5 bar) et différents niveaux d’émission sont alors identifiés (Fig. 5.31). En effet, de manière semblable au cas de la combustion de l’aluminium dans l’air sous pression détaillé dans la partie 5.2.2, la correspondance des signaux PM et des images caméra suggère que la transition de régime suscite une réduction notable de l’intensité lumineuse due à la diminution perceptible des émissions issues de la flamme (Fig. 5.30 5-6 et Fig. 5.31 5-6). Le palier supérieur du signal d’émission semble correspondre à la phase de combustion en régime symétrique (Fig. 5.30 3-4 et Fig. 5.31 3-4), puis, le régime asymétrique relativement peu émissif correspond au palier inférieur qui subsiste jusqu’à la fin de la réaction (Fig. 5.30 5-7 et Fig. 5.31 5-7). La durée relative de la phase symétrique est d’ailleurs quantifiée sur la figure 5.33 en fonction de la pression et il s’avère que la dynamique de combustion n’est pas sensiblement impactée par l’élévation de pression. La période assimilée à la phase en régime symétrique représente ainsi en moyenne 30% de la durée totale de réaction.

Les observations faites sous pression permettent également ici de renseigner quant

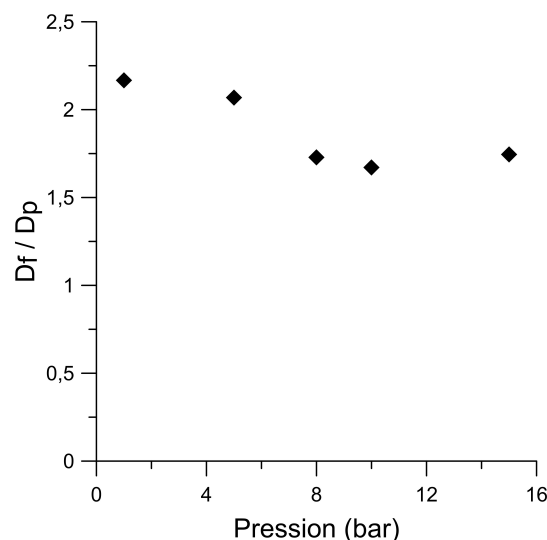


FIGURE 5.32 – Évolution du rapport D_f/D_p pour des gouttes d'aluminium en réaction dans le CO_2 pur en fonction de la pression.

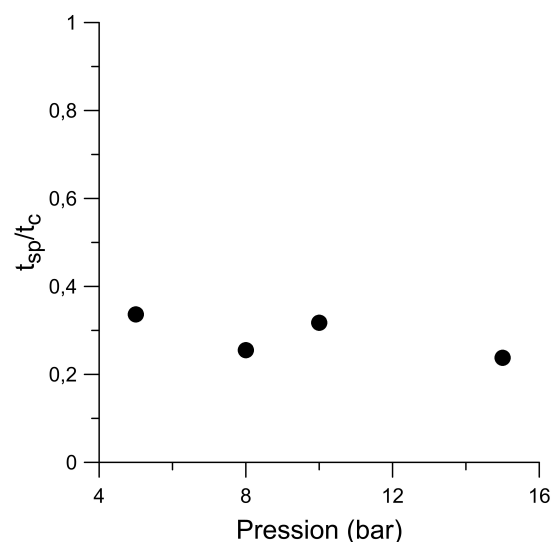


FIGURE 5.33 – Évolution de la durée relative de la phase en régime symétrique pour des gouttes d'aluminium en réaction dans le CO_2 pur en fonction de la pression.

au processus d'extinction. Tout comme dans l'air sous pression, la goutte d'aluminium est finalement totalement recouverte par une couche d'oxyde liquide et des mécanismes d'inclusion gazeuse (formation de bulles) sont mis en évidence d'après les fluctuations de volume de l'ensemble observées avant extinction (Fig. 5.30 8-9). Cependant, aucun phénomène de micro-explosion n'a été recensé en CO_2 pur pour les pressions étudiées. D'autre part, la phase de chauffage des particules dans le CO_2 sous pression (≥ 5 bar) comporte des aspects phénoménologiques intéressants qui n'ont pas été observés dans l'air. Cette phase du processus de combustion est détaillée sur la figure 5.34, présentant une goutte d'aluminium encore soumise au flux énergétique du laser avant initiation de la réaction en phase vapeur. Comme illustré, en plus de la formation du lobe initial résultant de la rétraction de la couche passive naturelle, des îlots d'oxyde annexes sont formés en surface de la goutte après fusion de la particule métallique (Fig. 5.34 4). Vraisemblablement issus de mécanismes hétérogènes, les sites émergeant s'agglomèrent progressivement et génèrent ensuite des structures de taille croissante dont l'aspect visuel

est semblable à celui du lobe initial (Fig. 5.34 5-8). L'opacification de la flamme lors de l'allumage empêche fréquemment de suivre l'évolution des îlots formés (Fig. 5.30 3), néanmoins, certaines séquences opportunes ont permis de percevoir que l'ensemble des sites migrent vers le lobe initial pour s'agréger et former un lobe unique de taille accrue.

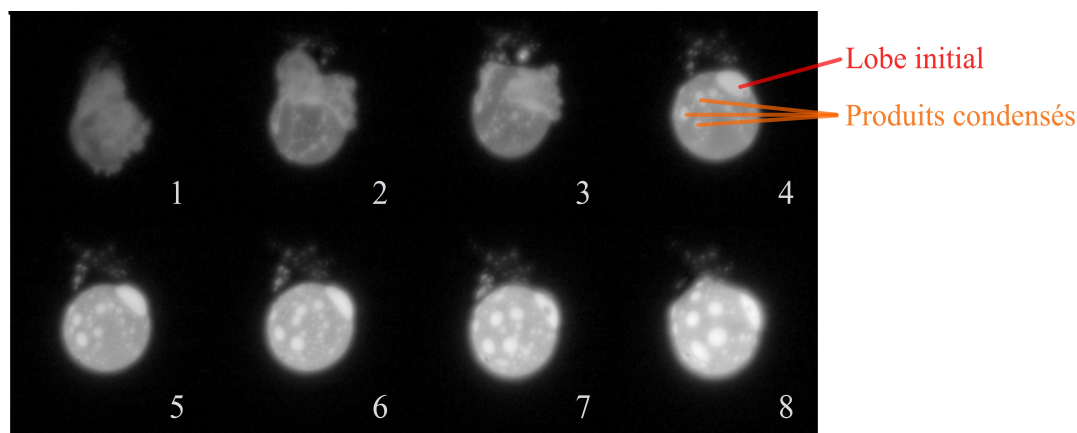


FIGURE 5.34 – Phase de chauffage d’une particule d’aluminium ($D_0 = 155 \mu\text{m}$) dans le CO_2 pur avec une pression ambiante de 10 bar.

L’analyse du processus de combustion des gouttes dans le CO_2 à pression variable soulève alors davantage d’interrogations sur le processus de développement du lobe d’oxyde et notamment sur la contribution des réactions de surface. En effet, les essais réalisés sous pression ont permis de montrer que l’initiation de réactions hétérogènes pouvait être observée distinctement pendant la phase de chauffage, conduisant ainsi à la formation d’îlots de produits condensés en surface de la goutte et au grossissement du lobe initial. Cependant, après allumage, les séquences d’images obtenues indiquent a priori que la surface de la goutte en réaction est globalement homogène en dehors du lobe initial et ne transcrivent alors aucun signe apparent de l’implication de mécanismes hétérogènes durant le reste du processus de combustion. La cinétique de surface semble donc être inhibée lorsque la réaction est établie en phase vapeur, suggérant que la diffusion d’éléments gazeux jusqu’à la surface de la goutte est considérablement restreinte dans ces conditions. D’après ce raisonnement, une contribution marquée des mécanismes hétérogènes peut être possiblement attendue avant extinction où les réactions en phase gazeuse sont fortement limitées. Cela corroborerait le postulat de Rossi et al. [2001] qui suppose que la formation de composés du système Al-O-C est favorisée en fin de réaction à température réduite. Néanmoins, si le rôle des réactions de surface durant la réaction en phase vapeur est considéré comme étant minime, l’expansion visible du lobe dans le CO_2 à pression atmosphérique (Fig. 5.29) résulte dans ce cas de mécanismes annexes. Pour autant, aucun transport visible de particules submicroniques depuis la flamme vers la goutte n’a été identifié et, bien que supposée, la contribution des phénomènes de thermophorèse et/ou de diffusiophorèse n’a donc pas été détectée. Finalement, afin d’élargir les axes de réflexion, une hypothèse additionnelle peut encore être discutée d’après les observations phénoménologiques. Ainsi, la séquence illustrée sur la figure 5.29 montre que le lobe d’oxyde constitue un obstacle physique qui entrave localement l’évacuation de l’aluminium gazeux, générant une zone spécifique apparente dans la flamme (colorée en bleu). L’existence de cette structure traduit une modification locale de la concentration en produits condensés résultant potentiellement d’effets aérodynamiques. Hypothétiquement, ces effets peuvent alors favoriser l’agglomération des particules submicroniques de la flamme avec le lobe en les transportant directement ou en modifiant localement les gradients d’espèce et de température. De cette façon,

l'analyse des écoulements dans la zone de flamme peut également être intéressante pour comprendre le processus d'accumulation d'oxyde en surface de la goutte.

L'influence de la pression sur le taux de régression et le temps de combustion des gouttes dans le CO_2 pur a aussi été analysée. La figure 5.35 présente ainsi l'évolution de la constante d'évaporation k en fonction de la pression environnante. Pour rappel, le taux de régression des gouttes est directement mesuré par imagerie en phase de combustion symétrique. Il semble d'après les résultats que la valeur de k soit visiblement constante et indépendante de la pression avec une valeur moyenne de $296 \mu\text{m}^2/\text{ms} \pm 5\%$. A titre comparatif, le taux de régression des gouttes en atmosphère purement O_2 avait été évalué à $2060 \mu\text{m}^2/\text{ms} \pm 30\%$. Ce constat met en évidence la notion d'efficacité oxydante et confirme la tendance observée au travers de la littérature. La valeur de l'efficacité oxydante du CO_2 sera d'ailleurs déterminée ultérieurement en se basant sur une étude regroupant davantage de données.

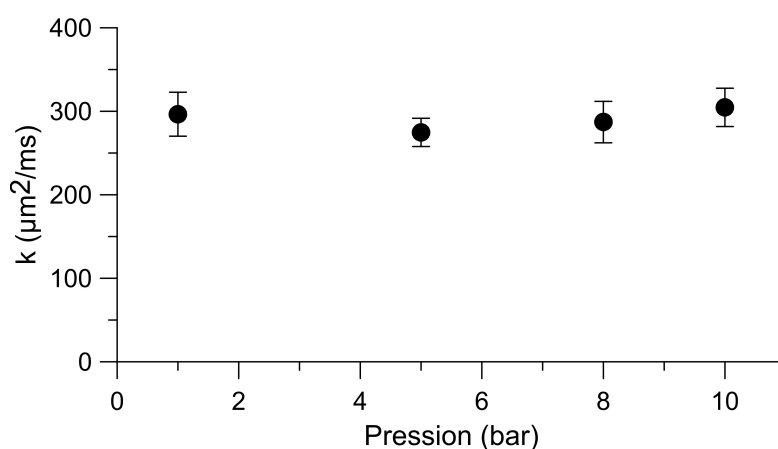


FIGURE 5.35 – Évolution du taux de régression des gouttes d'aluminium en réaction dans le CO_2 pur en fonction de la pression ambiante.

La figure 5.36 compile les temps de combustion expérimentaux obtenus à partir des signaux PM dans le CO_2 pur pour des pressions comprises entre 1 et 15 bar. Sur cette figure, les données expérimentales documentées dans la littérature pour le CO_2 à pression atmosphérique (Rossi et al. [2001], Legrand et al. [2001]) sont également présentées ainsi que les prédictions de la corrélation empirique de BECKSTEAD pour l'intervalle de pression concerné. De surcroît, ce graphique met en évidence l'intérêt des travaux réalisés qui constituent une base de données inédite, complétant les mesures existantes en élargissant la gamme de diamètre initial de goutte et de pression. Les données expérimentales de cette étude sont globalement en concordance avec les données reportées dont les valeurs sont néanmoins quelque peu inférieures, en particulier pour un diamètre initial de goutte élevé. La différence constatée avec les valeurs proposées par Legrand et al. [2001] peut ainsi rendre compte de l'amélioration des moyens de visualisation qui assurent entre autres une précision de mesure accrue concernant le diamètre initial des gouttes. Les temps de réaction estimés selon la corrélation de BECKSTEAD sont plus longs avec un écart moyen évalué à 20%. Cela peut être expliqué par le nombre limité de mesures en atmosphère purement CO_2 qui a été utilisé pour définir la corrélation. Ensuite, dans ces conditions, l'optimisation d'une loi D^n sur l'ensemble des points de mesure donne $n = 1.92$ (95 points de mesure). Tout comme dans l'air, les temps de combustion sont faiblement affectés par la pression dans le CO_2 pur avec ici, à l'inverse, une durée de réaction faiblement réduite lorsque la pression P augmente. Finalement, les résultats indiquent que l'évolution de t_c répond partiellement aux attentes de la loi

D^2 pour un régime de diffusion avec un exposant de combustion proche de 2 et une dépendance à la pression limitée tel que $t_c \propto D_0^{1.92}/P^{0.1}$. Or, il a été montré que la valeur de k pouvait être considérée comme étant indépendante de la pression. Rappelant une nouvelle fois que t_c est une information globale qui intègre de nombreux effets encore incompris, il est donc intéressant de constater que le taux de régression mesuré en début de réaction et le temps de combustion PM ne sont pas affectés de la même manière par le paramètre de pression. La figure 5.36 illustre cette divergence et présente les temps de combustion extrapolés depuis la loi D^2 expérimentale en supposant une régression totale des gouttes. Les valeurs attendues selon la loi D^2 expérimentale sont alors sensiblement éloignées des temps de combustion réellement mesurés pour les pressions les plus élevées. En effet, l'écart moyen calculé entre les valeurs reste contenu en dessous de 10% pour les plus faibles pressions ($P \leq 5$ bar) puis croît jusqu'à 35% pour les pressions supérieures.

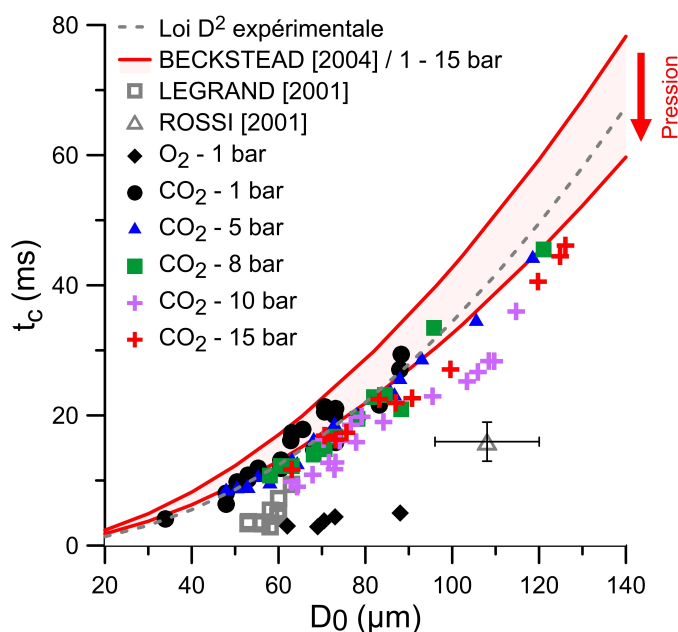


FIGURE 5.36 – Évolution du temps de combustion des particules d'aluminium en réaction dans le CO_2 pur en fonction du diamètre initial D_0 des gouttes et de la pression ambiante.

Le constat établi sur l'effet respectif de la pression sur les paramètres t_c et k renforce l'intérêt des mesures par imagerie et constitue un sujet d'analyse inédit. La différence relevée peut résulter par exemple des modalités du processus d'accumulation d'oxyde en surface de la goutte qui peut potentiellement impacter l'évaporation de l'aluminium (surface de réaction disponible) ainsi que le processus d'extinction (recouvrement total de la surface de réaction). Notamment, au début de la phase asymétrique, bien que le lobe ait un volume relativement conséquent à pression atmosphérique, le taux de recouvrement semble être relativement moins important que pour les cas sous pression (Fig. 5.29 8-9 et Fig. 5.30 5). Les conséquences suscitées restant difficilement quantifiables, cela suggérerait néanmoins une augmentation non constatée du temps de combustion avec la pression due à la réduction de la surface de réaction. Au vu de ces images, une hypothèse demeure tout de même possible concernant la fin du processus de combustion. Le recouvrement total de la goutte pourrait effectivement s'avérer être plus rapide sous pression, induisant une extinction prématurée de la réaction qui serait donc incomplète. Cependant, les observations faites sur les séquences favorables ne corroborent pas ce scénario et la taille des éléments observés avant extinction ne peut justifier un écart significatif de 35% sur le temps de réaction. Enfin, comme précédemment

évoqué, des interrogations subsistent sur le rôle de la cinétique de surface. Visibles lors de la phase de chauffage, ces mécanismes pourraient contribuer à la réaction du métal après allumage et éventuellement réduire le temps global de combustion. Aucun indicateur visuel ne soutient a priori ce postulat lors du régime en phase vapeur mais la surface de la goutte ne peut être visualisée de manière détaillée et systématique lors de la fin du processus de combustion alors que cette phase est possiblement favorable à l'initiation de réactions de surface. Des analyses complémentaires approfondies sont donc requises pour développer les axes de réflexions proposés.

5.4.2 Combustion de l'aluminium dans le CO pur à pression variable

Comme mentionné dans la partie 3.2.3, seuls les travaux de Bucher et al. [1999] ont abordé la combustion de l'aluminium dans le CO pur, uniquement à pression atmosphérique, et il a alors été rapporté que le processus de combustion dans ces conditions était limité à des réactions hétérogènes de surface. Ainsi, afin d'obtenir des informations additionnelles et pertinentes sur la contribution du monoxyde de carbone en tant qu'oxydant, la réaction de l'aluminium dans le CO pur a été étudiée à pression variable entre 1 et 15 bar. Parallèlement, des essais ont été réalisés en N₂ pur pour permettre une analyse comparative avec un environnement non réactif de référence qui possède des propriétés thermo-diffusives proches du CO. Les séquences d'images présentées sur les figures 5.37 et 5.38 illustrent des particules d'aluminium chauffées dans du CO et le N₂ purs ainsi que les signaux d'émission relatifs pour diverses conditions de pression. De plus, la figure 5.39 isole l'effet de la pression et expose les signaux d'émission PM constatés à différentes pressions dans le CO et le N₂ pour des particules de taille initiale équivalente. L'ensemble des signaux présentés sont issus de mesures réalisées avec une configuration PM identique.

Tout d'abord, comme le montrent les illustrations des figures 5.37 et 5.38, malgré la résorption de la couche d'alumine passive (colorée en jaune) et la formation d'un lobe d'oxyde initial (coloré en rouge) durant la phase de chauffage (Fig. 5.37 (a) 3 et Fig. 5.38 (a) 2), le processus de réaction ne peut visiblement pas être auto-entretenu en phase vapeur dans le CO pur. En effet, bien qu'une flamme de diffusion puisse être observée dans certains cas après la fusion de la particule métallique (figure 5.37 (a) 3), ce régime ne subsiste pas de manière autonome et, indépendamment de la pression, aucune image ne relate l'apparition d'une flamme enveloppe autour de la goutte après l'extinction du laser (Fig. 5.37 et Fig. 5.38). Néanmoins, plusieurs mécanismes de surface peuvent être mis en évidence à travers l'ensemble des séquences proposées et les signaux d'émission relevés dans le CO sont d'ailleurs différents de ceux dans le N₂ (Fig. 5.37, Fig. 5.38 et Fig. 5.39). Les phénomènes observés (Fig. 5.37 et Fig. 5.38) et les signaux PM enregistrés (Fig. 5.39) dans le CO pur semblent également présenter des divergences remarquables en fonction de la pression imposée. Dans ce cas, la pression augmente vraisemblablement l'intensité lumineuse et le temps d'émission des particules. L'effet de la pression en atmosphère N₂ est plus restreint et les empreintes lumineuses mesurées sont foncièrement similaires. L'accroissement des émissions radiatives dans le CO ne peut donc être seulement attribué à une modification du point de fusion de l'aluminium avec la pression, suggérant une influence notable de la pression sur les processus exothermiques impliqués.

Pour des pressions relativement faibles ($P \leq 5$ bar) la formation d'îlots lumineux condensés (colorés en rouge) peut être observée distinctement en surface de la goutte après l'extinction du laser (Fig. 5.37 (a) 4). Par la suite, les sites émergeant s'agrègent et les particules d'aluminium sont progressivement recouvertes (Fig. 5.37 (a) 4-6). A

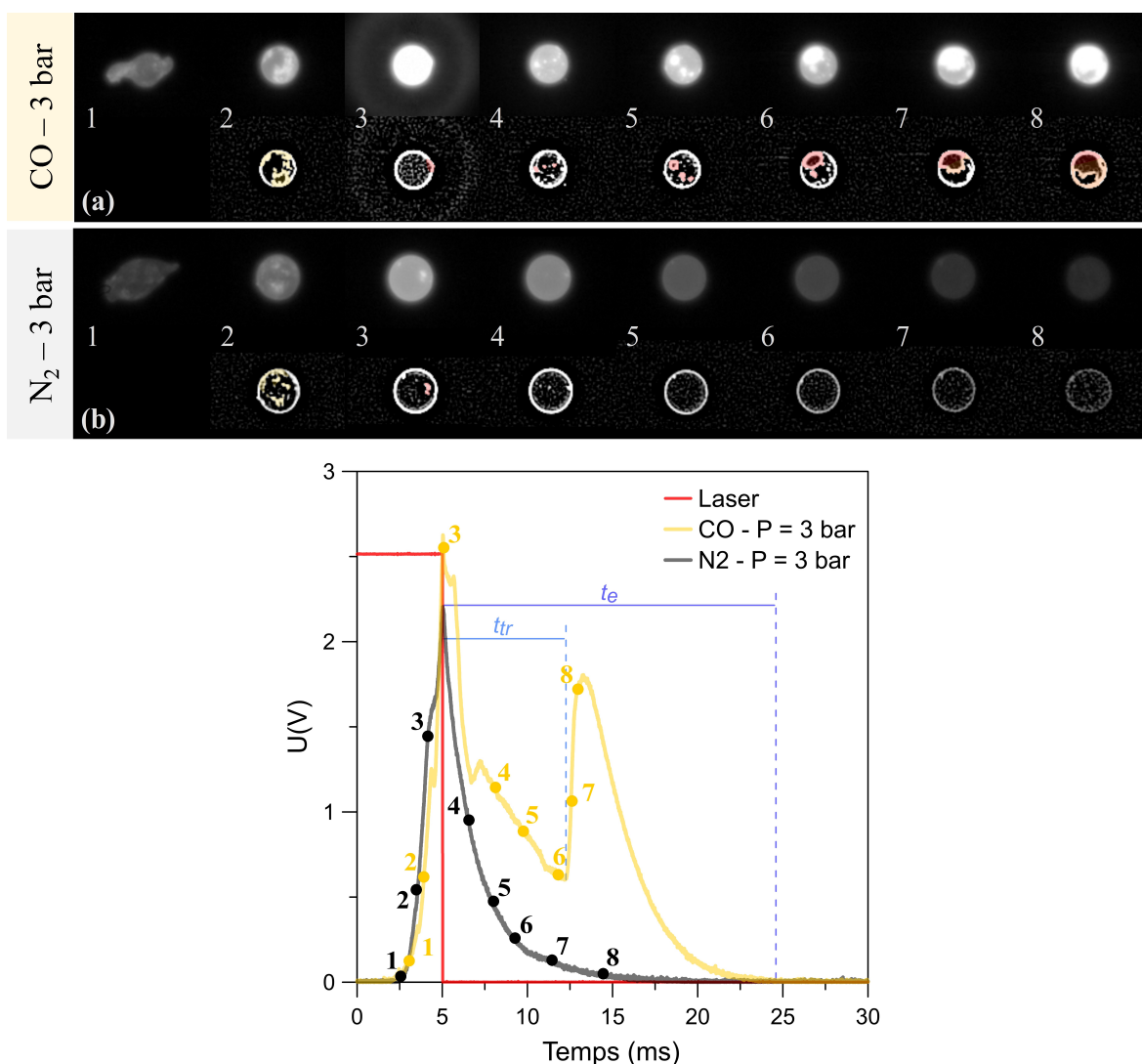


FIGURE 5.37 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium dans le CO et le N₂ pur avec une pression ambiante de 3 bar et évolution des signaux PM correspondants. (a) CO / $D_0 = 80 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = 32 μs - (b) N₂ / $D_0 = 90 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = 32 μs .

ce stade, l'émission lumineuse des particules diminue. La dernière étape consiste en l'expansion d'une couche d'oxyde (colorée en orange) sur la surface de la goutte, enveloppant rapidement la totalité de la particule (Fig. 5.37 (a) 7-8). Il est à noter que ce phénomène est initié à un niveau d'intensité proche de celui correspondant à la fusion de la couche d'alumine durant la phase de chauffage (Fig. 5.37 (a) 2), se traduisant notamment par un pic d'émission radiative. L'intensité lumineuse diminue ensuite pour retrouver progressivement sa valeur initiale après refroidissement de l'ensemble. Ainsi, probablement en raison de la passivation de la goutte suscitée par la couche formée, la réaction s'arrête donc en définitive de manière prématurée alors qu'une quantité importante de métal reste imbrûlée. Pour les pressions inférieures à 5 bar, la durée t_{tr} de la phase précédant l'apparition de la couche de passivation a été mesurée et comparée au temps d'émission globale après extinction laser t_e . Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 5.40 et montrent que la pression influence la dynamique du processus de recouvrement en favorisant son déclenchement. Les observations faites en milieu inerte ne retranscrivent pas à une telle phénoménologie et, en l'absence de réactions visibles, l'émission lumineuse de la goutte décroît continuellement juste après l'extinction du

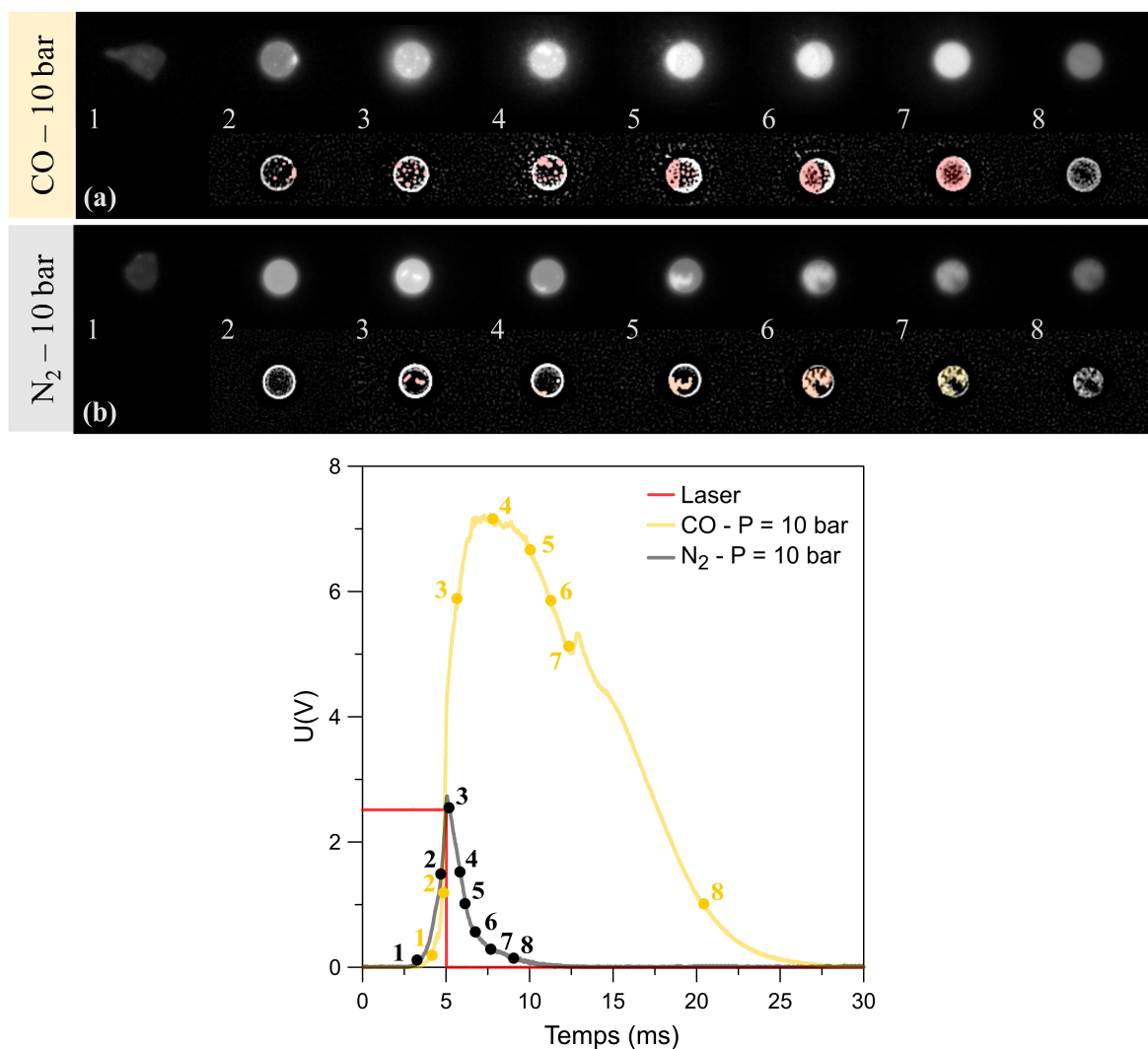


FIGURE 5.38 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium dans le CO et le N₂ pur avec une pression ambiante de 10 bar et évolution des signaux PM correspondants. (a) CO / $D_0 = 75 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = 5 μs - (b) N₂ / $D_0 = 73 \mu\text{m}$ / Temps d'exposition caméra = 32 μs .

laser sans aucune singularité apparente (Fig. 5.37 (b) 3-8).

Pour des pressions plus élevées ($P \geq 10$ bar), l'intensité lumineuse augmente après l'extinction du laser (Fig. 5.38 (a) 2-3). Des structures émissives liquides (colorées en rouge) émergent également en surface de la goutte (Fig. 5.38 (a) 3-5) mais la formation soudaine d'une couche de passivation n'est pas constatée. La particule est finalement rapidement recouverte par l'agglomération des produits condensés formés (Fig. 5.38 (a) 5-7) puis l'ensemble refroidit ensuite de manière homogène (Fig. 5.38 (a) 8). Durant ces phases, même si l'intensité lumineuse diminue globalement, une recrudescence ponctuelle et relativement peu prononcée des émissions radiatives peut être décelée sur les profils PM pour ces niveaux de pression (Fig. 5.38 (a) et Fig. 5.39) alors qu'aucun phénomène n'est visuellement observé. De plus, contrairement au cas à 3 bar, ce pic local est identifié à un niveau d'émission considérablement supérieur à celui correspondant à la fusion de la couche d'alumine durant la phase de chauffage (Fig. 5.38 (a) 2). La formation et l'accumulation de produits condensés en surface de la goutte ne sont de nouveau pas remarquées sur la séquence d'une particule d'aluminium chauffée dans le N₂ pur à 10 bar (Fig. 5.38 (b)). Seul le recouvrement partiel de la goutte par une couche de produits condensés est visible durant la phase de refroidissement sans

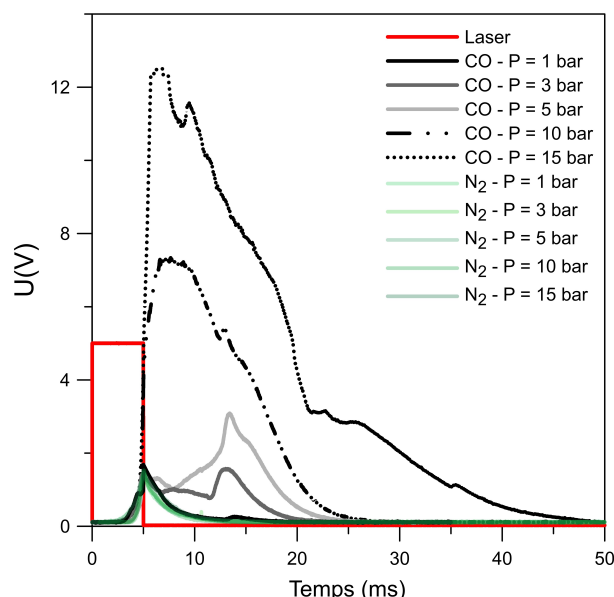


FIGURE 5.39 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium dans le CO et le N_2 pur avec une pression ambiante de 10 bar et évolution des signaux PM correspondants.

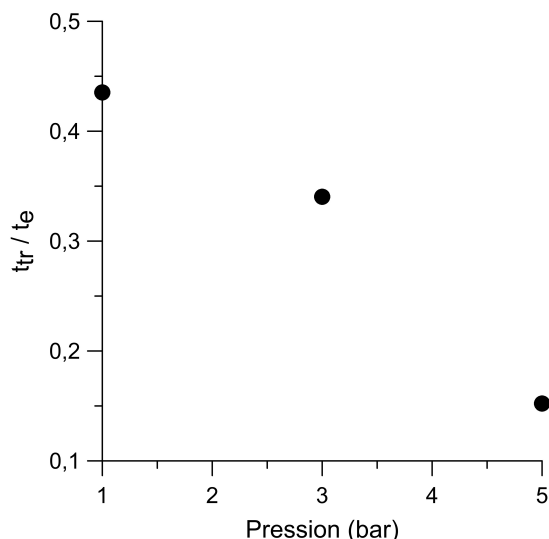


FIGURE 5.40 – Évolution de la durée relative avant expansion de la couche de passivation pour des gouttes d'aluminium chauffées dans le CO en fonction de la pression.

modification significative de l'intensité lumineuse (Fig. 5.38 (b) 5-6). Selon le niveau d'intensité auquel se déclenche le développement de cette couche et au vu de l'absence de réactions en surface, ce mécanisme peut être possiblement attribué à la solidification de l'alumine enrobant initialement la particule. Bien qu'une réflexion similaire puisse alors être proposée pour la phase identifiée à 3 bar dans le CO pur (Fig. 5.37 (a) 4-6), une différence notable reste évidente sur les profils d'émission mesurés avec un pic d'intensité relativement marqué dans le cas du CO.

Le seuil d'extinction laser a également été modulé pour modifier la durée de la phase de chauffage et analyser l'influence de l'apport énergétique initial. Cette démarche a permis de montrer qu'une énergie minimale est nécessaire pour initier les différents phénomènes de surface. Notamment, lorsque le laser est désactivé avant que la température n'atteigne le point de fusion de l'alumine, la surface de la goutte reste partiellement couverte (rétraction incomplète de la couche passive naturelle) et, de manière analogue

aux essais réalisés dans un environnement inerte, l'émission des gouttes diminue ensuite rapidement.

Les observations faites ainsi que l'effet constaté de la pression à la fois sur la dynamique des mécanismes visibles et sur l'intensité radiative soutiennent l'hypothèse d'un régime de combustion limité à des réactions hétérogènes de surface. Cela peut s'expliquer par l'énergie de liaison considérable existante entre les atomes de la molécule de CO qui est par exemple significativement plus élevée que celle du CO₂ (Glockler [1958]), réduisant la disponibilité en oxygène et inhibant l'établissement de réactions en phase vapeur. Les phénomènes d'agglomération identifiés entre le lobe d'alumine initial et les îlots formés en surface de la goutte (Fig. 5.37 (a) 4-6 et Fig. 5.38 (a) 3-6) suggèrent que la phase produite a probablement une composition chimique similaire à celle de l'alumine liquide issue de la fusion de la couche passive naturelle. D'autre part, ce postulat corrobore les mesures de Bucher et al. [1999] qui indiquent que des éléments Al et O ont été détectés près de la surface des gouttes dans des proportions stœchiométriques alors qu'aucun composé carboné n'a été identifié dans cette zone. À l'inverse, la couche formée en fin de réaction à basse pression semble avoir une composition différente. En effet, le lobe formé durant la réaction subsiste en surface de la goutte malgré l'expansion de la couche de passivation (Fig. 5.37 (a) 7-8), suggérant que ces éléments ne sont a priori pas miscibles. De plus, le processus menant à l'établissement de la couche sur l'ensemble de la surface de la goutte est différent de celui rapporté concernant l'agrégat d'oxyde constitué. Ainsi, par analogie avec les résultats de Rossi et al. [2001] qui ont mis en évidence la présence d'oxycarbures complexes en fin de réaction dans le CO₂, la formation de cette couche peut résulter d'une transition de phase dans le système Al-O-C induite par une diminution de la température des particules. Ce type de scénario suppose donc que le dégagement de chaleur des mécanismes de surface est insuffisant pour permettre le maintien de la température requise pour l'entretien du processus. En ce sens les résultats de la figure 5.40 impliquent que la pression favorise le refroidissement des gouttes. Enfin, indépendamment des conditions de pression, une quantité importante d'aluminium semble rester imbrûlée après réaction dans le CO pur. Cependant, les particules ne pouvant être collectées après essais, une analyse chimique détaillée reste nécessaire pour compléter cette étude.

5.4.3 Bilan

La combustion de l'aluminium a été analysée à pression variable dans des milieux oxydants contenant uniquement du dioxyde de carbone ou du monoxyde de carbone. Des aspects phénoménologiques ont été détaillés et des données quantitatives ont notamment été proposées pour le cas du CO₂. Dans l'ensemble, les résultats permettent alors d'améliorer les connaissances établies sur le rôle des espèces oxydantes représentatives de l'environnement réactif des particules d'aluminium au sein des MPS.

Tout d'abord, les régimes de combustion identifiés en atmosphère CO₂ et en atmosphère CO sont sensiblement différents. Dans le CO₂, la réaction s'établit en phase vapeur de manière auto-entretenu tandis que dans le CO, sans apport énergétique extérieur, la combustion est limitée à des réactions de surface hétérogènes. Cependant, indépendamment de la nature de l'oxydant ici considéré, les observations démontrent que l'accumulation d'oxyde en surface de la goutte reste un processus immuable, y compris sous pression. En CO₂ pur, le développement du lobe est progressif (contrairement au développement du lobe dans l'air) et conduit au recouvrement de la goutte dans son intégralité après une régression significative de son diamètre. Le rôle potentiel des

réactions de surface dans ce processus a été mis en évidence durant la phase de chauffage par les images obtenues en visualisation directe, néanmoins, la contribution de ces mécanismes est visiblement limitée pendant la phase de combustion en régime de diffusion. En cohérence avec les résultats documentés de la littérature, le postulat exprimé suppose que les réactions hétérogènes interviennent uniquement lors des phases de combustion à des températures relativement faibles (phase de chauffage et phase d'extinction) où les conditions permettent la diffusion des espèces gazeuses oxygénées jusqu'à la surface de la goutte malgré leur forte réactivité qui, lorsque la réaction est établie en phase vapeur à haute température, restreint l'apport de ces dernières jusqu'à la particule. D'autre part, concernant le processus d'accumulation d'oxyde, les observations ne relèvent aucun indicateur visible du transport de produits condensés submicroniques depuis la flamme mais interrogent parallèlement sur les effets aérodynamiques suscités par la présence localisée du lobe en surface de la goutte. Comparativement au N_2 , l'analyse menée dans le CO pur atteste du rôle prédominant des réactions hétérogènes qui induisent la formation progressive d'îlots condensés (probablement des oxydes) en surface de la goutte. De plus, certains phénomènes observés à basse pression suggèrent que des transitions de phase sont potentiellement initiées dans le système Al-O-C, entraînant la formation d'une couche de passivation qui recouvre la totalité de la goutte en fin de réaction. Finalement, l'influence de la pression peut aussi être remarquée dans l'ensemble des cas, se traduisant essentiellement par une modification visible de l'aspect du lobe dans le CO_2 et par un effet notoire sur la dynamique des mécanismes surfaciques dans le CO. Des données complémentaires sur l'évolution de la température et de la composition chimique des gouttes durant la réaction ainsi que des informations additionnelles sur les changements de phase du système Al-O-C demeurent nécessaires pour parvenir à une compréhension d'ensemble de la phénoménologie de combustion de l'aluminium dans ces oxydants.

Les mesures quantitatives réalisées en atmosphère CO_2 montrent que l'évolution du temps de combustion des gouttes en fonction de D_0 peut être décrit par une loi du type $t_c \propto D_0^{1.92}$. Par ailleurs, un effet limité de la pression sur le temps de combustion est constaté tel que $t_c \propto P^{-0.1}$. Aucun effet notable de la pression n'a cependant été identifié sur le taux de régression des gouttes et l'utilisation de la loi D^2 expérimentale pour déterminer le temps de combustion des particules doit être relativisée pour les pressions les plus élevées. L'hypothèse d'une quantité importante d'aluminium imbrûlée étant de nouveau peu probable ici, des phénomènes encore incompris ou méconnus interviennent donc vraisemblablement après la transition de régime, modifiant ainsi la dynamique de combustion attendue.

5.5 Combustion de l'aluminium en mélanges CO_2 -CO- N_2

Dans cette dernière partie, l'analyse de la combustion de l'aluminium avec les espèces oxydantes CO_2 et CO est étendue. Le processus de réaction des particules métalliques est alors caractérisé dans différents mélanges oxydants CO_2/CO et CO_2/N_2 afin de proposer des résultats originaux dans des atmosphères dont la composition est partiellement représentative de celle générée par la combustion des propergols solides. Par ailleurs, dans le but d'inscrire ces travaux dans un cadre plus général, des résultats seront également présentés sur la combustion des gouttes d'aluminium dans des mélanges CO_2/O_2 . Ainsi, avec une approche identique aux parties précédentes, la phénoménologie de réaction sera tout d'abord présentée pour l'ensemble des cas étudiés puis les mesures réalisées sur les paramètres de combustion seront introduites. Certains aspects phénoménologiques d'ores et déjà discutés seront ici particulièrement mis en évidence et les

données rassemblées permettront notamment de quantifier précisément la contribution respective des espèces étudiées dans le processus global. Enfin, une nouvelle corrélation empirique décrivant le temps de combustion des gouttes d'aluminium sera finalement établie, concrétisant la pertinence de la base de données constituée à travers cette étude.

5.5.1 Aspects phénoménologiques

Les figures 5.41, 5.42 et 5.43 introduisent les séquences de combustion ainsi que les empreintes lumineuses (PM) de particules d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/CO , CO_2/N_2 et CO_2/O_2 avec des proportions variables de CO_2 . Dans l'ensemble, différentes phénoménologies peuvent alors être identifiées selon les espèces en présence et la teneur en dioxyde de carbone.

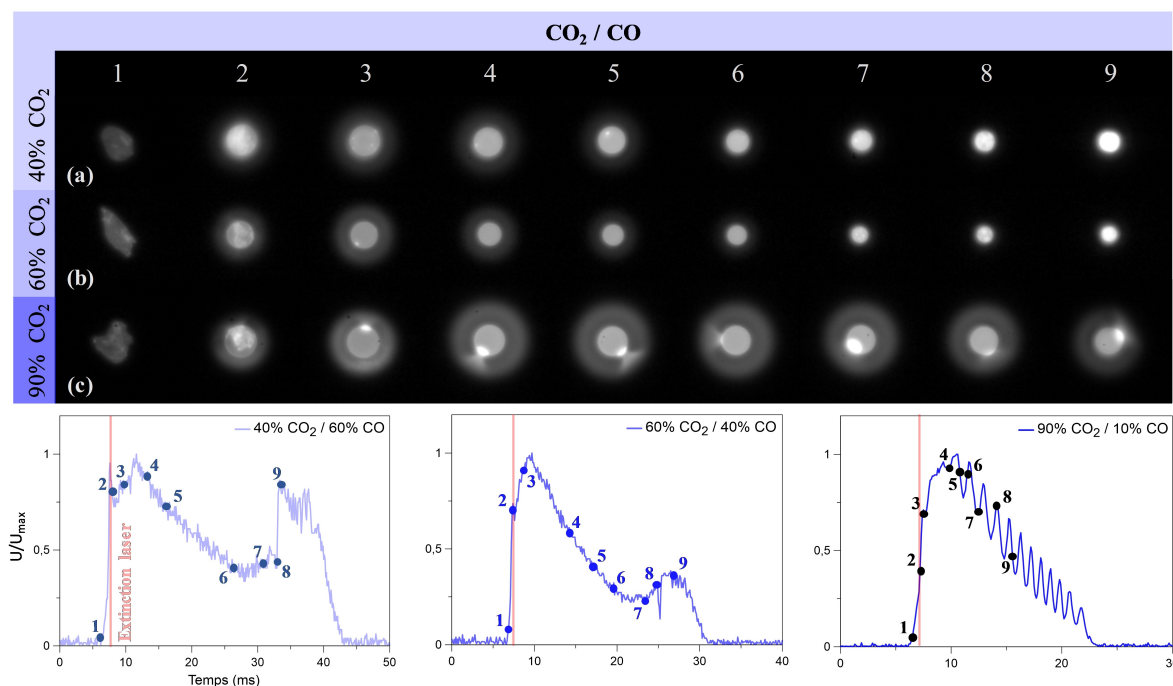


FIGURE 5.41 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/CO à pression atmosphérique et évolution normalisée des signaux PM correspondants. (a) % CO_2 = 40% / D_0 = 68 μm - (b) % CO_2 = 60% / D_0 = 61 μm - (c) % CO_2 = 90% / D_0 = 73 μm .

Tout d'abord, l'analyse de la combustion de l'aluminium en CO_2/CO et en CO_2/N_2 indique que les processus réactionnels présentent certaines similitudes (Fig. 5.41 et Fig. 5.42). Dans ces cas, pour de forts taux de CO_2 (% $\text{CO}_2 \geq 80\%$), la réaction s'établit en phase vapeur de manière auto-entretenu et la phénoménologie semble globalement correspondre à celle d'ores et déjà constatée en CO_2 pur dans la partie 5.4.1. La taille du lobe initial croît progressivement en surface de la goutte sans qu'aucun phénomène manifeste ne puisse visiblement l'expliquer (Fig. 5.41 (c) et Fig. 5.42 (c)), de plus, les signaux PM relevés sont par ailleurs semblables à celui présenté précédemment sur la figure 5.29, présentant des fluctuations caractéristiques mais ne traduisant aucune variation singulière de l'intensité lumineuse qui diminue alors graduellement jusqu'à la fin de la réaction. Ainsi, le processus d'extinction est donc attendu pour être également similaire à celui observé en CO_2 pur avec un encapsulage total de la goutte résultant de l'expansion du lobe d'oxyde (Fig. 5.30).

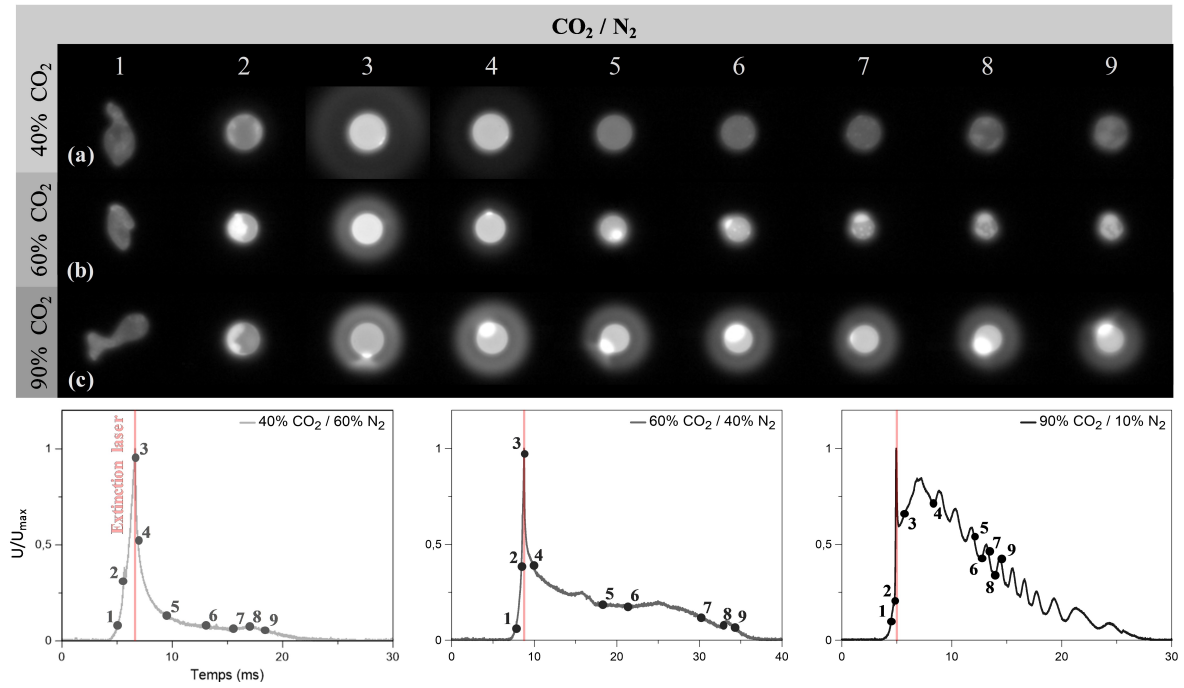


FIGURE 5.42 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/N_2 à pression atmosphérique et évolution normalisée des signaux PM correspondants. (a) % CO_2 = 40% / D_0 = 83 μm - (b) % CO_2 = 60% / D_0 = 71 μm - (c) % CO_2 = 90% / D_0 = 78 μm .

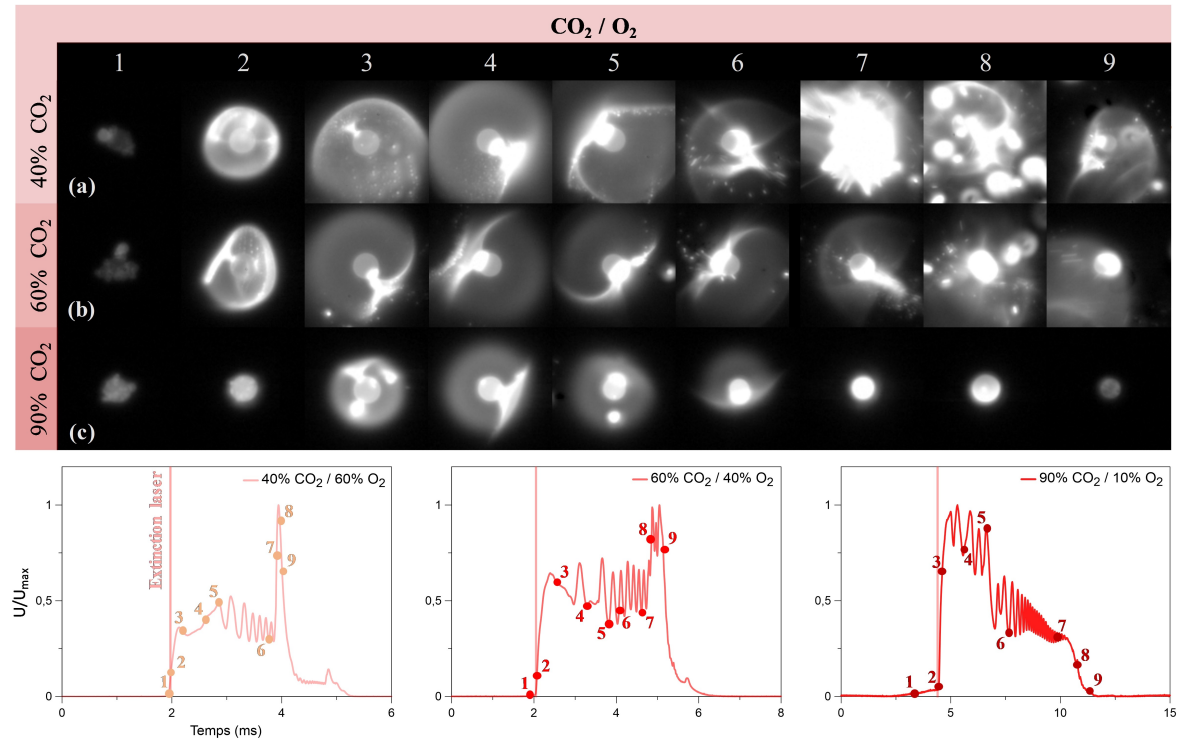


FIGURE 5.43 – Séquences de combustion caractéristiques de particules d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/O_2 à pression atmosphérique et évolution normalisée des signaux PM correspondants. (a) % CO_2 = 40% / D_0 = 60 μm - (b) % CO_2 = 60% / D_0 = 62 μm - (c) % CO_2 = 90% / D_0 = 54 μm .

Pour des taux de CO ou de N_2 relativement importants (% $\text{CO}_2 \leq 60\%$), les observations (images et PM) relatent des modifications notables du processus de combustion.

Dans ces conditions, les zones d'émission caractéristiques d'une flamme de diffusion ne sont plus perçues distinctement après l'extinction laser et seul un halo lumineux visuellement uniforme demeure autour de la goutte (Fig. 5.41 (a) 3 / (b) 3 et Fig. 5.42 (a) 4 / (b) 4). Ensuite, la flamme se rapproche davantage de la goutte et devient par la suite quasiment indiscernable (Fig. 5.41 (a) 4-6 / (b) 4-6 et Fig. 5.42 (a) 5 / (b) 5). A ce stade, des mécanismes hétérogènes sont initiés et des îlots condensés émergent en surface de la goutte (Fig. 5.41 (a) 6-8 / (b) 7-8 et Fig. 5.42 (a) 6-7 / (b) 5-6), laissant supposer une transition du mode de combustion (diffusion/hétérogène de surface). Dans le but d'apporter des éléments quantitatifs, la dynamique du processus de réaction en milieu CO_2/CO et CO_2/N_2 a été caractérisée. En ce sens, avec une démarche similaire à celle précédemment présentée dans les parties 5.2.2 et 5.3.1, la durée de la phase avant transition de mode t_{tr} et la valeur du diamètre de la goutte D_{tr} lors de l'initiation des réactions de surface ont été respectivement comparées au temps de réaction total t_c et au diamètre initial des gouttes D_0 . Les résultats sont ainsi présentés sur les graphiques de la figure 5.44. Pour les cas considérés, le rapport t_{tr}/t_c est relativement constant, ne dépendant donc pas a priori des proportions de CO_2 dans ces mélanges et, parallèlement, le diamètre relatif des gouttes avant transition diminue lorsque la teneur en CO_2 augmente. Comparativement, les réactions hétérogènes de surface sont initiées de manière anticipée en atmosphère CO_2/N_2 et le diamètre de la goutte avant transition est plus important dans ces conditions. Plus précisément, la période avant transition de mode représente en moyenne 58% du temps de réaction global en environnement CO_2/CO et 37% en CO_2/N_2 et, indépendamment du mélange réactif, le diamètre des gouttes régresse relativement peu avant le déclenchement des mécanismes surfaciques, réduisant au maximum de 32% en CO_2/CO et de 14% en CO_2/N_2 . Au travers des résultats rassemblés, il est aussi intéressant de constater que la transition de mode n'est pas systématiquement initiée pour un diamètre de goutte donné.

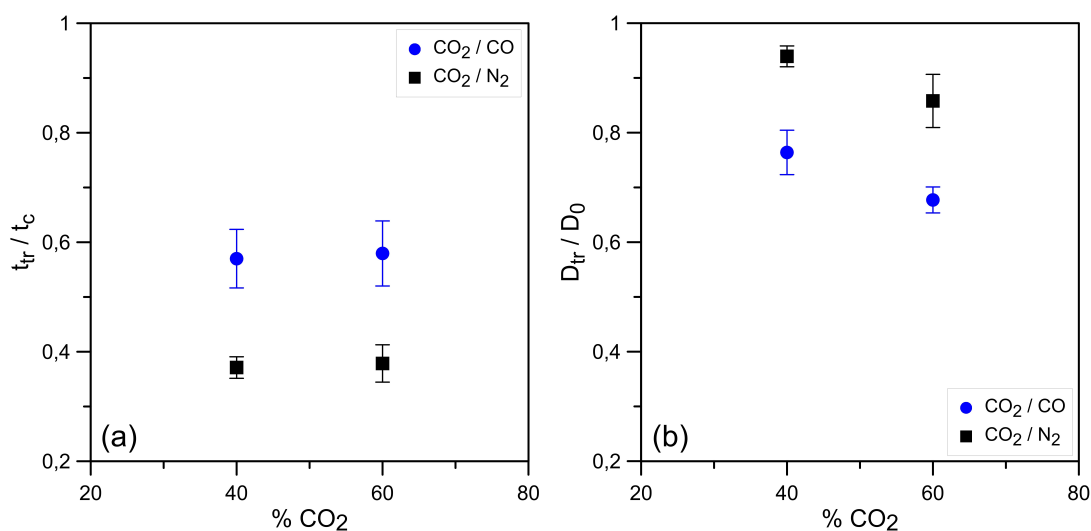


FIGURE 5.44 – Évolution de la dynamique du processus de combustion des gouttes d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/CO et CO_2/N_2 en fonction des proportions de CO_2 . (a) Durée relative de la phase en mode de diffusion - (b) Diamètre relatif des gouttes avant transition de mode.

Ainsi, pour le cas des particules d'aluminium réagissant en milieu en CO_2/CO pour des proportions relativement faibles de CO_2 ($\% \text{CO}_2 \leq 60\%$), la flamme s'établit de manière autonome après la coupure du laser (Fig. 5.41 (a) 2-3 / (b) 2-3) puis la phase en régime de diffusion persiste sur un intervalle de temps relativement long (Fig. 5.44 (a)) durant lequel le diamètre des gouttes régresse de manière perceptible (Fig. 5.41

(a) 3-6 / (b) 3-6 et Fig. 5.44 (b)). La phase en mode de diffusion est alors caractérisée par une décroissance progressive des émissions globales. Après la transition vers un mode de combustion hétérogène, le diamètre des gouttes n'évolue visiblement plus et la production d'éléments condensés se traduit par une stabilisation de l'intensité lumineuse (Fig. 5.41 (a) 6-7 / (b) 7). Finalement, les mécanismes de surface conduisent à la formation soudaine d'une couche émissive sur la totalité de la surface de la goutte avant extinction (Fig. 5.41 (a) 8-9 / (b) 8-9) et la fin du processus de réaction correspond alors sensiblement à la phénoménologie identifiée à basse pression en CO pur dans la partie 5.4.2 (Fig. 5.37). En atmosphère CO_2/N_2 fortement diluée ($\% \text{CO}_2 \leq 60\%$) les observations montrent un comportement similaire à celui décrit en mélange CO_2/CO bien que certains aspects soient nuancés. Dans ces conditions, le processus est modulé selon le taux de dilution. En effet, lorsque la fraction de N_2 est de 60%, l'intensité lumineuse PM décroît instantanément après la coupure laser (Fig. 5.42 (a) 3-4) et la flamme n'est rapidement plus visible, suggérant que la zone de réaction s'établit en proche surface ou que le mode de diffusion n'est pas entretenu sans apport énergétique extérieur. Par ailleurs, le diamètre des gouttes réduit peu lors de cette phase (Fig. 5.44 (b)) et en finalité le mode de combustion reste dans ce cas difficilement déterminable. Malgré tout, la production d'éléments condensés en surface de la goutte est ensuite initiée, néanmoins, les images montrent ici que la production d'éléments condensés semble contenue et le signal PM diminue d'ailleurs continuellement durant cette période (Fig. 5.42 (a) 5-7). À l'inverse, pour une proportion de N_2 réduite à 40%, la phase vapeur est brièvement maintenue après l'extinction du laser (Fig. 5.42 (a) 4) et le diamètre de la goutte régresse davantage (Fig. 5.42 (a) 4-5 et Fig. 5.44 (b)). Par la suite, après transition de mode, la pente de l'intensité lumineuse est visiblement modifiée (redressement et stabilisation) et la formation de produits condensés paraît plus soutenue, l'agglomération des îlots formés conduisant en outre à un grossissement progressif du lobe d'oxyde initial (Fig. 5.42 (b) 5-7). Dans ce cas, les réactions hétérogènes sont donc manifestement entretenues et potentiellement exothermiques. Pour autant, le potentiel radiatif décroît ensuite progressivement, suggérant que la cinétique des mécanismes surfaciques est restreinte, voire inhibée, et la production d'éléments condensés est par conséquent interrompue (Fig. 5.42 (b) 7-8). Indépendamment de la teneur en N_2 pour les mélanges CO_2/N_2 considérés ici ($\% \text{N}_2 \geq 40\%$), une couche de passivation se forme alors à la fin du processus de combustion sur la surface de la particule qui est finalement majoritairement recouverte (Fig. 5.42 (a) 8-9 / (b) 8-9). Contrairement aux cas en milieu CO_2/CO , seule une augmentation modérée du rayonnement est constatée lors de l'émergence de la couche avant extinction, de plus, une quantité non négligeable d'aluminium demeure assurément imbrûlée en mélange CO_2/N_2 . La composition des résidus de combustion est donc probablement différente selon les espèces présentes dans le mélange réactif.

D'autre part, il est à noter que la taille initiale des particules semble également conditionner les mécanismes impliqués dans le processus de combustion en atmosphère CO_2/N_2 . Ainsi, comme le montrent les signaux PM illustrés sur la figure 5.45 pour des mélanges contenant 40% de N_2 , une différence peut être constatée quant à l'évolution de l'intensité lumineuse selon le diamètre initial de goutte considéré. Les observations rapportées pour les plus faibles valeurs de D_0 sont alors similaires à celles faites en mélange CO_2/N_2 avec 60% de N_2 où la cinétique de surface semble restreinte et où l'énergie radiative décroît de manière continue. D'après l'ensemble des résultats obtenus, le diamètre initial seuil à partir duquel cette transition est perceptible se situe entre 42 et 59 μm . Par extension, il est envisageable qu'un tel effet puisse être attendu pour un taux de N_2 de 60%, cependant, aucun changement significatif n'a été constaté dans ces conditions et les réactions visibles restent limitées, y compris pour des particules de

diamètre initial supérieur à $80\text{ }\mu\text{m}$. Enfin, cet aspect n'a pas été identifié en milieu CO_2/CO où le processus de combustion est vraisemblablement inchangé jusqu'à des gammes de diamètre initial inférieures à $40\text{ }\mu\text{m}$.

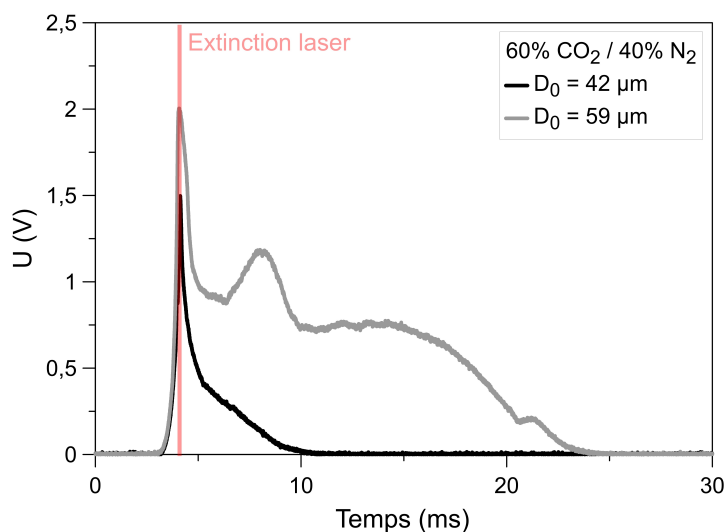


FIGURE 5.45 – Évolution de l'intensité lumineuse PM pour des gouttes d'aluminium de différent diamètre initial D_0 réagissant dans des mélanges CO_2/N_2 avec 60% de CO_2 .

L'étude de la combustion des particules d'aluminium en mélange CO_2/CO et CO_2/N_2 présente donc des aspects nouveaux, la transition de mode n'ayant pas été observée en l'état dans les conditions préalablement analysées. Selon les observations, la chaleur de réaction issue de la combustion est donc dans certains cas insuffisante pour initier ou entretenir durablement le processus de combustion en phase vapeur sans apport calorifique extérieur. Néanmoins, l'existence de cette transition de mode interroge quant aux différentes hypothèses qui pourraient expliquer que la phase vapeur ne puisse subsister sur l'ensemble du processus réactionnel. En effet, malgré que l'efficacité oxydante du CO_2 soit relativement faible, l'initiation et le maintien transitoire du mode de diffusion observé en atmosphère CO_2/CO et CO_2/N_2 appauvrie en CO_2 ($\% \text{CO}_2 \leq 60\%$) indique que la composition du mélange réactif permet a priori d'entretenir la réaction en phase vapeur, suggérant donc que des mécanismes annexes restreignent ensuite possiblement l'énergie disponible pour la vaporisation de la goutte. En considération des différentes espèces intervenant ici dans les mécanismes réactionnels, plusieurs aspects peuvent alors être envisagés. Des réactions gazeuses dans les systèmes Al-O-C ou Al-O-N peuvent potentiellement être initiées et être moins exothermiques que la réaction purement Al-O, voire endothermiques pour le cas de la formation des composés NO, AlN et AlC (Stull and H. Prophet [1971]). Bien qu'aucun phénomène surfacique ne soit identifié en mode de diffusion, les résultats de Muller [2019] renseignent quant à un effet possible de l'adsorption du CO sur la production des intermédiaires gazeux AlO, ce qui pourrait susciter une réduction de la cinétique en phase vapeur. Par ailleurs, de tels effets pourraient être discutés concernant l'éventuelle adsorption du NO. Ainsi, l'équilibre énergétique des réactions en mélange CO_2/CO et CO_2/N_2 ($\% \text{CO}_2 \leq 60\%$) étant initialement fragile, ce type de réaction pourrait donc effectivement conduire à une réduction progressive de la température de la goutte et à la transition de mode observée, notant que le CO demeure favorable pour l'entretien de la phase vapeur comparativement au N_2 . Cette dynamique supposée serait alors en cohérence avec les informations relatives aux signaux PM qui montrent que les réactions de surface sont initiées à un niveau d'intensité lumineuse identique et répétable pour un mélange réactif

donné. Par analogie, ce seuil correspond probablement à la température limite en dessous de laquelle le temps caractéristique de la cinétique chimique devient considérable par rapport au temps caractéristique de diffusion. Les réactions deviennent par conséquent localisées en surface de la goutte où l'aluminium liquide réagit avec les espèces gazeuses disponibles. Notamment, le processus surfacique remarqué en fin de combustion en mélange CO_2/CO (Fig. 5.41) suggère une contribution notable du CO. Enfin, l'existence d'un diamètre minimal requis pour initier dans certains cas le mode de diffusion pourrait également retranscrire la théorie liée au critère de Damköhler.

En comparaison des cas en CO_2/CO et CO_2/N_2 (Fig. 5.41 et Fig. 5.42), les observations faites en milieu CO_2/O_2 (Fig. 5.43) mettent en évidence un contraste attendu. Tout d'abord, pour des proportions équivalentes de CO_2 , la figure 5.46 qui présente l'évolution du diamètre relatif de la flamme par rapport à celui de la goutte démontre que l'étendue de la zone de réaction est supérieure lorsque le dioxyde de carbone est combiné au dioxygène. De plus, contrairement aux effets constatés du CO et du N_2 , l'ajout de O_2 en mélange CO_2/O_2 contribue à accroître la quantité D_f/D_p , y compris pour les plus faibles fractions de O_2 considérées ($\% \text{O}_2 = 10\%$). Parallèlement, la phénoménologie de combustion est inéluctablement modifiée lorsque le O_2 se substitue au CO et au N_2 , notamment pour les cas où la teneur en CO_2 est relativement réduite ($\% \text{CO}_2 \leq 60\%$). De manière générale, pour l'ensemble des atmosphères CO_2/O_2 étudiées, la combustion d'une particule d'aluminium conserve vraisemblablement des caractéristiques phénoménologiques similaires. En substance, le processus consiste une nouvelle fois en l'accumulation d'oxyde centralisée au niveau du lobe initial qui mène au recouvrement progressif de la goutte et à l'extinction, la teneur en O_2 modulant la dynamique du processus de recouvrement. Comme l'illustrent les images de la figure 5.43, des phénomènes d'inclusion gazeuse (Fig. 5.43 (c) 7-9) et de micro-explosion (Fig. 5.43 (a) 7-8 / (b) 8) sont observés en fin de réaction avant extinction. Comme évoqué précédemment dans la partie 5.3.1, la micro-explosion se traduit alors par une éjection spontanée de la couche d'oxyde constituée en surface de la goutte, la particule en réaction étant d'ailleurs ensuite encore visible (Fig. 5.43 (a) 9 / (b) 9). L'analyse des séquences dynamiques de combustion en mélange CO_2/O_2 s'avère être néanmoins particulièrement instructive, permettant d'identifier plus explicitement les mécanismes potentiellement impliqués dans le développement du lobe. En effet, dans l'ensemble des cas, une zone d'émission spécifique s'établit entre la flamme et le lobe d'oxyde en surface de la goutte (Fig. 5.43 (a) 3-5 / (b) 3-5 / (c) 3-4), rappelant les observations faites en mélange oxydant contenant de fortes proportions de O_2 et en CO_2 pur dans les parties 5.3.1 (Fig. 5.21) et 5.4.1 (Fig. 5.29). Bien que cela soit difficilement interprétable au travers des images proposées sur la figure 5.43, il apparaît sur les séquences vidéo que cette zone résulte de la canalisation d'une partie des produits condensés contenus dans la flamme vers le lobe en surface de la goutte. Le lobe semble donc induire une attraction visible sur les particules submicroniques dont la mise en mouvement a été distinctement visualisée, la zone située à l'aplomb du lobe constituant alors manifestement une voie d'acheminement préférentielle.

Des séquences d'images complémentaires en mélange CO_2/O_2 sont présentées sur les figures 5.47, 5.48 et 5.49 pour illustrer des aspects phénoménologiques pertinents. Plus particulièrement, ces séquences mettent en évidence la contribution des mécanismes de transport des produits condensés et celui du lobe présent en surface de la goutte. La figure 5.47 précise davantage le processus observé sur les séquences de la figure 5.43, détaillant l'établissement de la zone d'échange entre la goutte en réaction et sa flamme. Ainsi, après allumage, le lobe d'oxyde se forme immédiatement en surface de la goutte avec ici une taille relativement conséquente (Fig. 5.47 1-4). Puis, des éléments condensés

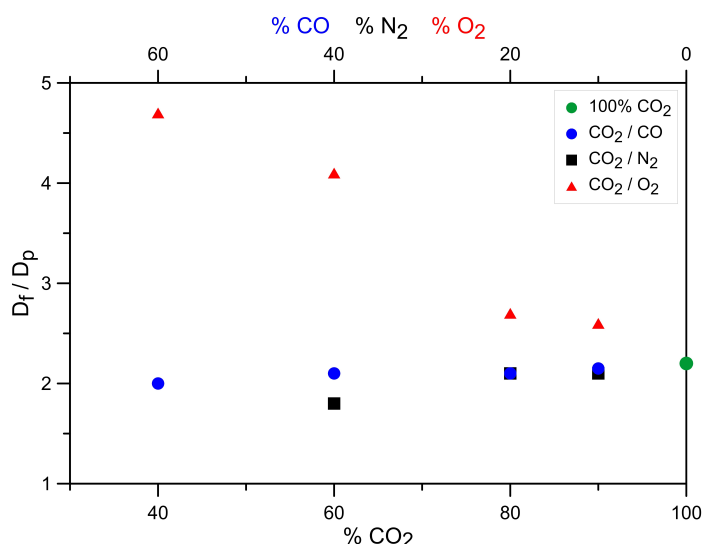


FIGURE 5.46 – Évolution du rapport D_f/D_p pour des gouttes d'aluminium réagissant dans des mélanges CO_2/CO , CO_2/N_2 et CO_2/O_2 en fonction des proportions de CO_2 .

se concentrent localement en périphérie de la zone de réaction et des particules submicroniques migrent vers le lobe en surface de la goutte (Fig. 5.47 5). Ce phénomène conduit à la formation progressive d'une structure spécifique dont l'aspect traduit possiblement la présence d'effets aérodynamiques (Fig. 5.47 6). Lorsque la liaison entre le lobe et cette structure est établie, la luminosité de la zone de réaction évolue localement de manière instantanée, suggérant une augmentation de la concentration en produits condensés à la frontière extérieure de la flamme (Fig. 5.47 7). De nouveau, les particules submicroniques sont ensuite visiblement transportées vers la zone d'attraction dont l'étendue croît rapidement (Fig. 5.47 8). Résultant de l'accumulation des éléments condensés ainsi déposés, le développement du lobe est également perceptible (Fig. 5.47 8) et, la liaison flamme/lobe subsistant (Fig. 5.47 9-10) malgré une déstructuration prononcée de la zone de réaction, ces mécanismes mènent finalement au processus d'extinction tel que préalablement décrit (Fig. 5.43 (a)). Les figures 5.48 et 5.49 apportent des informations supplémentaires sur les modalités de déclenchement des phénomènes observés en présentant des séquences de combustion singulières. Sur la figure 5.48, des agrégats d'oxyde sont directement formés dans la flamme lors de l'allumage et la taille du lobe initial s'avère être réduite (Fig. 5.48 1). Un des agrégats présents migre alors peu à peu vers une partie non recouverte de la surface de la goutte, notant d'autre part que l'aspect visuel de la flamme est globalement homogène durant cette phase (Fig. 5.48 2-4). L'impact entre l'agrégat et la goutte modifie ensuite sensiblement la stabilité apparente du processus de vaporisation et une phénoménologie semblable à celle illustrée sur la figure 5.47 est initiée, une zone d'échange s'établissant immédiatement entre la particule en réaction et la flamme (Fig. 5.48 5-6). Cette structure se propage et les produits de combustion condensés sont canalisés vers le lobe (Fig. 5.48 7) dont la taille évolue considérablement par la suite (Fig. 5.48 8-10). La figure 5.49 est également intéressante et expose la phénoménologie de réaction d'une goutte dont la surface se retrouve visiblement dépourvue de son lobe initial. Sur cette séquence, une éjection majeure d'oxyde est constatée pendant le développement de la flamme lors de l'allumage et un agrégat d'éléments condensés y est constitué (Fig. 5.49 1). Ce dernier agrège une quantité importante de particules submicroniques et établit une structure d'attraction localisée dans la zone de réaction (Fig. 5.49 2-4). Néanmoins, l'agglomérat formé ici n'entre pas en collision directe avec la goutte et est finalement évacué vers le milieu extérieur (Fig. 5.49

5-6). Par ailleurs, il est à noter que la taille de l'agrégat éjecté est équivalente à celle de la goutte en réaction. Dans ces conditions, l'apparence de la flamme retrouve sans tarder une certaine homogénéité et la surface de la goutte semble être dénuée d'oxyde condensé (Fig. 5.49 7). Par conséquent, le profil d'intensité lumineuse présente également une transition notable entre une phase marquée par une augmentation fluctuante des émissions radiatives et une phase de diminution progressive sans variations. Le processus de vaporisation de la goutte se poursuit alors de manière conventionnelle et la goutte régresse graduellement sans qu'aucun phénomène ne soit relevé par le signal PM avant extinction (Fig. 5.49 7-10).

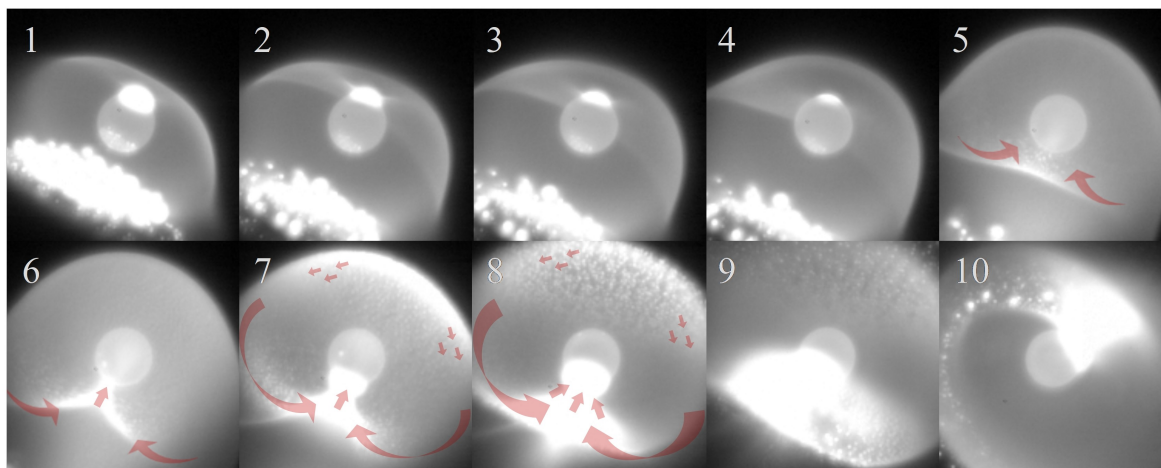


FIGURE 5.47 – Séquence de combustion spécifique d'une particule d'aluminium ($D_0 = 95 \mu\text{m}$) réagissant dans un mélange CO_2/O_2 à pression atmosphérique contenant 60% de O_2 .

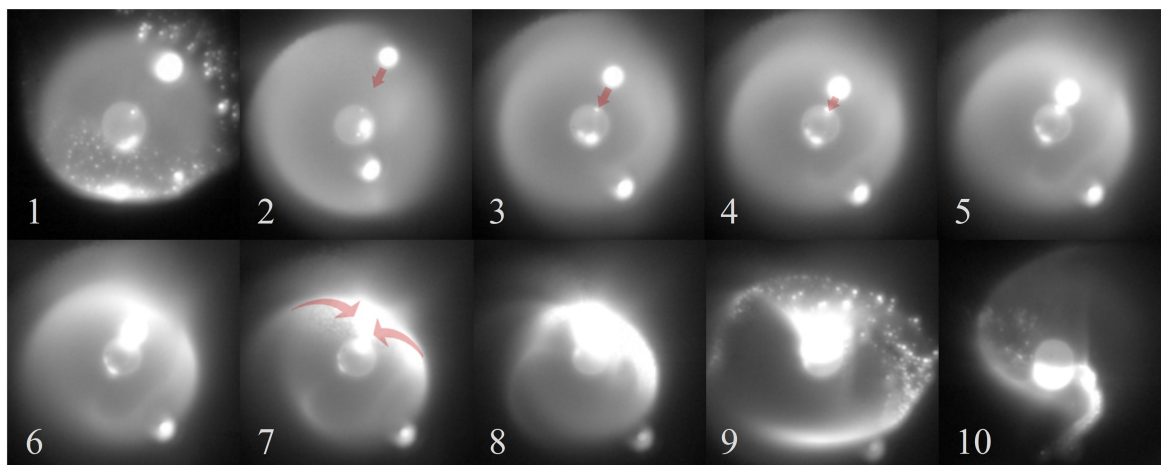


FIGURE 5.48 – Séquence de combustion spécifique d'une particule d'aluminium ($D_0 = 70 \mu\text{m}$) réagissant dans un mélange CO_2/O_2 à pression atmosphérique contenant 40% de O_2 .

L'ensemble des observations corroborent ainsi les hypothèses établies quant à l'existence de phénomènes de thermophorèse et/ou de diffusiophorèse agissant sur les produits de combustion condensés. De plus, ces observations permettent aussi d'identifier les facteurs d'influence potentiels qui seraient impliqués dans ces mécanismes. Tout d'abord, la présence du lobe en surface de la goutte semble être indispensable à l'initiation du transport des produits condensés jusqu'à la particule en réaction. De surcroît, il semble que la taille relative du lobe soit également un paramètre essentiel qui pourrait moduler le déclenchement des mécanismes d'interaction flamme/goutte et donc la

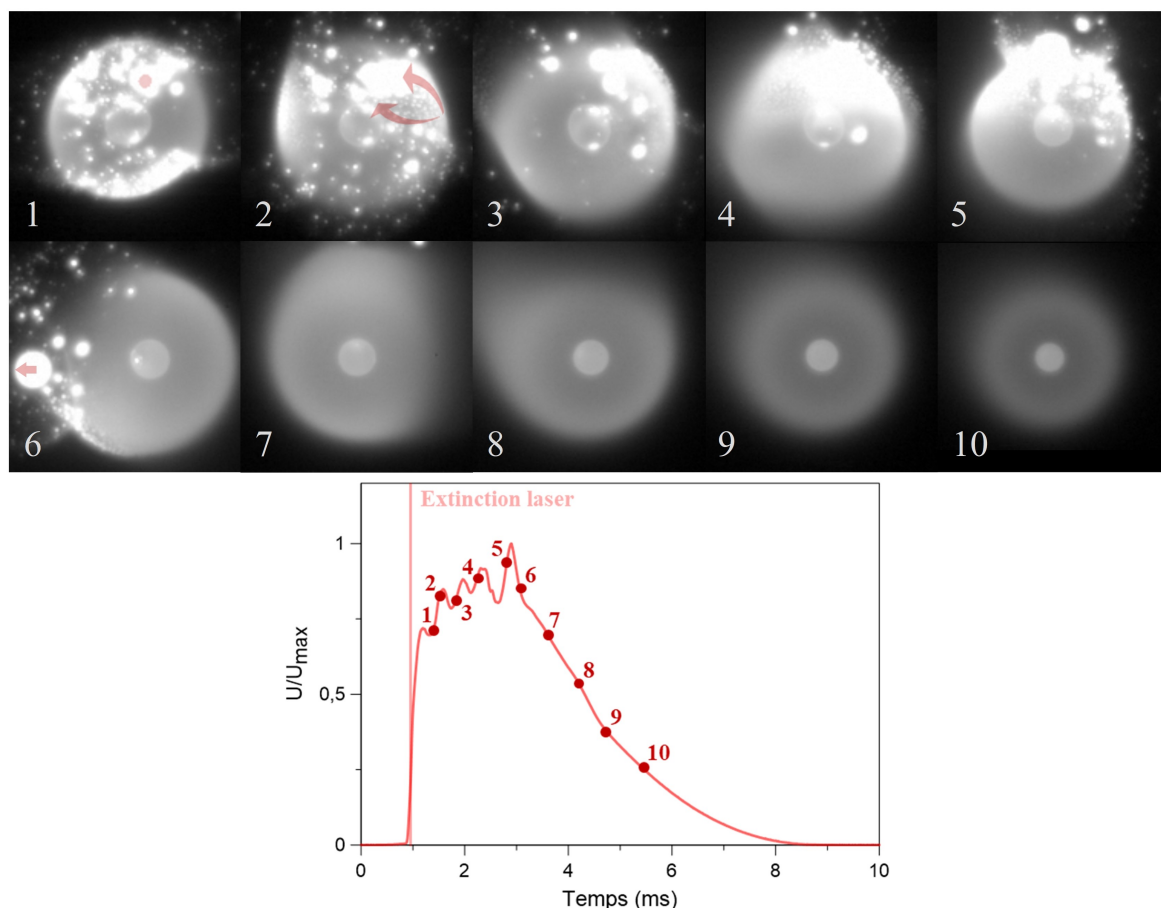


FIGURE 5.49 – Séquence de combustion spécifique d’une particule d’aluminium ($D_0 = 70 \mu\text{m}$) réagissant dans un mélange CO_2/O_2 à pression atmosphérique contenant 40% de O_2 et évolution normalisée des signaux PM correspondants.

dynamique du processus d’accumulation d’oxyde. En effet, sur la figure 5.47, le lobe initial de grande taille génère promptement la mise en place d’un puits de canalisation en lien avec la zone de réaction tandis que ce mécanisme intervient uniquement après l’impact de l’agrégat d’oxyde dans le cas illustré sur la figure 5.48, la taille relative du lobe initial étant ici possiblement trop réduite pour déclencher ce phénomène. Au demeurant, cela interroge d’autre part sur le rôle des réactions de surface notamment observées lors de la phase d’allumage en CO_2 pur sous pression et qui augmenteraient la taille attendue du lobe initial (Fig. 5.34). Enfin, d’après les figures 5.47 (c), 5.48 (c) et 5.49 (c), la dynamique de développement du lobe en mode de diffusion auto-entretenu est aussi impactée par la nature du mélange réactif. Cependant, les espèces chimiques en présence conditionnent plusieurs facteurs dont les effets respectifs sont difficilement qualifiables. Ainsi, la composition du milieu ambiant modifie par exemple les gradients de température en modulant la température de la flamme ou sa position relative par rapport à la goutte et, par ailleurs, les gradients d’espèces liés aux produits condensés sont pour leur part directement dépendants de la distance flamme/goutte et du taux de régression de la goutte qui gouverne en finalité la concentration des particules submicroniques. En ce sens, le lobe d’oxyde constitue une singularité qui altère aussi localement à la fois les gradients de température et d’espèce. La surface du lobe est effectivement pour le moins à une température similaire à celle de la goutte et sa composition chimique est vraisemblablement identique à celle des produits condensés qui s’y accumulent. Cela pourrait d’ailleurs étendre la réflexion précédemment introduite concernant le lobe dont la taille pourrait donc susciter des gradients locaux plus ou moins

considérables. Enfin, au vu de l'aspect visuel de la zone d'interaction flamme/goutte, la contribution des effets aérodynamiques reste également à déterminer, en particulier sur les champs de vitesse ou la distribution de la chaleur et des espèces. Le transport des produits condensés par thermophorèse et/ou diffusiophorèse impliquerait finalement une quantité importante de facteurs. La compréhension inhérente du processus de développement du lobe est par conséquent supposée complexe et l'utilisation d'outils numériques pourrait alors être pertinente pour préciser l'influence de chaque paramètre.

5.5.2 Paramètres de combustion

L'analyse systématique du taux de régression des gouttes et de leur temps de réaction global dans des mélanges oxydants CO_2/CO et CO_2/N_2 permet entre autres d'évaluer la contribution de chaque espèce dans le processus réactionnel. Plus précisément, le CO_2 constituant ici l'élément de référence, il s'agit alors notamment de déterminer dans ces conditions si le CO et le N_2 ont un effet synergique ou inhibiteur. La figure 5.50 présente le taux de régression des gouttes d'aluminium réagissant dans les différents milieux CO_2/CO , CO_2/N_2 et CO_2/O_2 en fonction des proportions du mélange, les barres d'erreur représentant l'écart type de la moyenne des mesures. Tout d'abord, en comparaison du cas en CO_2 pur, l'ajout de monoxyde de carbone altère sensiblement le taux de régression qui réduit de plus de 60% lorsque la fraction molaire de CO est de 60%. Cette tendance montre donc que le CO a un pouvoir oxydant inférieur au CO_2 , agissant pour le moins comme un inerte dans ce mélange réactif. En ce sens, les relations de la loi D^2 (Eq. 5.4 et Eq. 5.5) sont utilisées pour prévoir la tendance de k dans l'éventualité où le CO serait une espèce purement inerte. L'évolution relative des propriétés de l'environnement proche goutte est approximée depuis les données thermochimiques du code CEA pour des mélanges CO_2/CO à haute température et l'énergie de réaction par unité de masse de CO_2 est fixée ici à 11.3 MJ/kg (Rossi et al. [2001]). La valeur expérimentale de k en CO_2 pur ($296 \mu\text{m}^2/\text{ms}$) est alors retenue comme référence et le résultat est finalement illustré sur la figure 5.50. Dans l'ensemble, le taux de régression mesuré expérimentalement semble être inférieur à celui attendu théoriquement avec un écart relatif contenu entre 10% et 30%, suggérant a priori un comportement légèrement inhibiteur du CO.

Ensuite, il est intéressant de constater que le taux de régression est relativement similaire pour des gouttes réagissant en atmosphère CO_2/N_2 , notamment pour des proportions de CO_2 importantes ($\% \text{CO}_2 \geq 80\%$) où l'écart relatif moyen est compris entre 3% et 7% par rapport au cas en CO_2/CO . L'évolution de k pour des taux de dilution supérieurs semblent ensuite diverger. En effet, le taux de régression en milieu CO_2/N_2 contenant 40% de N_2 est plus faible et l'écart constaté par rapport au cas analogue en CO_2/CO devient alors proche de 30%. Ensuite, il a été montré précédemment que la réaction en mode de diffusion n'était pas avérée pour des fractions de N_2 supérieures à 40% et le taux de régression des gouttes n'a donc pas été évalué dans ces conditions, témoignant néanmoins des effets suscités par la présence majoritaire du N_2 sur la vaporisation des gouttes comparativement au CO. En théorie, le diazote et le monoxyde de carbone présentant des propriétés de transport thermique et massique similaires, il était attendu que l'évolution de k pour les mélanges CO_2/N_2 suive la tendance issue de la loi D^2 exposée sur la figure 5.50. Ce constat suggère donc que le N_2 a un effet inhibiteur prononcé dans ces conditions et qu'il entrave probablement le processus de vaporisation, notamment dans des environnements riches en N_2 . Enfin, pour les gouttes en réaction dans des mélanges CO_2/O_2 une augmentation significative du paramètre k est observée quand la teneur en dioxygène augmente. Par rapport au cas en CO_2 pur, le taux de régression croît alors de 160% pour une fraction molaire de O_2 de 60%, confirmant

que l'efficacité oxydante du O_2 est indéniablement supérieure à celle du CO_2 .

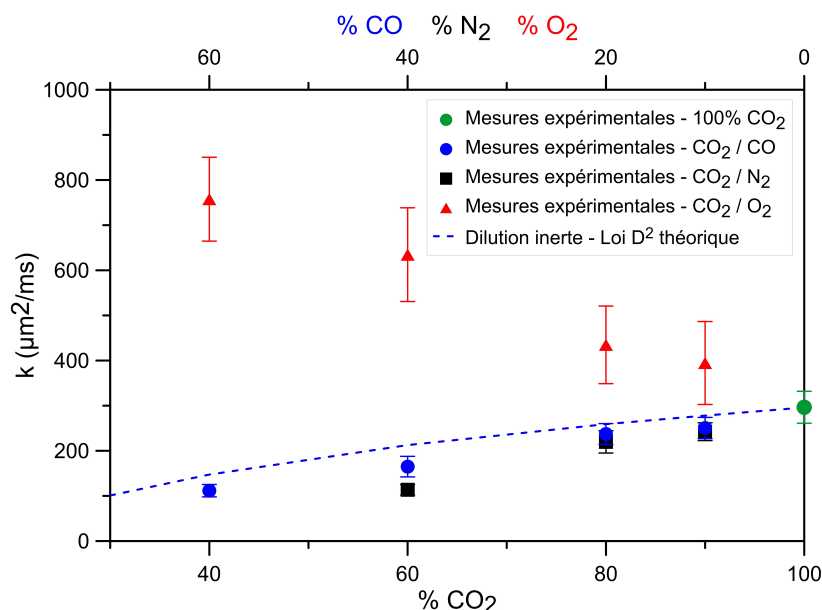


FIGURE 5.50 – Évolution du taux de régression des gouttes d'aluminium en fonction de la fraction molaire de CO_2 et du mélange oxydant.

Les figures 5.51, 5.52 et 5.53 exposent le temps de combustion global t_c des particules d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 pour les différentes conditions analysées. Les courbes extrapolées de la loi D^2 expérimentale sont aussi proposées à titre comparatif ainsi que celles issues de la corrélation empirique de BECKSTEAD. De manière générale, il apparaît que l'évolution de t_c retranscrit celle du paramètre k . L'augmentation de la fraction de CO suscite un accroissement notable du temps de combustion (Fig. 5.51), confirmant que le CO a une efficacité oxydante inférieure à celle du CO_2 . L'écart moyen constaté entre les points de mesure PM et les tendances expérimentales établies par imagerie est de 14%. De nouveau, au regard des incertitudes de mesure relatives à l'estimation de k , la dynamique globale de réaction semble pouvoir être décrite par la loi D^2 expérimentale dans le cas des réactions en milieu CO_2/CO malgré la phénoménologie observée (Fig. 5.41). D'autre part, le CO n'est pas explicitement pris en compte dans la corrélation empirique de Beckstead [2004] qui considère alors le monoxyde de carbone comme un inerte. La relation de BECKSTEAD décrit donc ici l'évolution attendue du temps de réaction global en intégrant uniquement les effets relatifs à la dilution dans un milieu purement oxydant composé de CO_2 . La figure 5.51 compare les prédictions supposées par cette relation aux résultats de cette étude et montre que la corrélation de BECKSTEAD prédit des tendances similaires mais des temps de combustion systématiquement plus longs. L'écart par rapport aux points issus des mesures PM est ici en moyenne de 27% avec une valeur maximale relevée de 52% pour le cas contenant 60% de CO , rappelant que cet écart est proche de 25% dans CO_2 pur. En outre, en considération de l'effet vraisemblablement inhibiteur du CO , les prédictions étaient attendues pour être sensiblement inférieures aux points de mesure PM.

Les mesures de t_c en atmosphère CO_2/N_2 traduisent l'impact des aspects phénoménologiques observés précédemment. L'ajout du N_2 induit alors globalement une augmentation du temps de réaction des gouttes pour un taux de dilution variant de 10% à 40%, cependant, les résultats présentés montrent que la durée d'émission mesurée par PM réduit ensuite pour des proportions de N_2 plus élevées. En réalité, cette apparente diminution s'explique assurément par la réaction incomplète des gouttes et les quantités

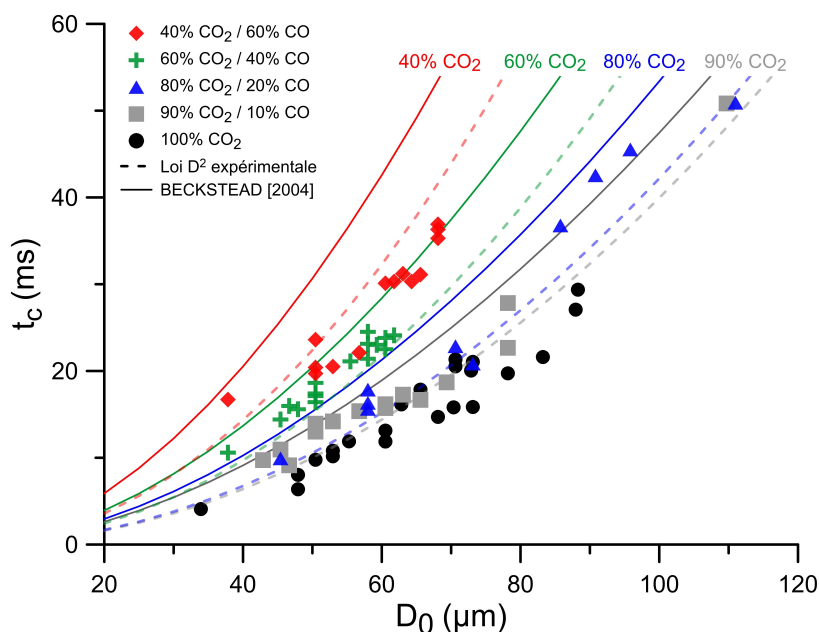


FIGURE 5.51 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 dans des mélanges CO_2/CO .

considérables d'aluminium restant conséquemment imbrûlées en fin de combustion dans ces conditions (Fig. 5.42 (a)). L'effet concernant la combustion incomplète des particules est également discernable en milieux contenant 40% de N_2 , notamment au travers de la comparaison entre les points de mesure PM et les prédictions de la loi D^2 expérimentale correspondante. Ainsi, pour des gouttes d'une taille initiale suffisamment importante pour réagir en mode de diffusion ($D_0 > 50 \mu\text{m}$), l'écart relatif évalué est supérieur à 40% tandis que les valeurs de t_c présentent une cohérence plus satisfaisante avec les lois D^2 expérimentales pour les mélanges incluant moins de 20% de N_2 , présentant un écart relatif inférieur à 10%. De plus, comme précédemment évoqué, cette démarche met aussi en évidence l'existence d'un seuil sur le paramètre D_0 , montrant un écart relatif considérablement accru ($> 100\%$) pour le cas des gouttes ne réagissant pas de manière autonome en phase vapeur ($D_0 < 50 \mu\text{m}$). Par ailleurs, il a alors été démontré que la différence constatée avec la loi D^2 expérimentale pour ce mélange réactif correspond sensiblement à la durée de vaporisation des particules résiduelles visualisées en fin de réaction sur les séquences d'images (Fig. 5.42 (a) 5-9). Parallèlement, considérant le diazote comme une espèce purement inerte, la corrélation de BECKSTEAD retranscrit convenablement la tendance expérimentale pour les mélanges peu dilués ($\% \text{CO}_2 \geq 80\%$) bien que le temps de réaction des gouttes soit globalement surestimé de 20%. Néanmoins, cette relation n'intègre pas les effets résultant de la transition du mode de combustion et les prédictions faites en milieu fortement dilué sont donc moins pertinentes. En particulier, les valeurs supposées lorsque le taux de N_2 est fixé à 60% ne sont aucunement représentatives, suggérant un accroissement marqué du temps de combustion.

L'efficacité oxydante du O_2 est aussi perceptible au travers des résultats sur le temps de combustion des particules en milieu CO_2/O_2 (Fig. 5.53). Les résultats montrent que t_c réduit significativement avec l'augmentation de la fraction molaire de O_2 . Cet effet semble néanmoins rapidement limité pour des concentrations de O_2 supérieures à 40% au-delà desquelles la durée de réaction est similaire à celle mesurée en O_2 pur. Bien qu'elles retranscrivent des tendances analogues, une divergence visible peut être observée entre les courbes extraites des lois D^2 expérimentales (basées sur le traitement d'image) et les

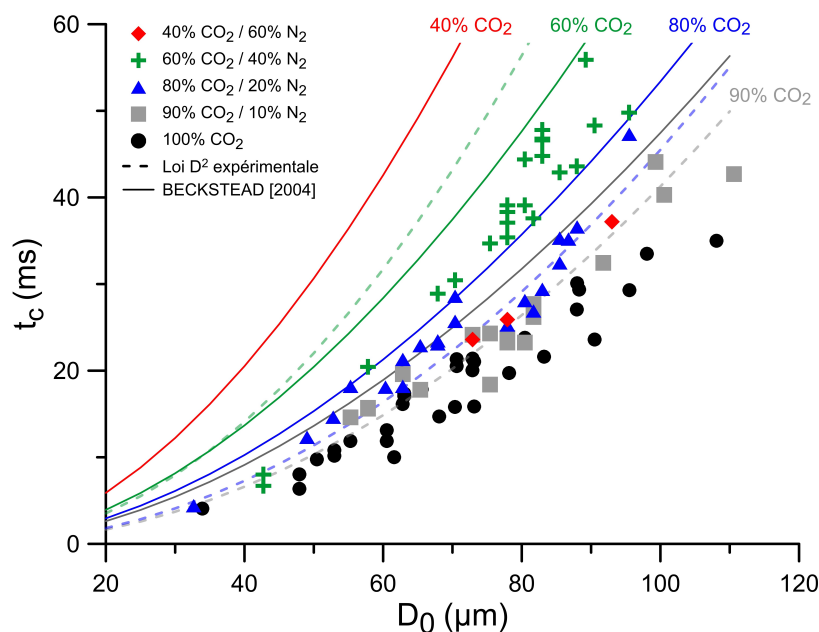


FIGURE 5.52 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 dans des mélanges CO_2/N_2 .

valeurs PM de t_c , en particulier pour des valeurs élevées de D_0 . L'écart estimé par rapport aux points de mesure est relativement faible ($\sim 10\%$) pour des concentrations importantes de CO_2 puis croît ensuite pour les mélanges riches en dioxygène pour atteindre plus de 30% lorsque le taux de O_2 est de 60%. Comme le suggèrent les barres d'erreur sur la figure 5.50, cela peut notamment se justifier par la répétabilité des mesures qui est restreinte pour les mélanges fortement oxydants en raison du temps de réaction réduit et de la régression limitée des gouttes dans le champ caméra. Les séquences relatées sur la figure 5.43 peuvent également expliquer cet écart au vu des phénomènes spécifiques rapportés (recouvrement avivé de la goutte, micro-explosion, etc.). Dans ces conditions, la corrélation de BECKSTEAD reproduit correctement l'évolution de l'efficacité oxydante du mélange mais, de manière absolue, un écart sensible persiste entre les valeurs prédites et les valeurs effectives avec une différence relative moyenne quasi constante de 40%.

Les données rassemblées sur les paramètres de combustion en mélange CO_2/CO , CO_2/N_2 et CO_2/O_2 sont en cohérence avec les observations faites par analyse d'image. Le comportement inhibiteur du CO et du N_2 est a priori vérifié et davantage précisé. Les hypothèses précédemment émises concernant cet aspect sont alors maintenues. Cependant, ces résultats ont également mis en évidence les limites de la corrélation généralisée de BECKSTEAD, illustrant finalement la nécessité d'étendre les connaissances et les données expérimentales existantes. Notamment, il apparaît que les effets relatifs du CO et du N_2 ne sont pas correctement retranscrits sur le temps de combustion global des particules. Il a été démontré ici que la contribution de ces espèces devait effectivement être considérée pour établir des lois de comportement plus représentatives et moins lacunaires, de surcroît dans le cadre pratique des MPS. En ce sens, il convient donc de concrétiser l'utilisation de la base de données constituée dans cette étude pour quantifier plus exactement l'efficacité oxydante du CO_2 ainsi que le potentiel inhibiteur du CO et du N_2 pour les intégrer de manière pertinente dans une nouvelle corrélation empirique.

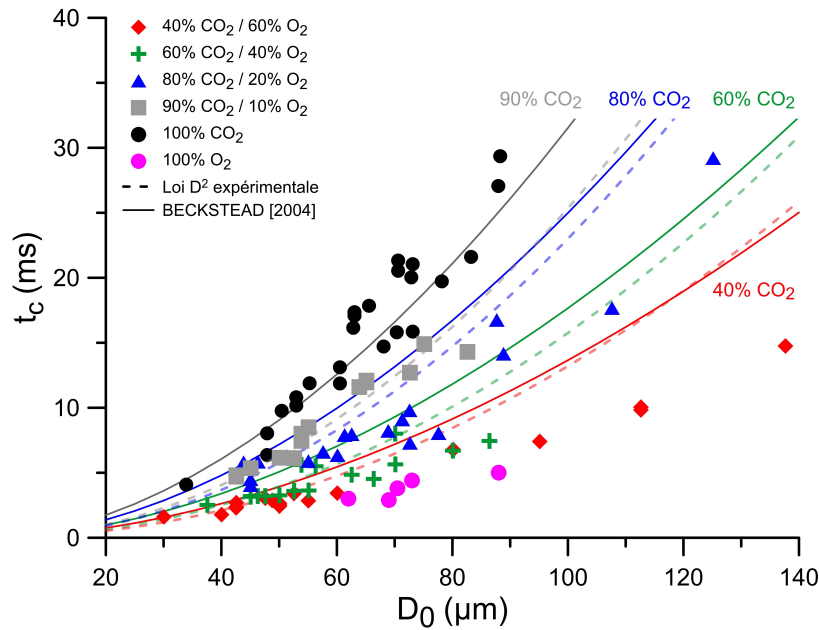


FIGURE 5.53 – Évolution du temps de combustion des gouttes d'aluminium en fonction de leur diamètre initial D_0 dans des mélanges CO_2/O_2 .

5.5.3 Détermination d'une loi empirique sur le temps de combustion des particules d'aluminium

Les résultats de cette étude sont donc exploités dans le but d'établir une corrélation empirique déterminant le temps de réaction t_c des particules d'aluminium en fonction de leur taille et des propriétés du milieu réactif. Basée sur une forme analogue à celle de BECKSTEAD, la relation proposée intègre différents paramètres tels que le diamètre initial des gouttes D_0 , la fraction molaire des espèces présentes X_i et la pression P . D'autre part, les essais ayant été réalisés à température ambiante dans cette étude, il est donc à noter que le paramètre T ne sera pas considéré ici. La formulation utilisée est rappelée dans le tableau 5.1, incluant diverses variables d'ajustement comme le coefficient a , les exposants n , et α ainsi que l'efficacité oxydante des espèces e_i , l'exposant γ étant à exclure dans le cas présent. Le pouvoir oxydant du O_2 étant apparemment le plus élevé, l'efficacité e_{O_2} du dioxygène sera choisie comme référence avec $e_{\text{O}_2} = 1$. De plus, dans le but d'étendre les travaux de BECKSTEAD, les espèces N_2 et CO sont intégrées dans l'expression de X_{eff} . Une procédure algorithmique est ensuite utilisée afin de définir la combinaison optimale des variables d'ajustement par minimisation des moindres carrés. La quasi-totalité des points de mesure PM est alors considérée (428 points), excluant uniquement les mesures relatives aux cas en CO pur et en CO_2/N_2 contenant 60% de diazote en raison des aspects phénoménologiques évoqués dans ces conditions (combustion non auto-entretenu et/ou incomplète avec une quantité significative d'aluminium résiduel). Les résultats en mélange O_2/Ar et O_2/He ne sont également pas considérés en vue d'accroître la précision de la relation établie pour des espèces ayant un intérêt majeur. Le tableau 5.1 répertorie l'intégralité des paramètres analysés et détaille la répartition des points de mesure, permettant ainsi de pondérer le cadre d'application de l'approche proposée. Notamment, la base de données constituée dans cette étude est particulièrement pertinente pour caractériser la contribution des espèces présentes dans les produits de combustion des propergols solides comme le CO_2 , le N_2 et le CO .

Cette démarche conduit finalement aux expressions 5.6 et 5.7, la fonction $\mathcal{H}_{\text{O}_x}$ étant

	Paramètres milieu ambiant					D ₀ (μm)	Points de mesure			Écart relatif						
	X _{O2}	X _{CO2}	X _{N2}	X _{CO}	P (bar)	30 - 137	428		BECKSTEAD			BRACONNIER				
Air - Pression	0.2	0	0.8	0	1	51 - 97	20	110	136	36%	17%	26%	12%	13%		
	0.2	0	0.8	0	3	30 - 55	6			14%			7%			
	0.2	0	0.8	0	5	47 - 84	6			5%			7%			
	0.2	0	0.8	0	6	59 - 95	18			19%			12%			
	0.2	0	0.8	0	7	39 - 73	9			4%			3%			
	0.2	0	0.8	0	9	32 - 97	13			15%			14%			
	0.2	0	0.8	0	11	40 - 83	8			15%			15%			
	0.2	0	0.8	0	15	30 - 136	9			11%			12%			
	0.2	0	0.8	0	19	30 - 70	5			23%			24%			
	0.2	0	0.8	0	21	32 - 117	10			14%			12%			
O ₂ / N ₂	0.4	0	0.6	0	1	57 - 77	8	26		36%	43%		2%	7%		
	0.6	0	0.4	0	1	73 - 104	6			40%			5%			
	0.8	0	0.2	0	1	54 - 80	6			57%			12%			
	1	0	0	0	1	62 - 88	6			40%			10%			
CO ₂ - Pression	0	1	0	0	1	34 - 88	25	94		30%	23%	26%	11%	12%	12%	
	0	1	0	0	5	48 - 118	23			20%			6%			
	0	1	0	0	8	58 - 121	15			17%			9%			
	0	1	0	0	10	63 - 114	19			37%			26%			
	0	1	0	0	15	63 - 126	12			12%			7%			
CO ₂ / N ₂	0	0.4	0.6	0	1	73 - 93	4	65		ND	24%		ND	12%		
	0	0.6	0.4	0	1	43 - 95	24			31%			16%			
	0	0.8	0.2	0	1	33 - 95	22			19%			11%			
	0	0.9	0.1	0	1	55 - 110	19			22%			9%			
CO ₂ / CO	0	0.4	0	0.6	1	38 - 116	16	61	292	52%	27%		8%	13%		
	0	0.6	0	0.4	1	39 - 62	17			19%			16%			
	0	0.8	0	0.2	1	45 - 110	11			21%			13%			
	0	0.9	0	0.1	1	43 - 110	17			15%			14%			
CO ₂ / O ₂	0.6	0.4	0	0	1	30 - 137	19	72		43%	42%		13%	12%		
	0.4	0.6	0	0	1	38 - 86	17			46%			15%			
	0.2	0.8	0	0	1	44 - 125	21			42%			12%			
	0.1	0.9	0	0	1	43 - 83	15			36%			9%			
Formulation empirique							$t_c = \frac{a D_0^n}{X_{eff} P^\alpha T^\gamma}$ $X_{eff} = \sum e_i X_i$									
Coefficients d'ajustement							a	n	α	γ	eO2	eCO2	eN2	eCO		
BECKSTEAD							0.00735	1.8	0.1	0.2	1	0.22	ND	ND		
BRACONNIER							0.002	1.75	0.007	ND	1	0.2052	-0.032	0.028		

TABLEAU 5.1 – Matrice détaillée des paramètres expérimentaux répertoriés et des écarts relatifs calculés entre la valeur du temps de combustion déterminée expérimentalement par PM et celles prédites par chacune des corrélations empiriques

fixée à 0 si les proportions de O₂ et de CO₂ dans le mélange réactif sont nulles ou à 1 dans le cas contraire. Cet indicateur est utilisé pour exclure la possibilité de déterminer un temps de combustion fini et non physique dans le cas où une particule réagirait dans le N₂ ou le CO pur. Le temps de réaction s'exprime alors en milliseconde (ms), le diamètre initial des gouttes en micromètre (μm) et la pression en bar.

$$t_c = \frac{0.002 D_0^{1.75}}{X_{eff} P^{0.01}} \quad (5.6)$$

$$X_{eff} = X_{O_2} + 0.21 X_{CO_2} - 0.03 X_{N_2} \mathcal{H}_{Ox} + 0.03 X_{CO} \mathcal{H}_{Ox} \quad (5.7)$$

Les coefficients d'ajustement optimisés sont directement comparés à ceux utilisés dans la corrélation de BECKSTEAD (Tab. 5.1). Les exposants n sont alors relativement proches et les valeurs concernant l'efficacité oxydante du CO_2 sont équivalentes. Une différence notable est tout de même identifiée entre les exposants de pression α . En effet, comparativement à la relation élaborée par BECKSTEAD, le paramètre de pression a une contribution sensiblement amoindrie d'après les résultats de cette étude. Ce constat résulte probablement des tendances inverses relevées ici dans l'air et dans le CO_2 pur quant à la dépendance en pression, respectivement $t_c \propto P^{-0.1}$ et $t_c \propto P^{0.1}$ dans les parties 5.2.2 et 5.4.1. Enfin, les quantités e_{N_2} et e_{CO} montrent que le rôle du N_2 et du CO peut finalement être assimilé à celui d'un inerte dans les cas considérés ici pour établir la relation empirique proposée. L'intégration des paramètres relatifs au N_2 et au CO peut donc être discutable, néanmoins, l'intérêt de ces résultats réside dans la quantification concrète de la contribution de ces espèces, en particulier celle du monoxyde de carbone. La représentativité des corrélations a été évaluée en estimant pour chaque cas l'écart relatif par rapport aux valeurs de t_c mesurées expérimentalement (Tab. 5.1). De manière attendue, la relation établie d'après les données de cette étude est plus précise avec un écart relatif moyen de 12% alors que la formulation de BECKSTEAD présente un écart relatif moyen de 26%. La lecture plus détaillée des erreurs relatives suggère que la validité des relations est semblable pour le cas des gouttes réagissant dans l'air. Les capacités de prédiction sont davantage améliorées pour les particules en combustion dans des conditions plus spécifiques et jusqu'ici peu ou non étudiées. Notamment, les améliorations vraisemblablement apportées en CO_2 pur ou en mélange CO_2/N_2 et CO_2/CO sont intéressantes pour contribuer à l'optimisation des modèles numériques utilisés dans le domaine appliqué des MPS. En outre, une réduction marquée des erreurs relatives est constatée quant à l'estimation du temps de réaction des gouttes dans des milieux fortement oxydants contenant du dioxygène tel que les mélanges CO_2/O_2 ou O_2/N_2 .

Malgré la pertinence de la démarche initiée dans cette partie, il convient cependant d'évoquer les limites de la relation empirique établie dont le domaine de validité se restreint aux gammes de paramètres analysées dans cette étude. Par exemple, bien que l'intervalle de diamètre initial de goutte soit représentatif de celui retrouvé dans les MPS, la justesse des prédictions faites pour des valeurs de D_0 inférieures à 30 μm et supérieures à 140 μm dans le cadre d'autres applications nécessiterait d'être confirmée. De même, les milieux réactifs étudiés se composent uniquement d'un gaz pur ou d'un mélange binaire. Des essais complémentaires semblent donc être également requis pour évaluer la validité de la corrélation proposée pour des mélanges gazeux plus complexes contenant davantage d'espèces. En ce sens, il est par ailleurs essentiel d'étendre ces travaux pour intégrer la contribution relative de la vapeur d'eau et généraliser l'utilisation de cette loi de comportement dans le cas des MPS. Enfin, d'après les observations phénoménologiques rapportées en milieu CO_2/CO et CO_2/N_2 , il serait aussi opportun de caractériser plus précisément la combustion des gouttes dans ces mélanges pour des gammes de D_0 , X_{CO} et X_{N_2} élargies et/ou affinées. Ainsi, cela permettrait notamment de retranscrire convenablement l'effet de la transition de mode (diffusion/hétérogène de surface) sur le temps de combustion et de définir les valeurs seuils requises quant à D_0 et X_{CO_2} pour initier un processus réactionnel auto-entretenu dans ces conditions.

5.5.4 Bilan

L'analyse de la combustion de l'aluminium en mélange CO_2/CO , CO_2/N_2 et CO_2/O_2 introduit donc des résultats originaux et initie une démarche pertinente visant à carac-

tériser la contribution des gaz présents dans la chambre des MPS dans le processus de réaction des gouttes.

Des éléments phénoménologiques nouveaux ont été illustrés en atmosphère CO_2/CO et CO_2/N_2 comme la transition du mode de combustion depuis un régime de diffusion vers un régime limité à des réactions hétérogènes de surface. Les observations faites sur cet aspect démontrent que le N_2 et le CO agissent pour le moins comme des gaz inertes mais des différences notables quant aux effets relatifs de chacune de ces espèces sont aussi mises en évidence. Des hypothèses ont d'ailleurs été suggérées dans cette partie pour expliquer la dynamique de combustion constatée dans ces conditions, supposant notamment que des réactions Al-O-N ou Al-O-C sont initiées au cours du processus. D'autre part, les séquences de combustion présentées en mélange CO_2/O_2 ont permis de détailler davantage le processus de développement du lobe d'oxyde en surface de la goutte. Des axes de réflexion intéressants ont ainsi été précisés quant au rôle des effets aérodynamiques et des mécanismes de thermophorèse/diffusiophorèse, la taille relative du lobe étant de surcroît un paramètre visiblement déterminant.

Les résultats concernant le taux de régression des gouttes et leur temps de réaction ont ensuite apporté des données quantitatives sur la contribution des espèces étudiées dans le processus réactionnel. Les mesures expérimentales retranscrivent globalement les comportements observés par visualisation directe, confirmant que le monoxyde de carbone et le diazote ont un effet inerte, voire inhibiteur. De plus, ces données ont à nouveau démontré les limites de la corrélation empirique généralisée de BECKSTEAD qui au demeurant ne considère pas les effets potentiels du N_2 et du CO pour estimer le temps de combustion des gouttes. Ce constat a donc motivé l'intérêt d'élaborer une loi empirique analogue basée sur la majorité des résultats de cette étude en intégrant des paramètres relatifs à la présence du N_2 et du CO . Comparativement, la corrélation établie améliore alors sensiblement les capacités de prédiction, suggérant d'autre part que la contribution des espèces N_2 et CO est en finalité négligeable dans les conditions expérimentales retenues pour définir la formulation proposée. L'approche initiée demeure néanmoins lacunaire et diverses perspectives ont également été soulignées de manière à permettre une généralisation concrète de la relation formulée. À ce titre, il conviendra en particulier d'étendre les travaux réalisés en mélange CO_2/CO et CO_2/N_2 puis de réitérer la démarche expérimentale mise en place afin de caractériser la combustion des gouttes d'aluminium dans des milieux contenant de la vapeur d'eau (H_2O pur à pression variable, $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}$, $\text{H}_2\text{O}/\text{N}_2$, $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2$ et $\text{H}_2\text{O}/\text{O}_2$) et d'intégrer les résultats obtenus à la base de données d'ores et déjà constituée.

Chapitre 6

Conclusion et perspectives

Les poudres métalliques d'aluminium sont ainsi couramment intégrées à la composition de certains matériaux énergétiques tels que les propergols solides pour notamment améliorer les performances des systèmes propulsifs anaérobies. En effet, l'aluminium possède des propriétés énergétiques intéressantes, ayant une enthalpie de réaction similaire à celle des combustibles hydrocarbures, mais présentant d'autre part une densité énergétique et des températures de réaction plus élevées. Néanmoins, la présence d'une phase dispersée au sein de l'écoulement propulsif peut également altérer l'intégrité et la stabilité des MPS. De plus, au demeurant, l'utilisation du potentiel énergétique des particules d'aluminium nécessite d'être optimisée pour accroître davantage les performances moteur. Par conséquent, dans ce cadre d'application, différents enjeux sont alors finalement associés à la modélisation du processus réactionnel des gouttes d'aluminium dont la phénoménologie est aussi complexe que singulière. Parallèlement, en dépit des travaux expérimentaux et numériques d'ores et déjà rapportés à ce sujet, la compréhension des mécanismes impliqués dans la combustion des particules d'aluminium reste restreinte et les données expérimentales disponibles s'avèrent être lacunaires, en particulier pour le cadre d'application des MPS. De manière générale, l'étude ici proposée vise donc à étendre les connaissances existantes sur le processus de réaction des particules d'aluminium et tend plus particulièrement à établir une base de données plus pertinente dans l'objectif d'améliorer les modèles prédictifs et les outils numériques notamment utilisés pour simuler le fonctionnement des MPS.

Basés sur un dispositif permettant d'isoler une particule métallique en lévitation dans un environnement contrôlé, les travaux menés ont alors contribué à développer les capacités d'analyse d'un banc expérimental existant. Une caméra numérique rapide a notamment été couplée à un microscope longue distance pour enregistrer des séquences de combustion dynamiques avec une haute résolution spatio-temporelle. La visualisation directe est par ailleurs synchronisée avec différents photomultiplicateurs mesurant l'évolution de l'intensité lumineuse durant la réaction. Cet ensemble permet ainsi de caractériser la combustion auto-entretenu des gouttes d'aluminium initiée par un laser CO₂. Des routines informatiques ont également été élaborées pour favoriser un traitement quasi systématique des données (signaux et images) et évaluer l'ensemble des facteurs caractéristiques. Enfin, des modules complémentaires ont également été conçus et réalisés dans le but d'étudier la combustion des particules dans des atmosphères contenant des espèces retrouvées dans les produits de combustion des propergols comme le monoxyde de carbone ou la vapeur d'eau. De cette manière, l'approche expérimentale mise en œuvre permet globalement d'obtenir des informations qualitatives et quantitatives sur la combustion de gouttes d'aluminium de taille similaire à celles réagissant en proche surface des propergols solides dans des conditions partiellement représentatives

de l'environnement moteur. En finalité, des résultats inédits ont ainsi été rapportés sur le processus réactionnel des gouttes d'aluminium, introduisant des axes de réflexion essentiels pour la compréhension de la phénoménologie associée et constituant une base de données pertinente sur les paramètres de combustion inhérents.

Tout d'abord, de manière globale, cette étude a permis de décrire explicitement les modalités du processus de combustion de l'aluminium dans des conditions diverses incluant des gaz caractéristiques des MPS. Des comportements d'ores et déjà connus et répertoriés ont ainsi été précisés, notamment dans l'air, mais des informations substantielles ont aussi été apportées sur la combustion des gouttes dans des atmosphères moins documentées. La réaction s'établit alors en phase vapeur auto-entretenu dans le CO_2 pur mais est limitée à des mécanismes surfaciques dans le CO pur, même sous pression. La contribution du N_2 et du CO en atmosphère CO_2/CO et CO_2/N_2 a été étudiée et certaines limites ont été identifiées quant à l'entretien du processus réactionnel, montrant sous certaines conditions que le mode de combustion peut transiter d'un régime de diffusion à un régime hétérogène de surface. Les données mesurées quant au temps de combustion ou au taux de régression des gouttes ont permis de caractériser plus finement le rôle de chaque espèce. Les pouvoirs oxydants du O_2 , du CO_2 et du CO ont ainsi été hiérarchisés et quantifiés, le dioxygène ayant l'efficacité la plus élevée et le monoxyde de carbone agissant sensiblement comme un inerte. Pour autant, les résultats suggèrent que le CO a une contribution différente de celle du N_2 lorsque ces derniers sont combinés au CO_2 . L'effet global de la pression sur les paramètres de combustion a également été déterminé. L'influence de la pression est alors perceptible mais reste limitée en comparaison de celle de la composition chimique du milieu réactif. Les résultats obtenus ont par ailleurs été confrontés à ceux de la littérature, principalement aux prédictions issues de la corrélation empirique de BECKSTEAD. De cette façon il a été prouvé que la validité de cette relation par rapport aux points de mesure était discutable et que sa généralisation devait être reconsidérée. En finalité, la base de données constituée a donc été utilisée pour formuler une loi analogue basée sur une quantité significative de résultats (428 points de mesure) établis sur une gamme de paramètres étendue et davantage représentative des conditions moteur. En substance, la corrélation proposée présente assurément une meilleure cohérence vis-à-vis des résultats de cette étude et confirme en outre que le processus réactionnel global de l'aluminium ne peut être convenablement décrit par la loi théorique du D^2 , démontrant que $t_c \propto D_0^{1.75}$.

Ensuite, il a été mis en évidence que la présence d'éléments condensés sur la surface de la goutte d'aluminium en réaction est une problématique fondamentale. Plus précisément, l'ensemble des observations suggèrent que le processus de développement du lobe et sa dynamique déterminent la phénoménologie de combustion. À cet égard, différents aspects phénoménologiques ont été observés selon la composition du milieu réactif et la pression ambiante imposée. Dans le cas des particules en réaction dans l'air, l'expansion soudaine du lobe en surface de la goutte déclenche brusquement une transition de régime symétrique/asymétrique, modifiant considérablement la géométrie de la flamme et initiant des effets de jetting/spinning. D'autre part, l'étude comparative de la réaction des gouttes en atmosphère O_2/N_2 , O_2/Ar et O_2/He a confirmé que le N_2 peut favoriser l'apparition de ce phénomène. Cette phase d'analyse a aussi permis de montrer que l'initiation de la transition de régime symétrique/asymétrique est prématurée et particulièrement vive lorsque les proportions d'oxydant O_2 sont élevées. De manière contrastée, l'évolution de la taille du lobe est manifestement plus progressive pour les particules d'aluminium réagissant avec du CO_2 pur. Ainsi, dans ces conditions, l'accumulation de produits condensés est graduelle et la transition de régime est alors difficilement identifiable. L'influence de la pression sur la phénoménologie de combustion a également

été discutée concernant les gouttes en réaction dans l'air et le CO_2 pur. Bien que les séquences réalisées sous pression ne puissent renseigner explicitement sur les modalités de développement du lobe, les images indiquent que l'aspect visuel du lobe est modifié et, d'après les mesures estimées dans l'air, la dynamique de combustion semble différente des cas à pression atmosphérique. De plus, au-delà des effets perturbateurs induits par l'expansion du lobe en surface de la goutte, ce processus conduit fréquemment au recouvrement de cette dernière dans sa totalité et les observations rapportées sur le processus d'extinction montrent d'ailleurs que des phénomènes d'inclusion gazeuse ou de micro-explosion peuvent marquer la fin de vie des particules.

D'après les constats évoqués, la compréhension des phénomènes pilotant l'accumulation d'éléments condensés en surface de la goutte paraît être un enjeu essentiel pour la modélisation du processus de combustion des particules d'aluminium. De surcroît, dans le cadre d'une application pratique telle que les MPS, il a par exemple été mis en évidence que la transition de régime symétrique/asymétrique peut altérer la répartition de l'énergie de réaction, modulant notamment la contribution des transferts radiatifs. Ce type d'effet doit donc pouvoir être implémenté aux outils numériques permettant de simuler le fonctionnement des MPS. En ce sens, plusieurs axes de réflexion ont été introduits quant aux mécanismes possiblement impliqués dans le développement du lobe et différentes hypothèses ont été formulées. Bien qu'aucun marqueur visuel ne renseigne sur l'établissement de phénomènes surfaciques lorsque la combustion est entretenue en phase vapeur, le rôle des réactions hétérogènes reste discutable. En effet, la dynamique observée dans l'air concernant le grossissement soudain du lobe suggère la formation brusque d'une phase condensée en surface de la goutte. Apparentée à une transition thermochimique, ce phénomène résulterait donc potentiellement de réactions hétérogènes entre l'aluminium liquide et les espèces gazeuses parvenant à diffuser jusqu'à la surface de la goutte. Des réactions hétérogènes de surface ont par ailleurs été identifiées à basse température durant la phase de chauffage des gouttes réagissant dans le CO_2 pur. Dans ces conditions, les réactions de surface contribuent alors à augmenter la taille du lobe initial. Hypothétiquement, l'apparition d'éléments condensés en surface de la particule pourrait entre autres être attribuée à la présence et à la diffusion d'espèces peu réactives comme le NO ou le CO, induisant des transitions de phase après dissolution ou entretenant directement des réactions hétérogènes. Des constats établis dans des environnements fortement oxydants corroborent d'autre part la possibilité que les phénomènes de thermophorèse et/ou de diffusiophorèse contribuent au développement du lobe. Contrôlé par les gradients de température et d'espèce, ce type de mécanisme serait ainsi à l'origine de la migration observée de particules submicroniques de la flamme vers le lobe en surface de la goutte. Enfin, l'influence des effets aérodynamiques constitue également un postulat intéressant au regard des observations faites dans différentes conditions. Il est alors supposé que ces effets puissent favoriser le transport des produits condensés vers le lobe, soit de manière directe en orientant les champs de vitesse, soit de manière indirecte en modifiant localement les gradients de température et/ou d'espèce. Indépendamment des mécanismes impliqués dans la migration des produits de combustion, il a été démontré que la présence et la taille relative du lobe étaient des facteurs déterminants dans l'initiation d'une structure d'échange entre la flamme et la goutte.

Enfin, les données rassemblées sur le temps de réaction et le taux de régression des gouttes ont parallèlement contribué à évaluer les répercussions suscitées par les aspects phénoménologiques observés. En effet, la comparaison systématique entre les lois D^2 expérimentales déterminées par imagerie en phase de combustion préliminaire et les temps de réaction globaux mesurés par PM s'est avérée révélatrice à ce sujet. Ainsi, la

présence d'éléments condensés en surface de la goutte et, par extension, la transition de régime symétrique/asymétrique ou le développement progressif du lobe, n'altèrent pas sensiblement le processus de vaporisation des gouttes. Il a également été montré que les quantités résiduelles d'aluminium sont a priori relativement faibles dans le cas des particules réagissant en phase vapeur auto-entretenu. Ce constat est néanmoins plus réservé lorsque le mode de diffusion transite vers des réactions de surface hétérogènes où des proportions considérables d'aluminium restent imbrûlées dans certaines conditions.

Cette étude laisse finalement envisager des perspectives intéressantes visant principalement à exploiter les résultats obtenus et à étendre les travaux entrepris.

Dans un premiers temps, les informations et les données rassemblées ont permis de mettre en évidence des lacunes existantes quant à la modélisation de la combustion des gouttes à l'échelle microscopique. Une phase de travail est donc nécessaire pour identifier et orienter les axes de développement principaux en confrontant les résultats expérimentaux et numériques. À l'échelle macroscopique des MPS, l'implémentation de la nouvelle relation empirique proposée sur le temps de réaction des gouttes peut aussi être abordée afin d'analyser les répercussions potentiellement induites sur le fonctionnement moteur.

Des données additionnelles sont ensuite requises pour affiner le domaine de validité de la relation empirique établie et généraliser son application dans le cadre des MPS. En particulier, il conviendrait de poursuivre les essais expérimentaux initiés en mélange CO_2/CO et CO_2/N_2 pour caractériser plus précisément l'effet du CO et du N_2 dans ces conditions. L'acquisition de résultats sur la combustion de l'aluminium en milieu contenant de la vapeur d'eau s'avère aussi être également primordiale. Ainsi, dans le but de préserver l'homogénéité de la matrice expérimentale, des données doivent être collectées en atmosphère H_2O pur à pression variable, $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}$, $\text{H}_2\text{O}/\text{N}_2$, $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2$ et $\text{H}_2\text{O}/\text{O}_2$. Pour ce faire, le dispositif expérimental intègre d'ores et déjà les modules nécessaires à la génération de vapeur d'eau sous pression qui ont été conçus et mis au point durant ces travaux de thèse. Des essais en mélange variable O_2/CO pourraient par ailleurs permettre de confirmer le comportement du CO avec l'ensemble des espèces oxydantes dans le but de conforter la pertinence des prédictions en mélanges complexes. En ce sens, la loi empirique pourra finalement être actualisée puis confrontée à des résultats établis dans des mélanges ternaires. En outre, bien qu'aucune activité n'ait été dédiée à cet aspect durant cette étude, l'actualisation du dispositif de lévitation permettant l'intégration du HCl dans l'environnement réactif de la goutte devrait être considérée par la suite.

Des données expérimentales quantitatives quant à l'évolution de la température et des espèces en présence durant la réaction sont parallèlement essentielles pour l'identification des facteurs associés à l'initiation des mécanismes hétérogènes et comprendre leur rôle dans la production d'éléments condensés en surface de la goutte. Des essais encourageants ont d'ailleurs été initiés à ce sujet. La possibilité de suivre l'évolution de la température équivalente des phases condensées durant la réaction a été établie, basée sur un diagnostic de pyrométrie bi-couleur utilisant les PM existants et des filtres passe-bande centrés sur les émissions du fond continu. D'autres techniques de mesure ont néanmoins été envisagées et/ou expérimentées afin de pallier les limites de la pyrométrie bi-couleur. Notamment, cette méthode ne permet pas de faire la distinction entre les paramètres relatifs à l'aluminium et ceux inhérents des autres phases condensées, ce qui restreint l'interprétation et la comparaison des profils mesurés. La spectrométrie d'émission est alors une alternative intéressante qui pourrait permettre la

mesure combinée des espèces en présence et de la température. Bien que cette méthode soit vraisemblablement applicable, les tests entrepris ont montré que des solutions devaient être mises en place pour améliorer la mesure des émissions issues de la particule, l'intensité perçue étant en l'état insuffisante pour être exploitée. Enfin, concernant l'étude des espèces chimiques et des mécanismes impliqués dans les phénomènes hétérogènes de surface, un autre axe de développement majeur doit être souligné. En effet, la caractérisation des résidus de combustion peut fournir des renseignements fondamentaux sur la composition et la structure cristalline finales des éléments imbrûlés. Ces indicateurs constitueraient ainsi des informations utiles pour retracer l'historique des processus surfaciques et la possibilité de récupérer et d'analyser les particules après leur réaction est donc un enjeu considérable.

Pour finir, les axes de réflexion proposés quant à la contribution des phénomènes de thermophorèse/diffusiophorèse ou des effets aérodynamiques sur le transport des produits de combustion condensés sont éminemment pertinents mais il reste cependant complexe de dissocier l'influence des différents paramètres potentiellement impliqués (taux de recouvrement de la goutte, épaisseur du lobe, rapport des diamètres flamme/goutte, température de flamme, taux de vaporisation, etc.). Il apparaît donc primordial de poursuivre ces travaux de recherche en développant notamment des analyses paramétriques numériques concernant l'impact de ces facteurs sur le transport des produits condensés submicroniques. Des études numériques préliminaires ont d'ailleurs été menées sur l'implémentation des effets aérodynamiques, proposant des résultats intéressants sur l'allure de la flamme en fonction de la taille relative du lobe. Par ailleurs, le microscope longue distance étant pourvu de plusieurs accès optiques, l'élaboration d'un pyromètre bi-couleur basé sur la combinaison de caméras numériques rapides munies de filtres optiques reste à considérer. Cette technique donnerait ainsi possiblement accès à une détermination spatio-temporelle de la température et permettrait donc d'estimer les températures respectives du lobe, de la goutte et de flamme. Ce type de donnée expérimentale serait alors utile pour modéliser et simuler numériquement les effets induits par la présence du lobe en surface de la particule en réaction, en particulier sur les gradients de température.

Bibliographie

- J. Anthoine, J.-M. Buchlin, and J.-F. Guéry. Experimental and numerical investigations of nozzle geometry effect on the instabilities in solid propellant boosters. In *36th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 3560, 2000. [13](#)
- V. Babuk, V. Belov, V. Khodosov, and G. Shelukhin. Investigation of the agglomeration of aluminum particles during the combustion of metallized composite condensed systems. *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 21(3) :287–292, 1985. [10](#)
- C. Badiola and E. L. Dreizin. On weak effect of particle size on its burn time for micron-sized aluminum powders. *Combustion science and technology*, 184(12) :1993–2007, 2012. [35](#)
- C. Badiola, R. J. Gill, and E. L. Dreizin. Combustion characteristics of micron-sized aluminum particles in oxygenated environments. *Combustion and Flame*, 158(10) : 2064–2070, 2011. [20](#), [35](#), [36](#), [38](#), [89](#)
- S. Ballereau and F. Godfroy. Two minutes inside the Ariane 5’s SRMs : Effect of different sources of pressure oscillations during operation. In *60th International Astronautical Congress, South Korea*, page 42, 2009. [14](#)
- S. Ballereau, F. Godfroy, O. Orlandi, and D. Ballion. Numerical simulations and searching methods of thrust oscillations for solid rocket motors. In *42nd AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit*, page 4425, 2006. [13](#)
- E. Bar-Ziv and A. F. Sarofim. The electrodynamic chamber : a tool for studying high temperature kinetics involving liquid and solid particles. *Progress in energy and combustion science*, 17(1) :1–65, 1991. [46](#), [47](#), [48](#)
- M. Barrere. *Rocket propulsion*. Elsevier Pub. Co., 1960. [11](#)
- T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac. Oxidizer and pressure effects on the combustion of 10-micron aluminum particles. *Journal of propulsion and power*, 21(4) :577–582, 2005. [35](#), [38](#), [39](#)
- T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac. Combustion of nanoaluminum at elevated pressure and temperature behind reflected shock waves. *Combustion and Flame*, 145(4) :703–713, 2006. [31](#), [35](#), [36](#)
- T. Bazyn, H. Krier, and N. Glumac. Evidence for the transition from the diffusion-limit in aluminum particle combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(2) :2021–2028, 2007. [20](#), [21](#)
- M. Beckstead. An overview of combustion mechanisms and flame structures for advanced solid propellants. In *36th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 3325, 2000. [9](#)

- M. Beckstead. A summary of aluminum combustion. Technical report, Brigham Young Univ Provo Ut, 2004. [42](#), [66](#), [89](#), [114](#)
- M. Beckstead, Y. Liang, and K. Pudduppakkam. Numerical simulation of single aluminum particle combustion. *Combustion, Explosion and Shock Waves*, 41(6) :622–638, 2005. [30](#)
- A. Belyaev, Y. V. Frolov, and A. Korotkov. Combustion and ignition of particles of finely dispersed aluminum. *Combustion, Explosion and Shock Waves*, 4(3) :182–185, 1968. [32](#), [36](#), [37](#)
- F. Blomshield. Historical perspective of combustion instability in motors-case studies. In *37th Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 3875, 2001. [11](#)
- W. T. Brande. The bakerian lecture : on some new electro-chemical phenomena. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, (104) :51–61, 1814. [48](#)
- K. P. Brooks and M. W. Beckstead. Dynamics of aluminum combustion. *Journal of propulsion and power*, 11(4) :769–780, 1995. [30](#), [38](#)
- P. Bucher, R. A. Yetter, F. Dryer, T. Parr, D. Hanson-Parr, and E. Viceni. Flames structure measurement of single, isolated aluminum particles burning in air. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 26, pages 1899–1908. Elsevier, 1996. [36](#), [56](#), [61](#)
- P. Bucher, R. A. Yetter, F. Dryer, E. Vicenzi, T. Parr, and D. Hanson-Parr. Condensed-phase species distributions about al particles reacting in various oxidizers. *Combustion and Flame*, 117(1-2) :351–361, 1999. [31](#), [38](#), [39](#), [40](#), [41](#), [98](#), [102](#)
- P. Bucher, L. Ernst, F. Dryer, R. Yetter, T. Parr, and D. Hanson. Detailed studies on the flame structure of aluminum particle combustion. *Solid propellant chemistry, combustion and motor interior ballistics*, 185 :689–722, 2000. [25](#), [26](#), [79](#)
- G. Casalis, G. Avalon, and J.-P. Pineau. Spatial instability of planar channel flow with fluid injection through porous walls. *Physics of Fluids*, 10(10) :2558–2568, 1998. [12](#)
- N. Cesco, G. Lavergne, and J. Estivalezes. Simulation of the two phase flow in solid rocket motors. In *32nd Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 2640, 1996. [16](#)
- A. Charmeau. Où va la filière des lanceurs européens? In *Annales des Mines-Realites industrielles*, number 2, pages 54–58. FFE, 2019. [1](#)
- F. Culick and P. Kuentzmann. Unsteady motions in combustion chambers for propulsion systems. Technical report, NATO RESEARCH AND TECHNOLOGY ORGANIZATION NEUILLY-SUR-SEINE (FRANCE), 2006. [13](#)
- F. Culick and K. Magiawala. Excitation of acoustic modes in a chamber by vortex shedding. *Journal of Sound and Vibration*, 64(3) :455–457, 1979. [13](#)
- A. Davis. Solid propellants : the combustion of particles of metal ingredients. *Combustion and Flame*, 7 :359–367, 1963. [32](#), [35](#), [36](#), [37](#)
- E. J. Davis, M. F. Buehler, and T. L. Ward. The double-ring electrodynamic balance for microparticle characterization. *Review of Scientific Instruments*, 61(4) :1281–1288, 1990. [46](#), [47](#)

- P. E. DesJardin, J. D. Felske, and M. D. Carrara. Mechanistic model for aluminum particle ignition and combustion in air. *Journal of Propulsion and Power*, 21(3) :478–485, 2005. [30](#)
- R. W. Devillers, G. Le Besnerais, M. Nugue, and N. Cesco. Experimental analysis of solid-propellant surface during combustion with shadowgraphy images : new tools to assist aluminum-agglomeration modelling. In *7th European Conference for Aeronautics and Space Sciences, Milan (Italy)*, pages 2017–327, 2017. [10](#), [11](#), [17](#)
- E. Dreizin. Phase changes in metal combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26(1) :57–78, 2000. [41](#)
- E. Dreizin. Effect of phase changes on metal-particle combustion processes. *Combustion, Explosion and Shock Waves*, 39(6) :681–693, 2003. [32](#), [33](#), [34](#), [41](#), [62](#)
- E. L. Dreizin. Experimental study of stages in aluminium particle combustion in air. *Combustion and Flame*, 105(4) :541–556, 1996. [27](#), [32](#), [48](#), [61](#), [62](#), [63](#), [66](#), [79](#)
- E. L. Dreizin. Experimental study of aluminum particle flame evolution in normal and micro-gravity. *Combustion and Flame*, 116(3) :323–333, 1999a. [34](#), [89](#)
- E. L. Dreizin. On the mechanism of asymmetric aluminum particle combustion. *Combustion and flame*, 117(4) :841–850, 1999b. [34](#), [35](#), [36](#), [40](#), [41](#), [59](#), [79](#), [84](#), [87](#), [89](#), [90](#)
- V. Dribinski, A. Ossadtchi, V. A. Mandelshtam, and H. Reisler. Reconstruction of Abel-transformable images : The gaussian basis-set expansion Abel transform method. *Review of Scientific Instruments*, 73(7) :2634–2642, 2002. [56](#)
- J. Dupays. *Contribution à l'étude du rôle de la phase condensée dans la stabilité d'un propulseur à propergol solide pour lanceur spatial*. PhD thesis, Toulouse, INPT, 1996. [14](#)
- J. Dupays. Two-phase unsteady flow in solid rocket motors. *Aerospace Science and Technology*, 6(6) :413–422, 2002. [14](#)
- J. Dupays, M. Prévost, P. Tarrin, and F. Vuillot. Effects of particulate phase on vortex shedding driven oscillations in solid rocket motors. In *32nd Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 3248, 1996. [14](#)
- Y. Fabignon. Synthèse de l'activité MACADAM-modélisation du dépôt dans le MPS P230. *Rapport technique ONERA*, (89/6133), 1997. [16](#)
- Y. Fabignon, J. Dupays, G. Avalon, F. Vuillot, N. Lupoglazoff, G. Casalis, and M. Prévost. Instabilities and pressure oscillations in solid rocket motors. *Aerospace science and technology*, 7(3) :191–200, 2003. [13](#)
- Y. Feng, Z. Xia, L. Huang, and X. Yan. Experimental investigation on the combustion characteristics of aluminum in air. *Acta Astronautica*, 129 :1–7, 2016. [31](#), [35](#)
- Y. Feng, Z. Xia, L. Huang, and L. Ma. Ignition and combustion of a single aluminum particle in hot gas flow. *Combustion and Flame*, 196 :35–44, 2018. [35](#)
- A. Filippov and D. Rosner. Energy transfer between an aerosol particle and gas at high temperature ratios in the knudsen transition regime. *International journal of heat and mass transfer*, 43(1) :127–138, 2000. [22](#), [23](#)

- G. Flandro. Effects of vorticity on rocket combustion stability. *Journal of Propulsion and Power*, 11(4) :607–625, 1995. [12](#)
- G. Flandro and H. Jacobs. Vortex generated sound in cavities. In *Aeroacoustics Conference*, page 1014, 1973. [13](#)
- G. Flandro, W. Cai, and V. Yang. Turbulent transport in rocket motor unsteady flowfield. *Solid Propellant Chemistry, Combustion, and Motor Interior Ballistics*, 185 :837–858, 2000. [12](#)
- R. O. Foelsche, R. L. Burton, and H. Krier. Ignition and combustion of aluminum particles in H/O/NCombustion Products. *Journal of propulsion and power*, 14(6) :1001–1008, 1998. [35](#), [37](#)
- R. Friedman and A. Maček. Ignition and combustion of aluminium particles in hot ambient gases. *Combustion and flame*, 6 :9–19, 1962. [31](#), [32](#)
- N. Fuchs. On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica pura e applicata*, 56(1) :185–193, 1963. [22](#)
- S. Gallier and F. Godfroy. Aluminum combustion driven instabilities in solid rocket motors. *Journal of propulsion and power*, 25(2) :509–521, 2009. [14](#), [15](#)
- S. Gallier, J. Guery, F. Godfroy, P. Le Breton, D. Ribereau, and P. Cloutet. Instabilités de fonctionnement dans les moteurs à propergol solide de grande taille. *Revue Scientifique et Technique de la Défense* (57), page 17, 2002. [14](#)
- S. Gallier, M. Prevost, J. Hijlkema, and M. Roumy. Effects of cavity on thrust oscillations in subscale solid rocket motors. In *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit*, page 5253, 2009a. [13](#)
- S. Gallier, E. Radenac, and F. Godfroy. Thermoacoustic instabilities in solid rocket motors. In *45th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit*, page 5252, 2009b. [15](#)
- S. Gallier, F. Sibe, and O. Orlandi. Combustion response of an aluminum droplet burning in air. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(2) :1949–1956, 2011. [15](#)
- S. Gallier, B. Briquet, and M. Yiao. Aluminum combustion can drive instabilities in solid rocket motors : T-burner study. *Journal of Propulsion and Power*, 35(1) :159–172, 2019. [15](#)
- A. Genot, S. Gallier, and T. Schuller. Model for acoustic induced aluminum combustion fluctuations in solid rocket motors. *Journal of Propulsion and Power*, 35(4) :720–735, 2019. [15](#)
- R. J. Gill, C. Badiola, and E. L. Dreizin. Combustion times and emission profiles of micron-sized aluminum particles burning in different environments. *Combustion and Flame*, 157(11) :2015–2023, 2010. [35](#), [38](#), [39](#)
- I. Glassman and R. A. Yetter. Combustion. fourth, 2008. [20](#)
- G. Glockler. Carbon–Oxygen bond energies and bond distances. *The Journal of Physical Chemistry*, 62(9) :1049–1054, 1958. [102](#)

- O. Glotov and V. Y. Zyryanov. The effect of pressure on characteristics of condensed combustion products of aluminized solid propellant. *Archivum Combustionis*, 11(3) : 251–262, 1991. [74](#)
- N. Glumac, H. Krier, T. Bazyn, and R. Eyer. Temperature measurements of aluminum particles burning in carbon dioxide. *Combustion science and technology*, 177(3) :485–511, 2005. [35](#), [36](#)
- F. Godfroy, J.-F. Guery, F. Godfroy, and J.-F. Guery. Unsteady eulerian two-phase flow analysis of solid rocket motor slag. In *33rd Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 2859, 1997. [16](#)
- J. Griffond and G. Casalis. On the nonparallel stability of the injection induced two-dimensional taylor flow. *Physics of Fluids*, 13(6) :1635–1644, 2001. [12](#)
- K. Hartman. Ignition and combustion of aluminum particles in propellant flame gases. *8th JANNAF Combustion Mtg*, 1 :1–24, 1971. [37](#)
- Y. Huang, G. A. Risha, V. Yang, and R. A. Yetter. Effect of particle size on combustion of aluminum particle dust in air. *Combustion and Flame*, 156(1) :5–13, 2009. [24](#), [25](#)
- E. B. JL Eisel and E. Price. Pressure, velocity, and geometry effect on Al₂O₃ produced during aluminized propellant combustion. *AIAA Journal*, 13(7) :913–917, 1975. [74](#)
- D. K. Kuehl. Ignition and combustion of aluminum and beryllium. *AIAA Journal*, 3(12) : 2239–2247, 1965. [32](#)
- P. Kuentzmann. Instabilités de combustion. *Office national d'études et de recherches aérospatiales*, 1991. [14](#)
- R. Kullmer. Heat transfer from small tungsten spheres into an ambient H₂ atmosphere. *Applied Physics B*, 62(2) :191–196, 1996. [22](#)
- K. K. Kuo. *Principles of combustion*. Number TJ254. 5 K85 2005. 2005. [65](#)
- V. Kuryavtsev, A. Sukhov, A. Voronetskii, and A. Shpara. High-pressure combustion of metals (three-zone model). *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 15(6) :731–737, 1979. [37](#), [38](#)
- P. Laboureur. *Caractérisation des flammes Al / air générées sur un brûleur Bunsen en conditions prémélangées*. PhD thesis, 2020. [27](#)
- L. Lacassagne. *Simulations et analyses de stabilité linéaire du détachement tourbillonnaire d'angle dans les moteurs à propergol solide*. PhD thesis, 2017. [13](#)
- C. K. Law. A simplified theoretical model for the vapor-phase combustion of metal particles. *Combustion Science and Technology*, 7(5) :197–212, 1973. [30](#)
- B. Legrand. *Etude de la combustion de particules d'aluminium et de magnésium : influence de la composition du mélange gazeux et de la pression*. PhD thesis, Orléans, 2000. [45](#), [46](#), [61](#)
- B. Legrand, M. Marion, C. Chauveau, I. Gokalp, and E. Shafirovich. Ignition and combustion of levitated magnesium and aluminum particles in carbon dioxide. *Combustion science and technology*, 165(1) :151–174, 2001. [96](#)

- G. Lengelle, J. Duterque, and J. Trubert. Physico-chemical mechanisms of solid propellant combustion. *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, 185 : 287–332, 2000. [9](#)
- G. Lengelle, J. Duterque, and J. Trubert. Combustion of solid propellants. Technical report, ONERA (France), 2002. [10](#)
- R. Lomba, P. Laboureur, C. Dumand, C. Chauveau, and F. Halter. Determination of aluminum-air burning velocities using piv and laser sheet tomography. *Proceedings of the Combustion Institute*, 37(3) :3143–3150, 2019. [31](#)
- S. Loyalka, P. Tekasakul, R. Thompson, and R. Warder Jr. Computation of electric fields and particle motion in electrodynamic balances. *Journal of aerosol science*, 26(3) :445–458, 1995. [47](#)
- P. Lynch, H. Krier, and N. Glumac. A correlation for burn time of aluminum particles in the transition regime. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(2) :1887–1893, 2009. [31](#), [35](#), [38](#), [39](#)
- P. Lynch, H. Krier, and N. Glumac. Emissivity of aluminum-oxide particle clouds : Application to pyrometry of explosive fireballs. *Journal of thermophysics and heat transfer*, 24(2) :301–308, 2010. [74](#)
- A. Maček. Fundamentals of combustion of single aluminum and beryllium particles. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 11, pages 203–217. Elsevier, 1967. [25](#), [32](#), [35](#)
- M. Marion. *Etudes sur la combustion des particules d'aluminium sous pression*. PhD thesis, Orléans, 1996. [45](#), [46](#), [50](#), [51](#), [65](#), [66](#), [73](#), [74](#), [75](#)
- M. Marion, C. Chauveau, and I. Gökalp. Studies on the ignition and burning of levitated aluminum particles. *Combustion Science and Technology*, 115(4-6) :369–390, 1996. [26](#), [30](#), [35](#), [37](#)
- B. J. McBride. *Computer program for calculation of complex chemical equilibrium compositions and applications*, volume 2. NASA Lewis Research Center, 1996. [65](#)
- J. C. Melcher, R. L. Burton, and H. Krier. Combustion of aluminum particles in a solid rocket motor flow. Master's thesis, University of Illinois at Urbana-Champaign, 1999. [32](#), [35](#)
- S. Mohan, M. A. Trunov, and E. L. Dreizin. Heating and ignition of metal particles in the transition heat transfer regime. *Journal of heat transfer*, 130(10) :104505, 2008. [23](#)
- S. Mohan, M. A. Trunov, and E. L. Dreizin. On possibility of vapor-phase combustion for fine aluminum particles. *Combustion and Flame*, 156(11) :2213–2216, 2009. [21](#), [22](#)
- M. Muller. *Modélisation de la combustion de gouttes d'aluminium dans les conditions d'un moteur fusée à propergol solide*. PhD thesis, 2019. [71](#), [72](#), [85](#), [108](#)
- M. Nogue, R. Devillers, G. Le Besnerais, and N. Cesco. Particle detection & size evaluation in solid propellant flames via experimental image analysis to improve two-phase flow simulation in rocket motors. 2018. [17](#)
- S. E. Olsen and M. Beckstead. Burn time measurements of single aluminum particles in steam and CO₂ mixtures. *Journal of propulsion and power*, 12(4) :662–671, 1996. [35](#)

- O. Orlandi, M. Plaud, F. Godfroy, S. Larrieu, and N. Cesco. Aluminium droplets combustion and SRM instabilities. *Acta Astronautica*, 158 :470–479, 2019. [15](#)
- T. Parr, C. Johnson, D. Hanson-Parr, K. Higa, and K. Wilson. 39th jannaf combustion subcommittee meeting, 2003. [24](#)
- S. M. Pekkanen. Governing the new space race. *AJIL Unbound*, 113 :92–97, 2019. [1](#)
- J. L. Prentice. Aluminum droplet combustion : rates and mechanisms in wet and dry oxidizers. Technical report, NAVAL WEAPONS CENTER CHINA LAKE CA, 1974. [31](#), [32](#), [35](#), [38](#)
- J. L. Prentice and L. Nelson. Differences between the combustion of aluminum droplets in air and in an oxygen–argon mixture. Technical report, Naval Weapons Center, China Lake, Calif. Michelson Labs. ; Sandia Corp . . . , 1967. [40](#), [79](#)
- E. Price and R. Sigman. Combustion of aluminized solid propellants. *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*(A 00-36332 09-28), Reston, VA, American Institute of Aeronautics and Astronautics, Inc.(*Progress in Astronautics and Aeronautics.*, 185 :663–687, 2000. [10](#)
- E. Price, W. Mayer, W. Strahle, S. Samant, and E. Powell. The fire environment of a solid rocket propellant burning in air. Technical report, DTIC Document, 1979. [10](#)
- A. Rai, D. Lee, K. Park, and M. R. Zachariah. Importance of phase change of aluminum in oxidation of aluminum nanoparticles. *The Journal of Physical Chemistry B*, 108(39) : 14793–14795, 2004. [25](#)
- I. Ranc-Darbord, G. Baudin, M. Genetier, D. Ramel, P. Vasseur, J. Legrand, and V. Pina. Emission of gas and Al₂O₃ smoke in Gas–Al particle deflagration : Experiments and emission modeling for explosive fireballs. *International Journal of Thermophysics*, 39 (3) :36, 2018. [74](#)
- W. Ranz, W. R. Marshall, et al. Evaporation from drops. *Chem. eng. prog.*, 48(3) :141–146, 1952. [15](#)
- R. Raun and M. Beckstead. A numerical model for temperature gradient and particle effects on Rijke burner oscillations. *Combustion and flame*, 94(1-2) :1–24, 1993. [15](#)
- S. Rossi, E. L. Dreizin, and C. K. LAW. Combustion of aluminum particles in carbon dioxide. *Combustion science and technology*, 164(1) :209–237, 2001. [35](#), [36](#), [39](#), [95](#), [96](#), [102](#), [113](#)
- V. Sarou-Kanian, F. Millot, and J.-C. Rifflet. Surface tension and density of oxygen-free liquid aluminum at high temperature. *International journal of Thermophysics*, 24(1) : 277–286, 2003. [31](#)
- V. Sarou-Kanian, J.-C. Rifflet, F. Millot, G. Matzen, and I. Gökalp. Influence of nitrogen in aluminum droplet combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(2) :2063–2070, 2005a. [35](#), [39](#), [41](#), [61](#)
- V. Sarou-Kanian, J.-C. Rifflet, F. Millot, E. Véron, T. Sauvage, and I. Gökalp. On the role of carbon dioxide in the combustion of aluminum droplets. *Combustion science and technology*, 177(12) :2299–2326, 2005b. [36](#)

- J. Servaites, H. Krier, J. Melcher, and R. Burton. Ignition and combustion of aluminum particles in shocked H₂O/O₂/Ar and CO₂/O₂/Ar mixtures. *Combustion and flame*, 125 (1-2) :1040–1054, 2001. [31](#), [35](#), [38](#)
- M. Simoes. *Modélisation eulérienne de la phase dispersée dans les moteurs à propergol solide, avec prise en compte de la pression particulaire*. PhD thesis, 2006. [13](#)
- D. R. Stull and e. H. Prophet. Tables, janaf thermochemical. *Natl. Stand. Ref. Data Ser., Natl. Bur. Stand.*, (37), 1971. [108](#)
- M. A. Trunov, M. Schoenitz, and E. L. Dreizin. Ignition of aluminum powders under different experimental conditions. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics : An International Journal Dealing with Scientific and Technological Aspects of Energetic Materials*, 30(1) :36–43, 2005. [24](#), [25](#)
- M. J. Turner. *Rocket and spacecraft propulsion : principles, practice and new developments*. Springer Science & Business Media, 2008. [9](#)
- S. Turns, S. Wong, and E. Ryba. Combustion of aluminum-based slurry agglomerates. *Combustion Science and Technology*, 54(1-6) :299–318, 1987. [34](#)
- T. Ueda, O. Imamura, K. Okai, M. Tsue, M. Kono, and J. Sato. Combustion behavior of single droplets for sooting and non-sooting fuels in direct current electric fields under microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute*, 29(2) :2595–2601, 2002. [48](#)
- F. Vuillot. Point sur les recherches relatives à la stabilité de fonctionnement du MPS P 230 d'Ariane 5. *Tiré à part- Office national d'études et de recherches aérospatiales*, 1998. [13](#)
- E. R. Wainwright, S. V. Lakshman, A. F. Leong, A. H. Kinsey, J. D. Gibbins, S. Q. Arlington, T. Sun, K. Fezzaa, T. C. Hufnagel, and T. P. Weihs. Viewing internal bubbling and microexplosions in combusting metal particles via x-ray phase contrast imaging. *Combustion and Flame*, 199 :194–203, 2019. [70](#)
- E. Washburn, J. Webb, and M. Beckstead. The simulation of the combustion of micrometer-sized aluminum particles with oxygen and carbon dioxide. *Combustion and Flame*, 157(3) :540–545, 2010. [30](#)
- J. Widener and M. Beckstead. Aluminum combustion modeling in solid propellant combustion products. In *34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit*, page 3824, 1998. [38](#)
- R. Wilson Jr and F. Williams. Experimental study of the combustion of single aluminum particles in O₂/Ar. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 13, pages 833–845. Elsevier, 1971. [31](#), [32](#), [35](#), [51](#)
- R. A. Yetter, G. A. Risha, and S. F. Son. Metal particle combustion and nanotechnology. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(2) :1819–1838, 2009. [9](#)
- S. Yuasa, S. Sogo, and H. Isoda. Ignition and combustion of aluminum in carbon dioxide streams. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 24, pages 1817–1825. Elsevier, 1992. [91](#)
- A. Zenin, G. Kusnezov, and V. Kolesnikov. Physics of aluminum particle combustion at convection. In *38TH Aerospace Sciences Meeting and exhibit*, page 849, 2000. [35](#), [37](#), [38](#), [72](#)

- A. Zenin, G. Kusnezov, and V. Kolesnikov. Physics of aluminum particle combustion at ultrasonic levitation. In *39th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, page 472, 2001. [35](#)
- F. Zheng, X. Qu, and E. Davis. An octopole electrodynamic balance for three-dimensional microparticle control. *Review of Scientific Instruments*, 72(8) :3380–3385, 2001. [47](#)

Étude expérimentale de la combustion d'une particule d'aluminium isolée : influence de la pression et de la composition de l'atmosphère oxydante

Résumé : Les poudres d'aluminium possèdent des propriétés énergétiques intéressantes et sont couramment intégrées à la composition de certains propergols solides pour améliorer les performances des systèmes de propulsion. Néanmoins, la présence d'une phase dispersée au sein de l'écoulement propulsif peut altérer la stabilité des moteurs à propergol solide (MPS) et l'utilisation du potentiel énergétique des particules d'aluminium nécessite d'être optimisée pour accroître davantage le rendement moteur. Des enjeux majeurs sont alors associés à la modélisation du processus réactionnel des gouttes afin d'améliorer les outils numériques prédictifs utilisés pour concevoir les MPS. Cependant, la compréhension du phénomène de combustion des particules d'aluminium reste encore limitée et les données expérimentales disponibles s'avèrent être lacunaires, en particulier pour le cadre d'application des MPS. En ce sens, basée sur un dispositif permettant d'isoler une particule métallique en lévitation dans un milieu contrôlé, l'étude proposée a permis d'obtenir des résultats inédits dans cette thématique. Des axes de réflexion essentiels sur la phénoménologie de réaction ont été introduits, principalement sur les effets résultant de l'accumulation de produits condensés en surface de la goutte durant la combustion. Différentes hypothèses ont ainsi été discutées quant aux mécanismes impliqués dans ce processus. Une quantité significative de données a également été rapportée sur les paramètres de combustion caractéristiques, permettant de préciser la contribution respective des paramètres définissant le milieu réactif. Les efficacités oxydantes du O_2 , du CO_2 et du CO ont été quantifiées, le monoxyde de carbone agissant alors sensiblement comme un inerte, au même titre que le N_2 . L'effet de la pression sur le temps de réaction a aussi été déterminé et s'avère être relativement limité. Enfin, une nouvelle loi empirique a été formulée afin d'estimer le temps de combustion des gouttes d'aluminium d'après leur taille et les conditions ambiantes, suggérant en outre que le processus réactionnel global de l'aluminium ne peut être convenablement décrit par la loi théorique du D^2 .

Mots clés : Propulsion solide - Aluminium - Combustion

Experimental study of a single burning aluminum particle: influence of pressure and composition of the oxidizing atmosphere

Abstract: Aluminum powders have interesting energy properties and are currently integrated in some solid propellants to improve the performances of propulsion systems. However, the effects induced by the presence of dispersed particles within the propellant flow can alter the stability of the solid rocket motors (SRM) and the use of the energy potential of the aluminum particles can be optimized to further enhance engine efficiency. Therefore, modeling of the aluminum reaction process is a major issue to improve the predictive numerical tools used for SRM development. However, the understanding of the aluminum combustion is still limited and available experimental data are scarce, especially for SRM applications. Thus, based on a specific setup allowing to levitate a single aluminum particle in a controlled environment, this study has led to interesting results. Essential lines of research were introduced on the reaction phenomenology, mainly on the effects resulting from the accumulation of condensed products on the droplet surface during combustion. Different assumptions have also been discussed concerning the mechanisms involved in this process. In addition, a large amount of data was reported on characteristic combustion parameters, allowing the contribution of the parameters of the reactive environment to be defined. The oxidizing efficiency of O_2 , CO_2 and CO has been quantified and carbon monoxide seems to act as an inert gas, as well as N_2 . The effect of pressure on the burning time has also been determined and is almost limited. Finally, a new empirical law has been established to estimate the burning time of aluminum droplets according to their initial diameter and ambient conditions, suggesting that the aluminum reaction process cannot be described by the theoretical D^2 law.

Keywords: Solid propulsion - Aluminum - Combustion