

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

*ÉCOLE DOCTORALE : Énergie, Matériaux, Sciences de la Terre et
de l'Univers*

ICARE – CNRS UPR3021

THÈSE présentée par :

Valentin GLASZIOU

Soutenue le : 20 mars 2024

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

Discipline/S spécialité : Énergétique

Étude expérimentale des mécanismes de combustion de particules d'aluminium en milieu gazeux sous pression

THÈSE dirigée par :

M. HALTER Fabien

M. CHAUVEAU Christian

M. COURTIAUD Sébastien

Professeur, Université d'Orléans

Directeur de recherche, ICARE – CNRS

Chargé de recherche, CEA-Gramat

RAPPORTEURS :

M. BRILHAC Jean-François

Mme CUENOT Bénédicte

Professeur, Université de Haute-Alsace

Chercheur Senior, CERFACS

PRÉSIDENT DU JURY :

M. SELLE Laurent

Directeur de recherche, IMFT-CNRS

JURY :

M. DEVILLERS Robin

M. GALLIER Stany

Ingénieur de recherche, ONERA

Ingénieur de recherche, Ariane Group

Remerciements

Durant ces trois années, j'ai pu échanger avec de nombreuses personnes, elles m'ont appris, enseignées et aidées durant cette thèse et je leur en suis très reconnaissant. J'espère être capable de vous rendre ne serait-ce qu'une petite partie de ce que vous m'avez permis d'accomplir.

Tout d'abord, je souhaite remercier Jean-François BRILHAC et Bénédicte CUENOT d'avoir examiné ce manuscrit ainsi que de leurs rapports riches de conseils. Également, je souhaite remercier Laurent SELLE d'avoir accepté de présider mon jury de thèse. Je souhaite aussi remercier mes rapporteurs, mon président de jury et aussi Robin DEVILLIERS et Stany GALLIER d'avoir accepté de faire partie de mon jury et d'avoir assisté à ma soutenance de thèse. Les échanges que nous avons tous pu avoir à la suite de ma présentation ont été très intéressants et constructifs.

Je souhaite remercier la Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives (CEA) d'avoir financé ces travaux de thèse et particulièrement le centre du CEA de Gramat qui m'a accompagné sur mes recherches. Également, j'adresse mes remerciements à l'Institut de Combustion Aérodynamique, Réactivité et Environnement (ICARE), unité propre de recherche du Centre National de Recherche Scientifique (CNRS) de m'avoir permis d'accéder à leurs installations de recherche.

Ces travaux furent menés à terme grâce à l'implication de mes encadrants durant les trois années de ma thèse et je les en remercie. Tout d'abord Fabien HALTER, je te remercie de m'avoir fait confiance en premier lieu pour réaliser mon stage de deuxième année de Master avec la possibilité de continuer avec toi pour la thèse. Fabien, je te remercie d'avoir été de très bon conseil, de m'avoir guidé durant ces différentes années. Tu m'as fait progresser dans ma rigueur scientifique, je t'en remercie. Ensuite, je tiens à remercier Christian CHAUVÉAU. Ton aide et tes précieux conseils m'ont permis d'avancer et de mener à bien les expériences présentes dans cette thèse. Le lévitateur étant unique et très complexe, je ne pouvais pas espérer mieux que toi et Fabien pour m'accompagner sur ses expériences. Enfin, je tiens à remercier Sébastien COURTIAUD qui m'a accompagné dans le monde des explosifs qui m'était inconnu. Je suis heureux d'avoir pu apporter ma pierre à l'édifice des explosifs aluminisés dont les prémises remontent à ta thèse. Merci pour ta patience et tes nombreuses relectures. Je pense avoir fait de nets progrès dans ma rédaction et c'est en grande partie grâce à toi. Aussi je voulais tous les trois vous remercier pour les échanges que nous avons eus, ils m'ont permis de devenir le jeune chercheur que je suis à la fin de cette thèse.

Je souhaite adresser des remerciements aux membres du laboratoire ICARE ainsi que de celui du CEA de Gramat de m'avoir accueilli au sein de leurs équipes, et particulièrement

à Marc GENTIER pour ses conseils durant mes venus à Gramat. J'ai pu rencontrer de nombreuses personnes qui, de quelque façon que ce soit, m'ont un peu soutenu et je vous en remercie.

À tous les collègues que j'ai pu avoir, je vous remercie d'avoir partagé avec moi ces trois années qui resteront gravées dans ma mémoire, que ce soit à ICARE ou dans le laboratoire LMDT, je fus toujours accueilli dans la bonne humeur. Particulièrement, je voudrais remercier, mon comparse de sujet Antoine GOSSET, avec qui les discussions ont toujours été très intéressantes. Tu as fait découvrir le monde de la modélisation à un novice totale et je t'en remercie. Aussi je suis content d'avoir pu découvrir Séoul avec toi, grâce à toi le voyage a été encore plus amusant. Je te souhaite de continuer à t'épanouir dans ta vie professionnelle et personnelle. Je tiens aussi à adresser quelques mots à mon équipe d'ICARE. Samuel, je suis heureux d'avoir pu te rencontrer. Tu étais mon voisin de manip pendant une grande partie de ma thèse et nos échanges furent toujours très agréables. Tu es devenu un ami sur lequel je peux compter et je t'en remercie. Antoine, Alka et Victor, je suis content d'avoir pu discuter de nombreuses fois avec vous, et je vous remercie pour votre bonne humeur quotidienne. Hugo K., sache que tu es l'une des personnes qui m'ont le plus impressionné durant ma thèse. Tu es quelqu'un de bosseur et de passionné, ce qui te rend passionnant. Ayant des sujets très proches, nous avons pu échanger de nombreuses fois et ses discussions furent toujours captivantes. Enfin le petit dernier de l'équipe, Dylan, je suis content que tu prennes la suite de mes travaux. Progressivement, j'ai pu te découvrir et te former sur le lévitateur et je suis persuadé que le sujet est entre de bonnes mains. Également, je souhaite remercier mes autres collègues doctorants d'ICARE avec qui j'ai pu partager plein de bons moments. Dans les premiers que j'ai rencontrés, je remercie particulièrement Maxence qui fut la première personne à m'intégrer au groupe des doctorants, Nesrine avec qui j'ai partagé de grands fous rires, Hugo C. et Camille qui sont des personnes aux grands cœurs. Merci au Fast, particulièrement à Vicente avec qui j'ai partagé de bons moments suite à nos discussions improbables, Léo pour ta capacité à me faire rire avec un regard et Hugo N. notre mauvais perdant préféré et surtout un ami en or. En parlant des Fast je souhaite remercier la grande patronne Viviana LAGO qui m'a expliqué certains principes de spectrométrie qui m'ont été bien utiles durant ma thèse, mais aussi pour ta gentillesse. Dans les personnes que je n'ai pas encore citées, je souhaite aussi remercier Fanny, une personne qui a le cœur dans la main (tu peux là noter cela), Laura faisant aussi partie des personnes qui m'ont impressionné durant cette thèse et Giorgia qui m'a appris à faire attention au buffalo. Enfin dans les petits derniers de notre groupe du midi j'ai une pensée pour Clémence et Antoine.

Maintenant, j'aimerais remercier mes parents, mon frère et ma belle-sœur, mais aussi plus généralement ma famille, qui m'ont suivi et encouragé durant les moments compliqués de la thèse. Je vous suis reconnaissant de m'avoir écouté et même parfois conseillé. À mes meilleurs amis, Luc, Ludo, Max, Hug's et Ju je vous adresse aussi mes plus grands remerciements d'être là pour moi tous les jours. Je vous aime tous.

Pour finir, mes derniers mots de gratitude vont à toutes les personnes que je n'ai pas encore remerciées, mais dont le soutien a été précieux pour moi tout au long de ce parcours. Tous à votre manière, vous avez contribué aux résultats de cette thèse, et je vous en suis reconnaissant.

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	iii
Introduction générale	1
Les applications de la combustion métallique	1
Les objectifs de la thèse	3
Chapitre I : Post-combustion des charges explosives.....	5
I.1. Grandeurs physiques d'intérêt.....	5
I.1.1. Surpression maximale :	5
I.1.2. Impulsion :	6
I.1.3. Pression quasi-statique :	7
I.2. Explosifs.....	7
I.2.1. Explosifs monomoléculaires :	7
I.2.2. Explosifs primaires et secondaires :	8
I.2.3. Explosifs homogènes et hétérogènes :	8
I.3. Détonation.....	10
I.4. Postcombustion.....	12
I.4.1. Phénoménologie de la postcombustion.....	12
I.4.1.1. Phase d'expansion	13
I.4.1.2. Phase d'implosion :	14
I.4.1.3. Phase de rechoc :	14

I.4.1.4. Phase de mélange asymptotique :	14
I.4.2. Réactions chimiques de postcombustion	14
I.5. Impact de l'aluminium pour un explosif.....	16
Chapitre II : Combustion de l'aluminium	17
II.1. Historique des études sur la combustion de l'aluminium	17
II.1.1. Méthodes d'analyse expérimentales	17
II.1.2. Généralités	19
II.1.3. Influence des paramètres ambiants	20
II.1.3.1. Pression	20
II.1.3.2. Température.....	21
II.1.3.3. Composition chimique	22
II.2. Description fondamentale de la combustion de l'aluminium.....	25
II.2.1. Régime de combustion	25
II.2.1. Phénoménologie de la combustion d'une particule d'aluminium.....	29
II.2.1.1. Allumage	29
II.2.1.2. Combustion	30
II.2.1.3. Extinction.....	32
Chapitre III : Dispositif expérimental.....	33
III.1. Système de lévitation électrodynamique	34
III.2. Environnement de combustion	37
III.3. Système d'allumage : Laser CO ₂	38
III.4. Diagnostics optiques	40
III.4.1. Photomultiplicateurs.....	40
III.4.1. Spectromètre	42
III.4.2. Caméra rapide	42

III.5. Procédure expérimentale	43
III.6. Analyse et traitement.....	45
III.6.1. Analyse des images/vidéo	45
III.6.2. Temps de combustion.....	50
III.6.2.1. Mesure manuelle par l'opérateur	50
III.6.2.2. Mesure par extrapolation du régime symétrique	51
III.6.2.3. Mesure par la méthode d'Olsen.....	52
III.6.3. Pyromètre (température globale)	54
III.6.3.1. Calcul de la température.....	54
III.6.3.2. Pyrométrie avec les photomultiplicateurs.....	55
III.6.3.3. Calibrage du pyromètre	58
III.6.3.4. Résultats du pyromètre.....	60
III.6.4. Spectromètre (température de la phase condensée et gazeuse)	63
III.6.4.1. Montage du spectromètre	63
III.6.4.2. Étalonnage du spectromètre.....	64
III.6.4.1. Température de la phase condensée	65
III.6.4.2. Température de la phase gazeuse	66
Chapitre IV : Résultats expérimentaux.....	69
IV.1. Étude de la phénoménologie	70
IV.1.1. Étude de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air.....	70
IV.1.1.1. Pression atmosphérique.....	71
IV.1.1.2. Effets de la pression.....	75
IV.1.1.3. Synthèse.....	81
IV.1.2. Examen de l'impact d'une atmosphère carbonée sur la combustion de l'aluminium.	82

IV.1.2.1.	Étude phénoménologique dans une ambiance CO ₂ pure	82
IV.1.2.2.	Impact de la pression dans une atmosphère carbonée	84
IV.1.2.3.	Synthèse	86
IV.1.3.	Combustion de l'aluminium dans une atmosphère humide	87
IV.1.3.1.	Étude phénoménologique dans une atmosphère composée de vapeur d'eau pure	87
IV.1.3.2.	Impact de l'oxydant : mélange H ₂ O/CO ₂	91
IV.1.4.	Réaction de l'aluminium dans une atmosphère humide représentative de produits de détonation	93
IV.2.	Mesure de la température	96
IV.2.1.	Température moyenne de la phase condensée	96
IV.2.1.1.	Combustion de l'aluminium dans l'air à basse pression.....	96
IV.2.1.2.	Combustion de l'aluminium dans l'air à haute pression	99
IV.2.1.3.	Synthèse	103
IV.2.2.	Température du monoxyde d'aluminium (AlO)	103
IV.2.2.1.	Synthèse	107
IV.2.3.	Conclusion sur la mesure de la température	107
IV.3.	Analyse du temps de combustion	108
IV.3.1.	Différences entre les méthodes de mesure du temps de combustion.....	108
IV.3.1.	Effets de la pression sur le temps de combustion	112
IV.3.2.	Étude de l'impact de l'environnement gazeux	115
IV.3.3.	Loi empirique du temps de combustion des particules d'aluminium	117
IV.3.1.	Bilan des résultats expérimentaux	120
Conclusions et perspectives		123
Bibliographie		127

Introduction générale

Les applications de la combustion métallique

La combustion n'est généralement pas associée aux métaux dans l'imaginaire collectif. Elle est plus généralement associée aux gaz, aux hydrocarbures ou alors au bois pour les combustibles solides. Toutefois, une grande majorité de personnes ont déjà assisté à une combustion métallique sans savoir que cela en était une. Un des premiers exemples remonte à la préhistoire, où l'utilisation du silex permettait, une fois percutée avec une roche riche en fer, de générer des étincelles, qui sont, des particules métalliques s'enflammant au contact de l'air grâce à l'énergie de la percussion, ce qui permit d'allumer des feux (Figure 1 [a]). Ce même principe fut utilisé dans les premières armes à feu où le silex fixé sur le « chien » venait percuter une lamelle de fer, appelée « batterie » pour provoquer des étincelles qui permettaient d'enflammer la poudre d'allumage. Les étincelles étaient encore des particules de fer qui entraient en combustion dans l'air à la suite du choc (Figure 1 [b]). Un autre exemple, plus commun à notre époque, est le spectacle pyrotechnique, dont les différentes couleurs sont provoquées par la combustion de métaux (Figure 1 [c]).



Figure 1 – Différents exemples de combustion métallique

Comme démontré précédemment, les particules métalliques furent beaucoup utilisées pour générer des étincelles afin d'initier une combustion. L'aluminium en particulier est étudié depuis plusieurs décennies comme vecteur énergétique potentiel pour la propulsion spatiale (Figure 2), des recherches plus récentes proposent son emploi dans le domaine du transport terrestre ou maritime (Figure 3). Les particules métalliques ne sont donc plus considérées uniquement comme de simples initiateurs de la combustion. De plus, elles peuvent aussi être utilisées comme sources d'énergie renouvelable dans l'industrie lourde. Par exemple, une brasserie néerlandaise (Royal Swinkels family brewers^[1]) utilise des particules de fer comme combustible dans son processus de brassage. Cette source d'énergie présente l'avantage d'être facilement stockable et renouvelable.

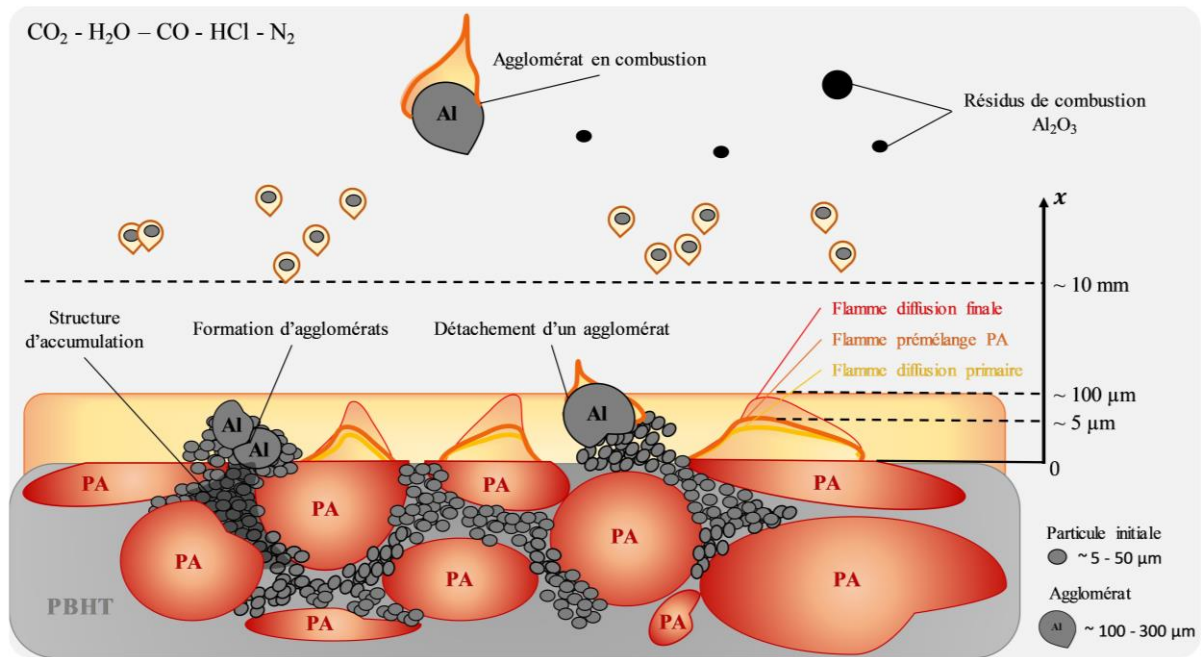


Figure 2 - Illustration détaillée du processus de combustion des propergols solides composites intégrant des poudres d'aluminium, dans le contexte d'application des propulseurs solides d'une fusée (Braconnier (2020)^[2]).

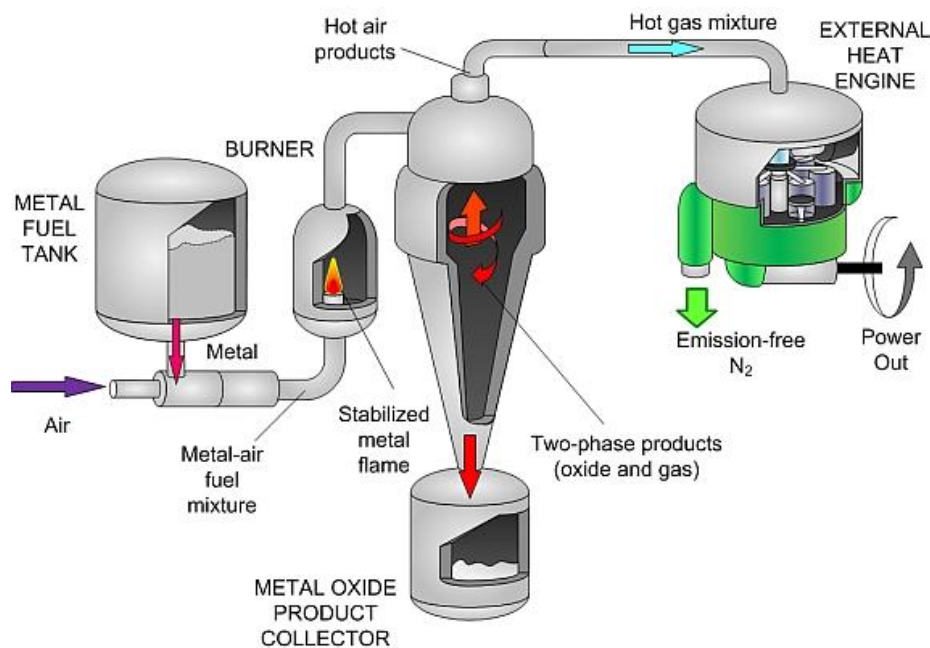


Figure 3 - Proposition de Bergthorson et al. (2015)^[3] d'une flamme métallique alimentant un moteur.

Les particules métalliques font l'objet d'études en raison de leurs caractéristiques uniques, notamment le cas de l'aluminium. Il possède une haute densité énergétique qui est supérieure à celle de l'essence et du diesel. Cependant, il présente une énergie spécifique comparable à celles des hydrocarbures usuels (Figure 4). Néanmoins, leur potentiel de recyclage est notable. Au cours du processus de combustion, les particules s'oxydent pour se transformer en oxyde métallique. Ce produit de combustion peut potentiellement être réutilisé après avoir été réduit par diverses méthodes. Il est alors reconverti en métal, prêt à être brûlé de nouveau.

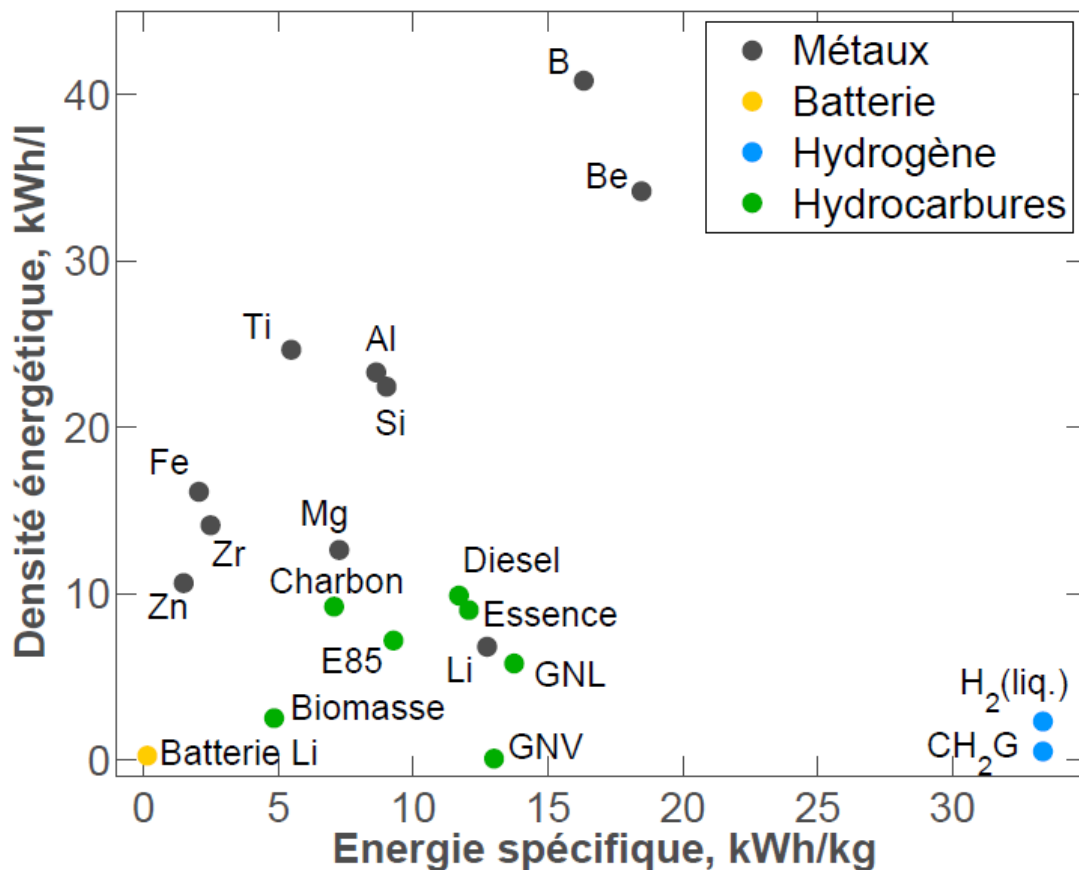


Figure 4 - Comparaison des valeurs des densités énergétiques pour différents combustibles (Bergthorson et al. (2015)^[3]). Abréviation utilisée : E85, superéthanol ; GNL, Gaz Naturel Liquéfié ; GNV, Gaz Naturel Véhiculaire ; CH₂G, Gaz d'Hydrogène compressé. Les métalloïdes (B, Si) sont catégorisés comme des métaux.

Le secteur de la Défense s'intéresse vivement à l'usage de particules métalliques, en particulier d'aluminium, qui constitue une source d'énergie additionnelle pour les explosifs. Les particules d'aluminium sont chauffées par l'onde de détonation, dispersées avec l'expansion des gaz et brûlent dans les produits de détonation et l'air. Cela génère une chaleur supplémentaire au sein de la boule de feu, ce qui la rend encore plus lumineuse comme l'ont expliqué Cooper et al. (2006)^[4]. Comprendre la combustion des particules d'aluminium dans ces conditions spécifiques est crucial pour mieux cerner les problématiques associées. Cela peut concerner la connaissance des temps de combustion typiques dans ces conditions, les températures produites pendant la combustion, ou encore la phénoménologie de réaction associée. Ainsi, une meilleure compréhension du phénomène et la constitution de bases de données sur cette source d'énergie nous permettront, à terme, d'utiliser l'aluminium de manière plus efficace et de modéliser plus précisément la postcombustion.

Les objectifs de la thèse

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans une étude du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives (CEA). Elle a débuté par la thèse de Courtiaud (2017)^[5], qui portait sur les instabilités à la périphérie de la boule de feu et la modélisation numérique de la postcombustion des charges explosives sans toutefois prendre en compte l'aluminium.

La thèse de Suarez (2020)^[6] a fait suite à ces travaux et avait pour objectif de développer et de valider un modèle de combustion diphasique de l'aluminium dans l'air, permettant la modélisation de la postcombustion avec des particules inertes et réactives. Nos travaux sont menés en continuité des recherches précédentes et en parallèle des travaux de thèse de Gosset (2024)^[7], réalisés à l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT). L'objectif de cette thèse numérique est de développer un nouveau modèle de combustion, dit intégral, qui repose sur l'emploi d'une loi décrivant le temps de combustion. Ce travail de thèse se concentre sur l'aspect expérimental de l'étude. Il a pour objectif d'établir la loi de combustion utilisée dans la thèse numérique et d'apporter une meilleure compréhension des phénomènes observés de façon à potentiellement améliorer les modèles de combustion.

L'étude expérimentale constituée par ces travaux a été réalisée à l'Institut de Combustion, Aérothermique, Réactivité et Environnement (ICARE) du Centre National de Recherche Scientifique (CNRS), à Orléans. Elle s'inscrit dans la continuité des travaux de thèse de Braconnier (2020)^[2] qui portaient sur l'étude expérimentale de la combustion de particules d'aluminium dans des conditions représentatives des Moteurs à Propergol Solide (MPS). Ces travaux avaient pour objectif d'améliorer la description fondamentale du phénomène et d'accroître les capacités prédictives des codes de simulation. Les objectifs de cette thèse sont similaires, mais l'environnement de postcombustion étudié diffère légèrement.

Le manuscrit est structuré en trois sections principales pour répondre de manière optimale à la question de l'étude expérimentale de la combustion de particules d'aluminium dans un milieu gazeux sous pression. Premièrement, il convient d'introduire les principes fondamentaux pour la compréhension du sujet abordé. À cet effet, une revue de la littérature sur la postcombustion des charges explosives sera proposée, suivie d'une introduction des principes fondamentaux de la combustion de l'aluminium. Après cette section, le dispositif expérimental sera détaillé ainsi que les méthodes d'analyse développées et utilisées tout au long de la thèse. Enfin, dans une dernière partie, les résultats expérimentaux obtenus dans différents milieux réactifs seront présentés et analysés. Ces résultats permettront de fournir des pistes d'amélioration des modèles actuels et des informations inédites sur la combustion de particules d'aluminium dans des environnements de postcombustion, qui sont encore peu documentés.

Chapitre I : Post-combustion des charges explosives

Les explosions sont définies par Oran (2016)^[8] comme des phénomènes libérant de l'énergie dans l'espace plus rapidement qu'elle ne peut s'y répartir, entraînant alors la formation d'une onde de choc. Un exemple courant d'explosion est la détonation d'une charge explosive condensée. Ce phénomène est extrêmement exothermique et consiste en une onde de choc réactive, se propageant dans l'explosif solide qui se décompose en produits de détonation. Ces produits, au contact de l'air, peuvent à leur tour entrer en combustion, il s'agit de la phase de postcombustion. Ce phénomène participe grandement à l'énergie totale dégagée au cours de l'explosion. La compréhension de cette phase est le principal objectif de cette thèse. Elle s'inscrit dans la suite des études menées dans un premier temps par Courtiaud (2017)^[5] sur la modélisation de la postcombustion et des études sur la combustion de particules d'aluminium pendant cette phase par Suarez (2020)^[6]. Ce chapitre est composé de deux parties. La première partie est divisée en trois sections, qui tout d'abord décrivent les grandeurs physiques d'intérêt, ensuite donnent une définition des explosifs et enfin décrivent le phénomène de détonation. La seconde partie décrit quant à elle le phénomène de postcombustion et son intérêt pour l'emploi des explosifs.

I.1. Grandeurs physiques d'intérêt

La méthode d'évaluation des effets ou de l'efficacité d'une charge explosive passe par la mesure de l'impulsion et la surpression maximale, qui sont des grandeurs physiques couramment utilisées dans le domaine des explosifs. Pour le cas des détonations en milieu confiné, un autre paramètre est étudié, il s'agit de la pression quasi-statique. Les deux premières grandeurs physiques sont illustrées sur le schéma de la représentation du souffle provoqué par une charge explosive en milieu non confiné (Figure I-1).

I.1.1. Surpression maximale :

La surpression maximale, notée $\Delta P_b = P_b - P_0$, est la valeur de la surpression obtenue au passage du choc primaire. Elle correspond à l'effort maximal qu'une structure va subir à la suite de la détonation d'un explosif. Ce pic de pression n'est quasiment pas impacté par la postcombustion. L'ajout d'aluminium dans l'explosif n'aura alors que peu d'impact sur P_b . Après ce pic de surpression, la diminution de la pression est très rapide.

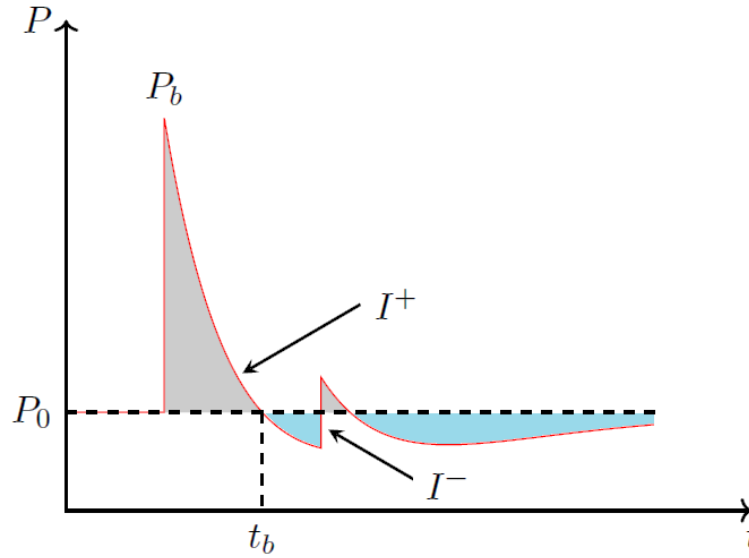


Figure I-1 — Schéma d'un suivi temporel de la pression obtenu à partir d'une charge explosive en milieux non confinés (Courtiaud (2017)^[5]).

Le profil de pression en aval du choc primaire peut être approximé avec une bonne précision par l'Équation I-1 proposée par Friedlander, dans le cas d'une explosion ponctuelle d'une puissance suffisante :

$$P(t) = P_b \times \exp\left(-\frac{t}{t_b}\right) \times \left(1 - \frac{t}{t_b}\right) \quad \text{Équation I-1}$$

où P_b étant la pression maximale du choc primaire de la détonation et t_b est la durée de la première phase d'impulsion positive, représentant le choc primaire. Cette équation ne prend pas en compte le choc secondaire.

I.1.2. Impulsion :

L'impulsion positive, notée I^+ , est définie comme étant l'intégrale de la surpression enregistrée sur la période suivant l'explosion où la surpression est positive et qui est représentée en gris sur la Figure I-1. Elle décrit l'aptitude de l'explosif à exposer une cible à une onde de souffle prolongé. Ce paramètre est fonction de la distance à la charge, il doit être défini en chaque point de l'écoulement. Elle est exprimée par l'Équation I-2 :

$$I^+ = \int_0^{\infty} (P - P_0)_{P>P_0} dt \quad \text{Équation I-2}$$

L'ajout d'aluminium dans les explosifs permet d'augmenter significativement l'impulsion positive, car les réactions ayant lieu pendant la postcombustion participent grandement à l'augmentation de la durée de la phase positive et de la pression.

L'impulsion peut également être calculée sur l'intervalle de temps où la surpression est négative. Il s'agit de l'impulsion négative, notée I^- , représentée en bleu sur la Figure I-1 et dont la formule est donnée par l'Équation I-3 :

$$I^- = \int_0^{\infty} (P - P_0)_{P < P_0} dt \quad \text{Équation I-3}$$

La mesure de ce paramètre permettra de déterminer l'importance des éventuels barotraumatismes provoqués durant l'explosion. Cette dépression peut être la cause de différentes lésions internes, comme le montre l'étude de Turker (2016)^[9], qui enregistre des dommages aux poumons.

I.1.3. Pression quasi-statique :

Le dernier paramètre est la pression quasi-statique. Dans l'hypothèse où l'on considère qu'un explosif est placé dans un espace confiné et adiabatique, ce paramètre est la pression d'équilibre obtenue après la détonation de l'explosif. Cette valeur est grandement supérieure à la pression initiale en raison de l'augmentation radicale du volume de la matière explosive au cours de la détonation. L'ajout d'aluminium dans les explosifs permet d'augmenter cette grandeur physique, en raison de l'apport de chaleur qui résulte de la postcombustion. La surpression quasi-statique est en général d'une dizaine de bars dans les configurations usuelles.

I.2. Explosifs

Thouvenin (1997)^[10] définit un élément explosif comme une substance au sein de laquelle peuvent se propager des réactions de combustion de façon autonome. Pour les explosifs, il existe deux régimes de combustion qui sont la détonation et la déflagration. D'après Clavin et al. (2016)^[11] la détonation est une onde de choc réactive se déplaçant à vitesse supersonique par rapport à l'explosif. Ils définissent aussi la déflagration comme une transformation quasi isobare se propageant à une vitesse subsonique dans le milieu réactif. La détonation se différencie de la déflagration par l'augmentation de la pression qu'elle induit. La dynamique des produits de réaction fournit une indication du mode de combustion du fait de leur accélération en sens inverse de la propagation du front dans le cas d'une déflagration et dans le même sens dans le cas d'une détonation. Les explosifs peuvent être initialement présents sous différentes phases : solide comme pour la HMX (High Melting point eXplosive) ou le RDX (cyclotriméthylènetrinitramine), liquide comme le nitrométhane et même gazeux avec par exemple des mélanges hydrogène/oxygène. L'aluminium est exclusivement ajouté aux explosifs condensés qui sont généralement sous-oxygénés.

L'état physique est une première méthode de classification des explosifs. Néanmoins, il est également possible de les classer selon d'autres critères :

I.2.1. Explosifs monomoléculaires :

Il s'agit de substances explosives composées d'une unique molécule qui contient l'oxydant et le combustible. La dissociation de la molécule est donc nécessaire pour réaliser les réactions exothermiques. Le trinitrotoluène (TNT) fait partie de cette catégorie, ainsi que le HMX et le RDX. Ces explosifs doivent se dissocier pour amorcer la réaction exothermique.

I.2.2. Explosifs primaires et secondaires :

Les explosifs primaires et secondaires peuvent être différenciés en fonction de leur propension à déflagrer et/ou à détoner. Les explosifs primaires, par exemple l'azoture de plomb et le fulminate de mercure, ne peuvent que détoner. Ceux classés secondaires, tels que la nitroglycérine ou le TNT, peuvent très bien détoner ou déflagrer. Les explosifs primaires sont utilisés essentiellement comme initiateur de la réaction à cause de leur grande sensibilité, et sont utilisés en quantité limitée (inférieure au gramme), du fait de leur extrême dangerosité. Les explosifs secondaires sont relativement plus sûrs à employer, car leur activation nécessite une grande quantité d'énergie. Leur détonation peut être initiée par celle d'un explosif primaire, plus sensible, d'où le nom d'explosif secondaire pour les désigner. En général, un liant est ajouté à ces explosifs, celui-ci peut-être un explosif secondaire comme illustré sur la Figure I-2. Le TNT peut par exemple être utilisé comme liant dans certaines compositions explosives.

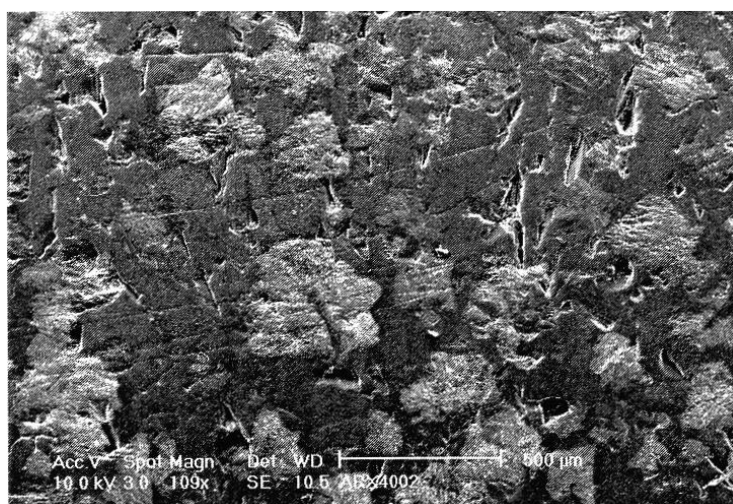


Figure I-2 — Coupe d'un explosif (TNT-ONTA) vu au microscope : on distingue les grains d'explosifs (ONTA) au milieu du liant actif (TNT) (Baudin (2013)^[12])

I.2.3. Explosifs homogènes et hétérogènes :

Les explosifs homogènes sont parfaitement réguliers dans leurs structures, et ils sont très peu courants parmi les explosifs solides. Seuls les mélanges gazeux, les explosifs liquides et de très rares explosifs solides comme le TNT le sont.

Au contraire, les explosifs hétérogènes, illustrés sur la Figure I-3, comportent plusieurs phases distinctes. La plupart des explosifs sont composés d'un mélange de cristaux d'explosifs et peuvent aussi contenir des liants inertes, comme le PBHT (polybutadiène hydroxytélchélique). Certaines compositions incluent également des particules métalliques de différentes natures (Turker (2016)^[13]), le plus souvent de l'aluminium comme le montre la Figure I-3. Il est alors commun de parler d'explosifs hétérogènes métallisés, ou aluminisés pour le cas spécifique de l'aluminium. Pendant l'explosion, les particules métalliques sont chauffées et dispersées au cours de la détonation, puis elles peuvent entrer en combustion aussi bien avec l'oxygène de l'air, qu'avec les produits de détonation, ce qui amplifie le phénomène de postcombustion et conduit à une augmentation de l'impulsion.

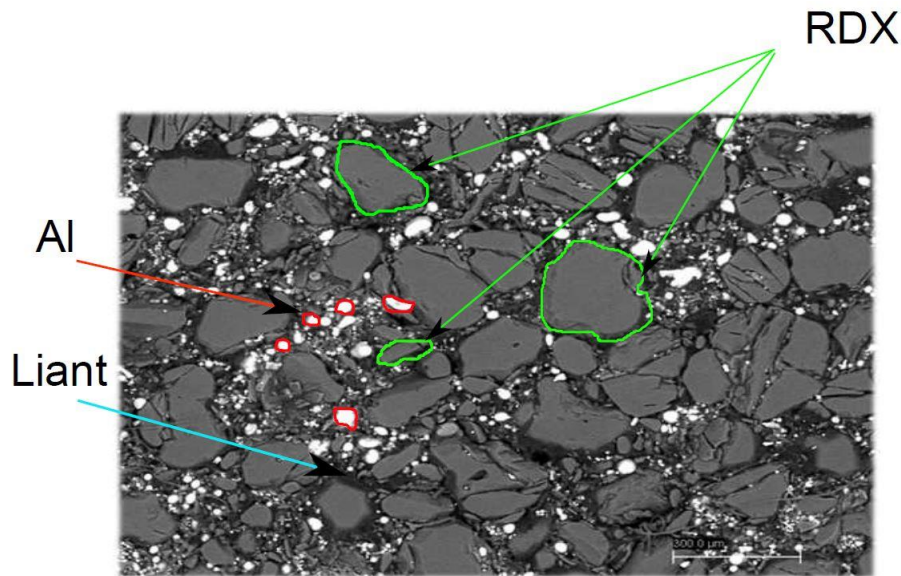


Figure I-3 — Coupe d'un explosif hétérogène métallisé (RDX-PBHT-Al) (Elia (2019)^[14]).

Ces travaux concernent les explosifs hétérogènes aluminisés et se concentrent sur la combustion de particules d'aluminium isolées dans un environnement de postcombustion. La répartition de la poudre d'aluminium est homogène dans l'ensemble de l'explosif. Les particules sont réparties en deux catégories de forme, l'une dite de « paillette », qui possède une forme sphérique, ou sous une forme dite de « flocon », qui est plutôt plate et allongée. La première forme offre une surface d'échange moins importante que la seconde.

Une loi de distribution log-normale est habituellement considérée pour la répartition de la taille des particules. Comme le démontre Dodds et al. (1993)^[15], elle est issue d'une loi de distribution normale. La densité de probabilité, notée f , est exprimée par l'Équation I-4 :

$$f = \frac{1}{\sigma_G \cdot \sqrt{2\pi} \cdot d_p} \cdot \exp\left(-\frac{(\ln(d_p) - \ln(d_G))^2}{2 \cdot (\ln(\sigma_G))^2}\right) \quad \text{Équation I-4}$$

où σ_G est l'écart-type géométrique, d_G est le diamètre moyen géométrique des particules et d_p le diamètre de la particule étudiée.

L'écart-type géométrique (σ_G) permet aussi de définir la largeur de la densité de distribution. Allen et al. (1991)^[16] établissent une relation pour calculer cette densité, qui est décrite par l'Équation I-5 :

$$\ln(d_{23}) = \ln(d_G) + 2,5 \cdot (\ln(\sigma_G))^2 \quad \text{Équation I-5}$$

avec d_{23} le diamètre de Sauter. Cette donnée est couramment utilisée pour décrire la granulométrie des particules d'aluminium dans les explosifs condensés. Il correspond au diamètre moyen pondéré par la surface des particules et se calcule avec l'Équation I-6 :

$$d_{23} = \frac{\sum n_i \cdot d_{p,i}^3}{\sum n_i \cdot d_{p,i}^2} \quad \text{Équation I-6}$$

où n_i est le nombre de particules, $d_{p,i}$ est le diamètre de ces particules.

Par conséquent, la distribution granulométrique des particules dans les explosifs condensés peut être définie comme le montre l'exemple suivant. Le Tableau I-1 résume les propriétés de l'explosif B2213A (mélange de RDX-PBHT avec des particules d'aluminium). La Figure I-4 décrit la répartition des particules pour cet explosif.

Paramètre	Valeur	Unité
ρ_{charge}	1591,3	kg/m^3
ρ_{Al}	2700	kg/m^3
Répartition massique (B2238A - Al)	77 : 23	-
R_{charge}	24,7	mm
d_G	30	μm
d_{23}	50	μm

Tableau I-1 — Caractéristiques d'une charge sphérique de B2213A (Suarez (2020) ^[6])

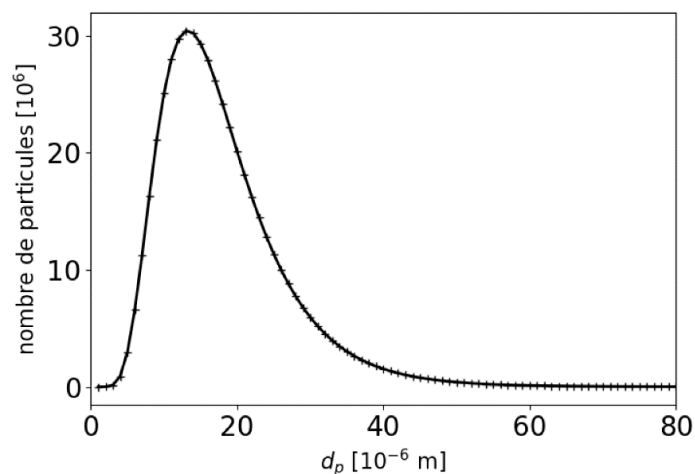


Figure I-4 — Distribution en taille des particules d'aluminium dans la B2213A (Suarez (2020) ^[6])

I.3. Détonation

L'onde de détonation diffère de l'onde de choc classique, car sa propagation se déroule dans un milieu réactif. La détonation s'accompagne d'un changement de phase avec le passage de l'explosif de la phase condensée (solide ou liquide) à l'état gazeux. Cette transformation se passe en un très court laps de temps, de l'ordre de la centaine de nanosecondes. Cet état gazeux est toutefois extrêmement dense et chaud avant la détente des produits de détonation. En fin de détonation, moment où l'onde sort de l'explosif, les pressions atteignent la centaine de kilobars et la température atteinte est de l'ordre de

plusieurs milliers de kelvins. La densité des produits de détonation est tellement élevée qu'elle est comparable à celle d'un solide, alors qu'ils sont gazeux. L'ordre de grandeur de la vitesse de l'onde de détonation est de 5 000 à 9 000 m.s⁻¹.

Une compression adiabatique de l'explosif est apportée par le choc de la détonation. Cela permet d'acquérir l'énergie nécessaire pour dissocier les molécules d'explosif, et donc les transformer en radicaux et en espèces simples dans une zone d'induction qui suit le choc. D'après les études de Lee (2008)^[17], en aval de cette zone, il est possible d'identifier des réactions de recombinaison rapides et fortement exothermiques. Elles entraînent la formation des produits de détonation.

À la suite de la détonation, les principaux produits de cette réaction sont H₂O, CO, CO₂, C_(s) et N₂. La composition exacte de ces produits dépend de celle de la charge et particulièrement de sa teneur en oxygène, car une forte sous-oxygénation favorisant la production de CO et de suies. Comme le montre Edri et al. (2013)^[18], avec des explosifs possédant très peu d'oxygène dans leur composition, tel que le TNT, il est possible de trouver des molécules de H₂ et CH₄ à la fin de la détonation. La majorité des produits de réaction sont sous forme gazeuse, excepté le carbone qui reste solide.

Dans le cas des explosifs aluminisés, les particules d'aluminium, initialement solides, ne changent pas d'état lors de la détonation. La pression très élevée des produits de détonation les maintient sous forme solide. Pendant la détente ultérieure, la diminution de pression qui en découle permet leur changement d'état, ainsi que leur oxydation. Ce changement de pression provoque aussi une diminution de la température de fusion. La dispersion des particules d'aluminium se déroule lors de la détonation.

La vitesse de l'onde de détonation varie en fonction de la densité de l'explosif considéré et du rayon de courbure de l'onde. Les simulations de Bukiet (1989)^[19] montrent qu'une augmentation de ces paramètres conduit à une augmentation de la vitesse de détonation. Lee (2008)^[17] démontre aussi que les détonations sphériques divergentes et stationnaires sont impossibles.

Bien que les charges explosives puissent prendre des formes diverses, la suite du chapitre se limite à des charges à symétrie sphérique ou cylindrique amorcées en leur centre. Cela permettra de donner des explications plus générales et claires sur ces explosifs que les cas avec une géométrie arbitraire.

La Figure I-5 représente une onde de détonation sphérique qui se propage vers l'extérieur dans une charge à symétrie sphérique. La vitesse initiale des gaz est celle mesurée lorsque l'onde de détonation touche la paroi de l'explosif. L'onde de choc n'est quasiment pas affectée par la postcombustion. Sa célérité et son amplitude diminuent en fonction de la distance parcourue. La masse de la charge explosive influe sur les conditions initiales de la postcombustion.

Il est important de noter que l'intérieur de la boule de gaz chaud n'est pas homogène, car le front de détonation est accompagné d'une détente. Il y a donc une importante différence d'état thermodynamique entre la zone périphérique où la température et la densité de gaz sont très élevées et l'intérieur où celles-ci sont plus basses.

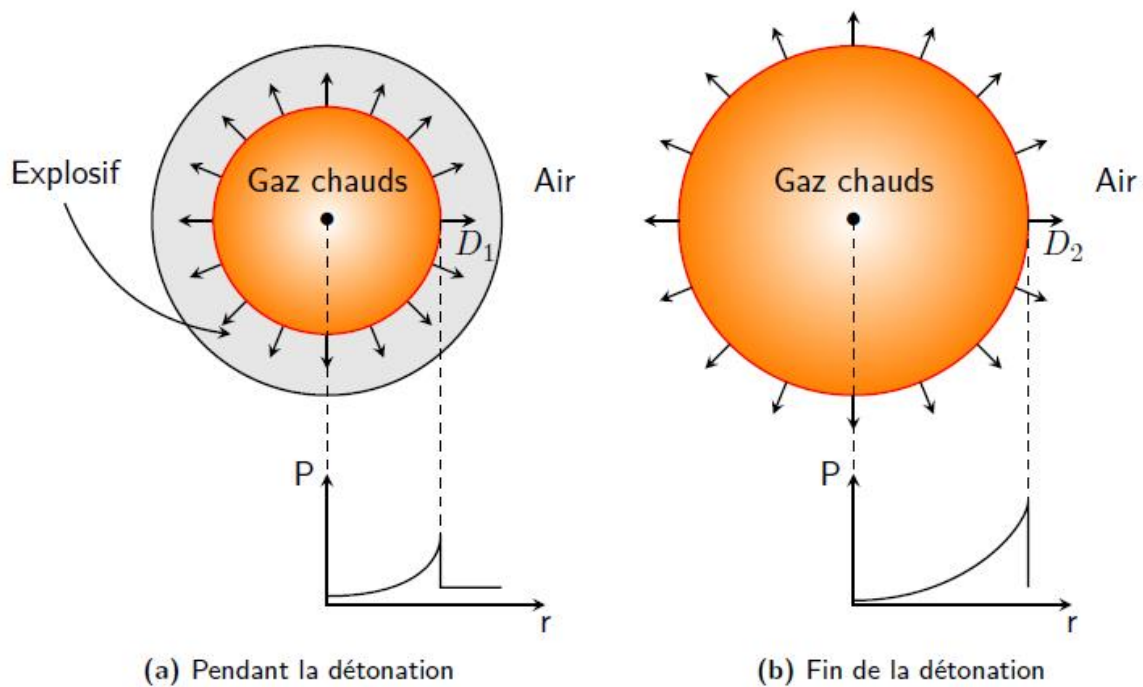


Figure I-5 — Onde de détonation sphérique dans un milieu explosif (Courtiaud (2017)^[5])

I.4. Postcombustion

I.4.1. Phénoménologie de la postcombustion

À la suite de la détonation, la phase de postcombustion débute. Pour simplifier la compréhension des phénomènes observés, ils sont supposés être issus d'une onde de détonation sphérique s'étant propagée à partir du centre d'une charge elle-même sphérique placée dans un milieu non confiné. Pendant cette phase, les produits de détonation se détendent autour de l'origine de l'explosion, et prennent l'apparence d'une boule de feu. Courtiaud (2017)^[5] présente les différents phénomènes qui composent cette phase sous forme de diagramme (Figure I-6). Il caractérise les principaux effets des phénomènes aérodynamiques sur un plan (r,t) , où r est le rayon avec comme origine le centre de l'explosion et où t est le temps compté à partir de l'amorçage de la détonation. Ce schéma n'est pas à l'échelle pour des raisons de praticité, car le rayon de la charge explosive est environ 25 fois plus petit que celui de la boule de feu.

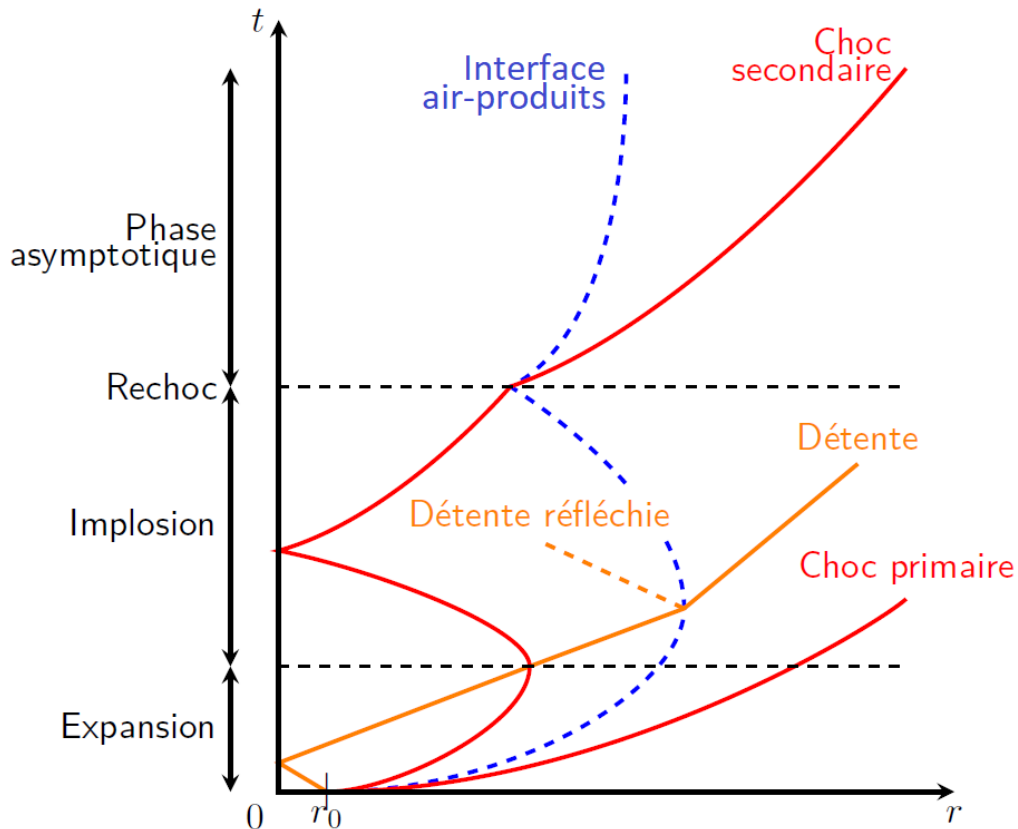


Figure I-6 — Diagramme de marche pour la phase de post-détonation (Courtiaud (2017)^[5]). En rouge : chocs primaire et secondaire, en bleu : interfaces air-produits de détonation, en orange : ondes de détente.

La suite de l'analyse se base sur les travaux d'Anisimov et al. (1983)^[20] et de Kuhl (1993)^[21] qui décrivent quatre phases successives après la détonation :

I.4.1.1. Phase d'expansion

À la suite de la détonation, une phase d'expansion très rapide de la boule de feu a lieu. Un choc sphérique, dit primaire, qui se propage vers l'extérieur. Il est créé à la suite de la compression de l'air ambiant par la boule de feu et se trouve être très intense. Un choc secondaire se forme, car la détente sphérique des gaz de la boule de feu entraîne une surdétente de ces derniers. Ce second choc se propage de l'interface de la boule de feu vers le centre celle-ci, dans le sens contraire de l'écoulement. Au vu de la vitesse très rapide des gaz, il est entraîné vers l'extérieur de la boule de feu, suivant le sens de l'écoulement. L'Équation I-7 proposée par Anisimov (1983)^[20] donne une approximation de l'accélération initiale, notée g .

$$g = \frac{c_1^2}{r_0} \left(\frac{\rho_0}{\rho_1} \right)^{\frac{1}{n}} \quad \text{Équation I-7}$$

où c_1 est la vitesse du son dans les produits de détonation, r_0 est le rayon initial de la charge, ρ_0 est la densité de l'air, ρ_1 est celle des produits de détonation, et n vaut 2 dans le cas d'une géométrie cylindrique et 3 dans celui d'une géométrie sphérique.

Des instabilités de Rayleigh-Taylor ((1883)^[22] & (1950)^[23]) sont engendrées par la décélération de l'interface et la différence de densité entre l'air et les produits de détonation. L'hétérogénéité de l'explosif et son état de surface sont probablement responsables des perturbations à partir desquelles les instabilités se développent.

Les instabilités évoluent de manière linéaire dans un premier temps, ensuite leur forme change pour prendre une allure dite en « champignons ». Ces structures sont caractéristiques de l'instabilité de Rayleigh-Taylor, l'évolution de celle-ci est alors non linéaire. Ces « champignons » forment peu à peu de nouvelles structures plus fines qui sont dues en majorité aux instabilités de Kelvin-Helmholtz ((1871)^[24] & (1868)^[25]). Des réactions chimiques ont lieu à l'interface, plus ou moins intense selon le mélange, entre l'air et les produits de détonation.

I.4.1.2. Phase d'implosion :

Cette phase débute au moment où le faisceau de détente passe au niveau de l'onde de choc secondaire. À la suite de son passage, le choc secondaire revient vers le centre de la boule de feu, puis une fois celui-ci atteint ce choc est réfléchi et se propage à nouveau vers l'extérieur. Pendant ce temps, le faisceau de détente continue sa propagation jusqu'à rencontrer l'interface produits de détonation-air, ce qui engendre un faisceau réfléchi qui se dirige vers le centre de la boule de feu, ainsi qu'une diminution et une inversion de la vitesse d'expansion de l'interface. Le développement d'instabilités de Kelvin-Helmholtz permet de favoriser le mélange lors de la phase d'implosion.

I.4.1.3. Phase de rechoc :

Une fois le choc secondaire réfléchi au centre, il se dirige de nouveau vers l'extérieur de la boule de feu durant la phase d'implosion. Dès que ce choc entre en contact avec l'interface air-produit de détonation, la phase de rechoc débute. Cette interaction vient perturber la zone de mélange et permet de la rendre plus turbulente. À la suite de cela, les réactions avec les produits de détonation vont de nouveau augmenter ce qui entraînera une augmentation du dégagement de chaleur. D'après les recherches de Balakrishnan (2010)^[26], cette augmentation de la chaleur dégagée en aval permet au choc secondaire de voir sa vitesse et son intensité s'accroître. Le choc secondaire continue ensuite sa propagation dans l'air, vers l'extérieur.

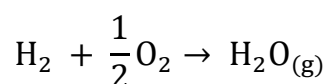
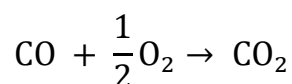
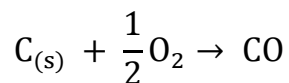
I.4.1.4. Phase de mélange asymptotique :

La phase de mélange asymptotique intervient quand l'équilibre des pressions est atteint. Elle est identifiable par la stabilité de la taille de la boule de feu. D'après l'observation de Kuhl (1997)^[27], le mélange et les réactions de combustion continuent. Il détermine qu'environ 90 % des réactions de la postcombustion ont lieu pendant cette phase.

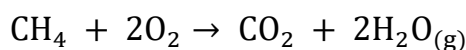
I.4.2. Réactions chimiques de postcombustion

Comme indiqué précédemment, la détonation conduit à la formation de produits tels que H_2O , CO , CO_2 , $C_{(s)}$ et N_2 . L'oxygène est souvent en défaut dans la boule de feu, car généralement la composition de l'explosif n'en contient que très peu.

Des réactions de postcombustion ont lieu à l'interface entre les produits de détonation et l'air. Ces réactions sont qualifiées d'aérobies, car elles font intervenir l'oxygène de l'air. Elles consistent principalement en l'oxydation du carbone solide, du monoxyde de carbone et de l'hydrogène par l'oxygène de l'air :



Le méthane peut également réagir dans le cas d'explosifs à très fort déficit en oxygène :



Volk et al. (1999)^[28] ont réalisé une analyse par spectrométrie des produits gazeux obtenus à la suite d'une détonation. Cette analyse permet d'avoir une indication sur les proportions des espèces présentes lors de la postcombustion. Leur analyse, dont les résultats sont répertoriés dans le Tableau I-2, s'intéresse au TNT et à une composition de TNT, d'un liant explosif (AN) et d'aluminium (proportions massiques TNT-AN-Al : 50 : 25 : 25).

Espèce	TNT		TNT-AN-Al (% massique : 50/25/25)	
Concentration	X (% mol)	X phase gazeuse (% mol)	X (% mol)	X phase gazeuse (% mol)
C _(s)	35,4	-	30,1	-
H ₂ O	19,6	30,3	20,9	37,4
CO	17,2	26,6	14,7	26,3
N ₂	13,5	20,9	12,4	22,19
CO ₂	9,9	15,3	1,2	2,15
H ₂	3,4	5,3	6,2	11,1
HCN	0,8	1,2	0,4	0,72
CH ₄	0,2	0,3	0,06	0,1
NO	0,07	0,1	0,02	0,04
Al ₂ O ₃	-	-	11,5	-
Al	-	-	2,5	-

Tableau I-2 — Composition des produits de détonation du TNT et TNT-AN-Al (Volk et al. (1999)^[28]).

I.5. Impact de l'aluminium pour un explosif

Il est important de noter que l'énergie nécessaire à chauffer la particule d'aluminium fait diminuer la pression et la vitesse de la détonation. D'après les travaux de thèse d'Elia (2019)^[14], l'ajout d'aluminium dans l'explosif va ralentir l'onde de détonation en ayant un effet endothermique. Toutefois, cette énergie est compensée ultérieurement par la combustion des particules d'aluminium qui est initiée par le chauffage induit par la détonation. La chaleur émise par la combustion de l'aluminium durant la postcombustion contribue à augmenter la pression et à renforcer l'effet de souffle. Cela a aussi pour conséquence de faire croître l'émission lumineuse de la boule de feu. D'après les recherches de Kuhl et al. (2009)^[29], l'impulsion de pression globale peut être jusqu'à 2 à 3 fois plus élevée avec une phase de postcombustion importante, qu'en l'absence de celle-ci pour une même charge explosive. La pression quasi-statique est aussi augmentée par l'effet de la postcombustion, dans le cas d'explosions confinées.

L'aluminium, contenu dans l'explosif et qui participe aux réactions de postcombustion, est oxydé principalement par les produits de détonation, mais également par l'oxygène de l'air qui entre dans la boule de feu sous l'effet du développement d'instabilités hydrodynamiques à sa surface. Il est alors primordial de déterminer les mécanismes de combustion dans cet environnement particulier caractérisé par la présence d'un mélange d'air, d'espèces carbonées et d'eau et par une pression pouvant être élevée, afin de pouvoir les modéliser.

L'étude expérimentale de la combustion de particules d'aluminium dans une ambiance proche des conditions de la phase de postcombustion est alors nécessaire. Le premier objectif de ces travaux est de déterminer une loi permettant de calculer le temps de combustion des particules dans un environnement semblable à celui rencontré dans les boules de feu. Bien que des corrélations soient déjà disponibles, le comportement des particules dans cet environnement spécifique est, en effet, encore mal connu. Le second objectif est de faire progresser la connaissance de paramètres physiques clés tels que la température ou l'énergie dégagée par la combustion de l'aluminium durant la postcombustion.

Dans les boules de feu, les particules sont exposées à des produits de détonation qui sont en mouvement. Les particules ont aussi une inertie causée par l'énergie fournie lors de la phase de détonation. Il est donc possible que dans certaines situations un déséquilibre de vitesse existe, au sein de la boule de feu, entre le gaz et les particules. Il est alors important de noter que les résultats de cette étude ne sont applicables, en toute rigueur et en raison du dispositif expérimental utilisé, qu'aux situations où les particules et la phase gazeuse sont en équilibre de vitesse

Chapitre II : Combustion de l'aluminium

L'aluminium est utilisé en tant que matériau énergétique principalement dans l'aérospatiale comme supplément d'énergie dans les propulseurs à propergol solide. Il est utilisé dans les P 230 d'Ariane 5, dans lesquels les particules d'aluminium brûlent dans les produits de combustion du propergol (CO , CO_2 , H_2O , N_2 , HCl , H_2). Du fait de leur utilisation, la combustion des particules d'aluminium a été largement étudiée tant analytiquement qu'expérimentalement. Dans une première approche, cette combustion fut assimilée à celle d'une goutte d'hydrocarbure. Les expériences et les observations confirment, au moins qualitativement, ce comportement qui est fonction de l'environnement gazeux. Une autre spécificité se trouve dans la couche d'oxyde naturellement présente sur la particule d'aluminium soumise à un oxydant, tel que l'air. Le comportement de cet oxyde est l'une des problématiques primordiales pour une compréhension globale du processus. L'état de l'art présenté dans cette partie met en évidence les limites suscitées par l'exploitation des résultats expérimentaux répertoriés, notamment dans le cadre appliqué des conditions de postcombustion. L'intérêt de ces recherches et de leurs poursuites est important pour une meilleure compréhension des phénomènes rencontrés durant les combustions. La phénoménologie théorique de la combustion de l'aluminium et le modèle analytique inhérent de cette description seront abordés dans ce chapitre, avant de fournir une vision d'ensemble de l'état actuel des connaissances basées sur les différents travaux réalisés sur le sujet.

II.1. Historique des études sur la combustion de l'aluminium

De nombreuses études expérimentales ont eu pour objectif de déterminer le processus de combustion d'échantillons d'aluminium dans différentes ambiances gazeuses. Cette partie retrace les méthodes d'analyse expérimentales, les observations générales faites et l'influence des paramètres ambiants.

II.1.1. Méthodes d'analyse expérimentales

Friedman et Maček (1962)^[30] mènent des travaux pionniers sur l'aluminium avec un brûleur à flamme plate. De cette expérience, ils obtiennent des informations quantitatives et qualitatives sur la réaction exothermique. Par la suite, de nombreux dispositifs expérimentaux ont été développés dans le but de progressivement affiner la compréhension de la combustion de l'aluminium et sa caractérisation grâce à des diagnostics variés. La Figure II-1 distingue de manière non exhaustive un ensemble de dispositifs expérimentaux mis en place pour l'étude

de la combustion d'aluminium. Le lévitateur électrodynamique est la méthode utilisée durant cette étude. Elle offre des avantages, mais impose aussi des contraintes. La combustion de particules isolées fut l'objet de différentes recherches expérimentales (Bucher et al. (1999)^[31], Sarou-Kanian (2003)^[32], Feng et al. (2016)^[33]) en utilisant différents dispositifs tels que les enceintes de combustion à chute libre, les lévitateurs aérodynamiques ou encore en disposant une particule sur un support physique (Figure II-1 [a][b][d]). Pour ces dispositifs, un laser ou un arc électrique est employé afin d'apporter l'énergie nécessaire à l'allumage de la particule. Les tubes à choc sont souvent utilisés pour l'étude de la combustion de l'aluminium. Ils permettent d'analyser la combustion d'un nuage de particules (Servaites et al. (2001)^[34], Bazyn et al. (2006)^[35], Allen (2014)^[36]). Ce dispositif consiste à générer une onde de choc qui, après réflexion, accroît de manière significative la pression et la température du gaz d'étude, initiant la réaction des particules en suspension (Figure II-1 [c]). Les brûleurs permettent aussi d'étudier la combustion des poudres métalliques dans les produits de réaction d'une flamme de prémélange. Basés sur cette technologie Julien et al. (2017)^[37], Lomba (2017)^[38] et Laboureur (2023)^[39] ont mené des recherches sur un brûleur à poudre qui génère une flamme d'aluminium entretenue (Figure II-1 [f]). Pour le lévitateur électrodynamique, utilisé pendant les recherches menées durant cette thèse, Braconnier (2020)^[2] a repris les travaux de Marion(1996)^[40] et Legrand(2000)^[41] menés sur ce dispositif. Tous ces dispositifs ont été mis en place pour étudier la combustion de l'aluminium, toutefois, cette variété de dispositifs complique les comparaisons entre les résultats obtenus.

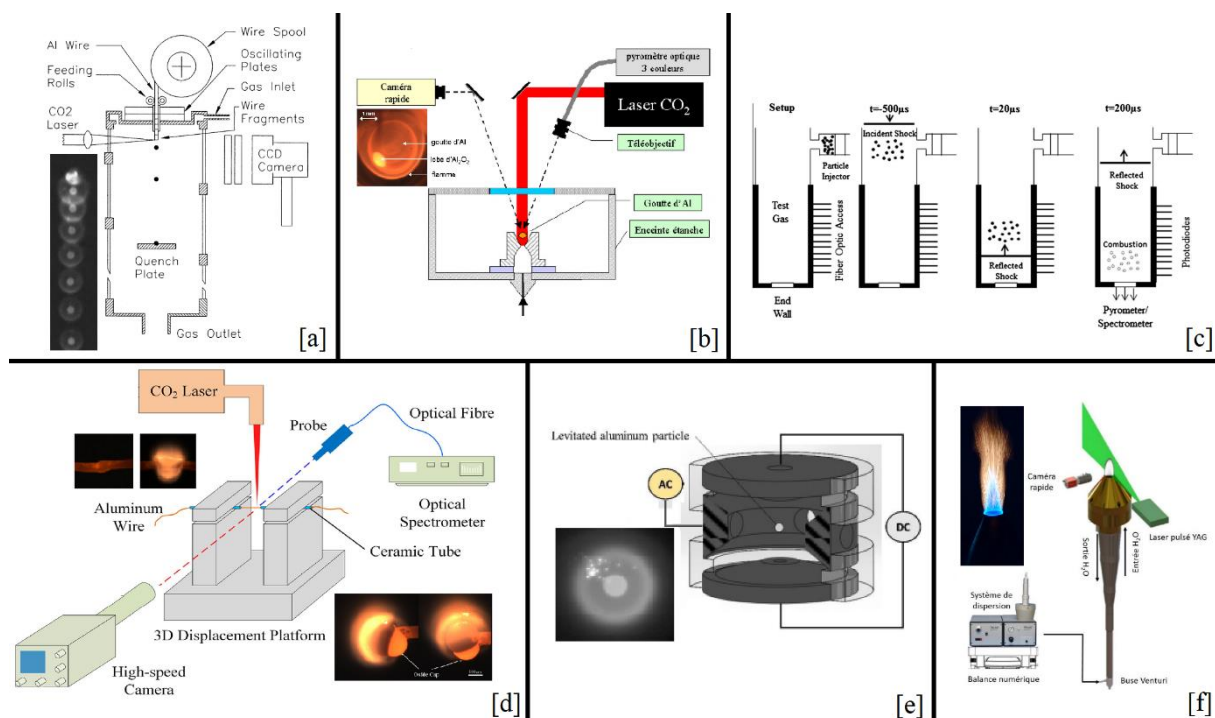


Figure II-1 — Schémas des différents dispositifs expérimentaux mis en place pour l'étude de la combustion de l'aluminium. [a] Four à chute, Bucher et al. (1999)^[31] — [b] Lévitateur aérodynamique, Sarou-Kanian (2003)^[32] — [c] Tube à choc, Allen et al. (2014)^[36] — [d] Fil d'aluminium sur support, Feng et al. (2016)^[33] — [e] Lévitateur électrodynamique, Braconnier (2020)^[2] — [f] Brûleur à poudre, Laboureur (2023)^[39].

En effet, les paramètres expérimentaux varient et possèdent une influence potentielle sur le processus de combustion. La majorité des méthodes citées sur la Figure II-1 peuvent directement affecter les transports de chaleur et d'espèces. Les transferts énergétiques et la disponibilité de l'oxydant autour des gouttes peuvent potentiellement être fortement modifiés

par les effets de groupes. C'est le cas des tubes à choc et des brûleurs, en comparaison des systèmes isolant une particule unique, comme les lévitateurs aérodynamiques et électrodynamiques, et les fours à chute. Les échanges convectifs générés, lors de la descente des particules dans le four à chute et par le flux maintenant la particule pour les lévitateurs aérodynamiques, induisent des pertes thermiques et massiques additionnelles. Elles sont différentes de celles causées par les échanges par conduction, présentes pour les particules positionnées sur un support physique.

Il n'y a pas de corrélation systématique entre les différents travaux effectués, et donc l'extrapolation de données y est difficile. D'autre part, l'étude de la combustion des gouttelettes d'aluminium à l'échelle du micron est encore complexe et nécessite une résolution spatio-temporelle élevée pour obtenir des informations dynamiques détaillées sur le phénomène. Cependant, principalement basées sur des diagnostics optiques, les mesures réalisées permettent de construire une base de connaissance des paramètres de combustion, de la chimie des réactions et de la phénoménologie des procédés.

II.1.2. Généralités

En première approche, il semblerait qu'il existe une similarité entre la combustion des gouttes métalliques et celle des gouttes d'hydrocarbure, car il existe une séparation spatiale entre l'oxydant et le combustible. Les réactions entre l'oxygène et les vapeurs métalliques sont caractérisées, en régime diffusif, par de faibles énergies d'activation (Catoire et al. (2003)^[42]). Le temps de combustion (t_c) peut être déduit en réalisant le bilan de masse de la particule, puis en supposant un taux d'évaporation constant et homogène à sa surface. Il est alors décrit par l'Équation II-1 (Glassman et al. (2008)^[43]) :

$$t_c = \frac{\rho_s \cdot D_0^2}{8 \cdot \rho d \cdot \ln(1 + i \cdot m_{O,\infty})} \quad \text{Équation II-1}$$

avec ρ_s la densité de la particule, D_0 le diamètre initial de la particule, ρd le produit de la densité et de la diffusivité du gaz, i le coefficient stœchiométrique et $m_{O,\infty}$ la fraction massique d'oxygène dans le gaz. Cette relation est connue comme la loi D².

Cette hypothèse, de similarité avec la combustion des gouttes d'hydrocarbure, fut nuancée suite à des observations expérimentales où une phénoménologie particulière a été observée. Friedman et al. (1962)^[30], Kuehl (1965)^[44], Maček (1967)^[45] et Wilson Jr et al. (1971)^[46] ont démontré dans leurs études l'apparition d'un changement brusque de la trajectoire des gouttes durant leur réaction. Les mouvements recensés semblent être provoqués par un spinning (rotation de la particule) et/ou un jetting (déplacement de la particule) générés à la suite de l'augmentation du lobe d'oxyde sur la surface de la goutte d'aluminium. Ces éléments seront détaillés dans la section II.2.1. Cette hypothèse a été corroborée par l'analyse des produits de combustion qui démontre la mise en place de réactions hétérogènes de surface. Prentice (1974)^[47], suite à des observations similaires, propose un bilan critique des hypothèses du modèle en D² et arrive à la conclusion qu'un état stationnaire et une géométrie sphérique ne peuvent pas être considérés pour décrire la combustion de l'aluminium.

II.1.3. Influence des paramètres ambiants

II.1.3.1. Pression

Expérimentalement, il a été montré par Braconnier (2020)^[2] que la pression ambiante influence le temps de combustion (ou le taux de combustion) et que le taux de régression de la goutte (k) est proportionnel à $P^{-0,3;1}$. D'après plusieurs études (Davis (1963)^[48]; Belyaev et al. (1968)^[49]; Hartman (1971)^[50]; Marion (1996)^[40]; Braconnier (2020)^[2]), le temps de combustion décroît lorsque la pression augmente puis reste constant une fois une valeur limite atteinte. Cette valeur varie entre 20 et 80 atm selon la majorité des travaux considérés. Toutefois, Foelsche et al. (1998)^[52] démontrent que le temps de combustion évolue continuellement sur un intervalle de pression allant de 38 à 145 atm, et Zenin et al. (2000)^[53] démontrent que le temps de combustion en microgravité n'est pas affecté par la pression, il n'y a donc pas de consensus sur la valeur exacte de cette limite. Pour des conditions de basse pression, le coefficient binaire de diffusion corrigé (D_g^c) est inversement proportionnel au nombre de Knudsen (Kn) comme le montre l'Équation II-2 :

$$D_g^c = \frac{D_g}{Kn} \quad \text{Équation II-2}$$

avec D_g la diffusivité massique du gaz ambiant. L'Équation II-3 exprime ce nombre de Knudsen :

$$Kn = \frac{2 \cdot \lambda}{D_p} \quad \text{Équation II-3}$$

où D_p est le diamètre de la particule, et λ est le libre parcours moyen dans le gaz. Ce dernier est exprimé par l'Équation II-4 :

$$\lambda = \frac{k_b \cdot T_\infty}{\sqrt{2} \cdot \pi \cdot D_m^2 \cdot P_\infty} \quad \text{Équation II-4}$$

où k_b est la constante de Boltzmann, T_∞ et P_∞ étant la température et la pression ambiante et D_m est le diamètre moléculaire. En intégrant les Équation II-3 et Équation II-4, il est possible de dire qu'une augmentation de la pression du milieu ambiant permet d'accroître le coefficient de diffusion. L'impact de la pression sur la combustion est expliqué selon Kuryavtsev et al. (1979)^[54], par la présence de particules submicroniques dans la zone de réaction qui influencent la diffusion des espèces. Dans cette zone, pour le cas d'une condition de basse pression, la distance interparticulaire de la phase condensée est très inférieure au libre parcours moyen de la phase gazeuse dans la flamme. Ainsi selon l'Équation II-2 si le nombre de Knudsen augmente, alors le coefficient de diffusion diminue, et donc le taux de réaction (k) qui lui est proportionnel diminue aussi ce qui va ralentir la réaction. Dans le cas d'une augmentation de la pression, k doit augmenter sans atteindre de seuil, mais selon Kuryavtsev et al. (1979)^[54] le coefficient de diffusion devient indépendant de Kn s'il est inférieur à 1, et donc le mécanisme de diffusion est contrôlé par le produit de la masse volumique du gaz et du coefficient de diffusion de ce gaz. Le modèle de Kuryavtsev et al. (1979)^[54] permet

donc d'obtenir une explication théorique de l'effet de seuil pour l'impact de la pression sur la combustion de l'aluminium.

Il est à noter que l'impact de la pression est significatif sur l'augmentation de l'émission lumineuse globale (de la goutte et de la flamme) de la combustion d'aluminium comme l'illustrent Marion (1996)^[40] et Braconnier (2020)^[2]. Les travaux de Zenin et al. (2000)^[53] sont en accord avec cette observation, ils décrivent que sur la surface des particules après une réaction à haute pression, une concentration croissante d'oxyde d'aluminium. Cela suggère une production plus conséquente d'alumine à fort potentiel radiatif. Yagodnikov et al. (1995)^[55] montrent qu'une augmentation de la vitesse de flamme est à noter lors d'une montée de la pression. Li et al. (2018)^[56] démontrent que la pression a moins d'influence sur le délai d'inflammation que la composition de l'environnement gazeux, plus précisément le taux d'oxygène. Ils concluent que la pression favorise les échanges de chaleur, ainsi que le rayonnement et la convection de la flamme, ce qui permet, d'après leur étude, d'augmenter la vitesse d'inflammation et de combustion de leur échantillon.

L'aluminium, comme tous les métaux, possède un point de fusion dépendant de la pression ambiante. Cette dépendance est modérée, comme indiqué dans le Tableau II-1.

Pression (bar)	Point de fusion (K)
1	932
5000	963
10 000	993
20 000	1 053
30 000	1 103
40 000	1 153

Tableau II-1 — Point de fusion de l'aluminium solide pur en fonction de la pression.

II.1.3.2. Température

L'influence de la température ambiante sur le processus de combustion de l'aluminium est peu documentée. La température ambiante, pour un processus de combustion en régime diffusif, influe principalement sur les transferts de chaleur entre la goutte d'aluminium et la flamme. Elle peut aussi influencer sur la diffusion des espèces qui sont sensibles aux gradients de température. Il est possible que la température de flamme ainsi que le taux de réaction de la goutte soient modifiés par ce paramètre. Toutefois, cet impact est à relativiser puisque l'énergie de réaction est très élevée dans le cas de la combustion de l'aluminium. Expérimentalement, cette hypothèse est validée par Davis (1963)^[48] qui démontre que le temps de combustion d'une particule d'aluminium n'est que très peu affecté par une variation de température ambiante entre 2550 et 2950 K. Pour Belyaev et al. (1968)^[49], le temps de combustion réduit faiblement, entre 10 et 15 %, pour une variation de température ambiante entre 1600 et 2000 K et il n'est plus affecté par ce paramètre au-delà. Enfin d'après leurs travaux, la température ambiante influence sensiblement le délai d'allumage. Une élévation de la température du milieu va favoriser le chauffage de la particule, en réduisant fortement la durée de la phase d'initiation de la combustion.

D'un autre point de vue, dans le cas d'une combustion limitée par une cinétique chimique particulière l'influence de la température ambiante est marquée. Pour le cas particulier de particules nanométriques ($D_0 \approx 80 \text{ nm}$) en combustion, une réaction en régime diffusif n'est pas possible car leur taille ne permet pas d'entretenir de flamme en phase vapeur. Bazyn et al. (2006)^[35] montrent avec ce cas qu'une diminution du temps de combustion intervient avec la variation de la température ambiante, entre 1200 et 2100 K, selon une loi exponentielle d'Arrhenius. Cela signifie qu'une augmentation de la température de l'environnement accroît le taux de combustion global.

L'initiation de la combustion est quant à elle très sensible à la température ambiante. D'après les recherches de Feng et al. (2018)^[57], la température ambiante influence considérablement le délai d'inflammation. Ils démontrent que pour une différence d'environ 300 K la probabilité d'inflammation augmente d'approximativement 6,7 fois (de 14,3 à 95,3 %). D'autre part, ils concluent que l'influence de ce paramètre sur le temps de combustion est limitée.

II.1.3.3. Composition chimique

La composition chimique du milieu ambiant, c'est-à-dire la nature et la proportion des gaz oxydants ou/et diluants, conditionne les transports de chaleur et d'espèces en fonction des propriétés inhérentes aux substances considérées. Les oxydants sont aussi un facteur dans le calcul du temps de combustion d'une particule, car l'énergie de réaction libérée est directement liée aux différentes enthalpies de formation.

En règle générale, quand la proportion d'oxydants disponibles dans l'environnement s'accroît, alors le temps de combustion diminue. Les gradients d'espèces deviennent plus importants, entre la zone de réaction appauvrie en oxydant et le milieu ambiant riche en comburant, plus la concentration en oxydant, noté X_{eff} , augmente. Cet effet est illustré par les expériences menées par Prentice (1974)^[47]. Il analyse l'évolution du temps de combustion d'aluminium en fonction du taux de dioxygène dans différents mélanges, tels que O_2/N_2 et de O_2/Ar . Il est alors prouvé que la durée de la réaction réduit fortement quand le taux d' O_2 augmente, quel que soit le gaz diluant utilisé. Cette hypothèse est confirmée par Badiola et al. (2011)^[58] qui mesurent des températures de flammes plus faibles pour une concentration en dioxygène réduite. D'après les travaux de Gill et al. (2010)^[59], il est mis en évidence, sur la Figure II-2, une différence d'efficacité d'oxydation pour différents oxydants (O_2 , H_2O et CO_2). Dans toutes ces études, le dioxygène est invariablement l'élément avec le plus grand pouvoir oxydant et pour lequel les temps de combustion sont les plus courts à proportion équivalente d'oxydants. L'étude de Halter et al. (2022)^[60] prouve que l'eau a une efficacité d'oxydation plus forte que le CO_2 , ce qui confirme plusieurs modèles analytiques et théoriques (Kuryavtsev et al. (1979)^[54] ; Brooks et al. (1995)^[61] ; Widener et al. (1998)^[62]).

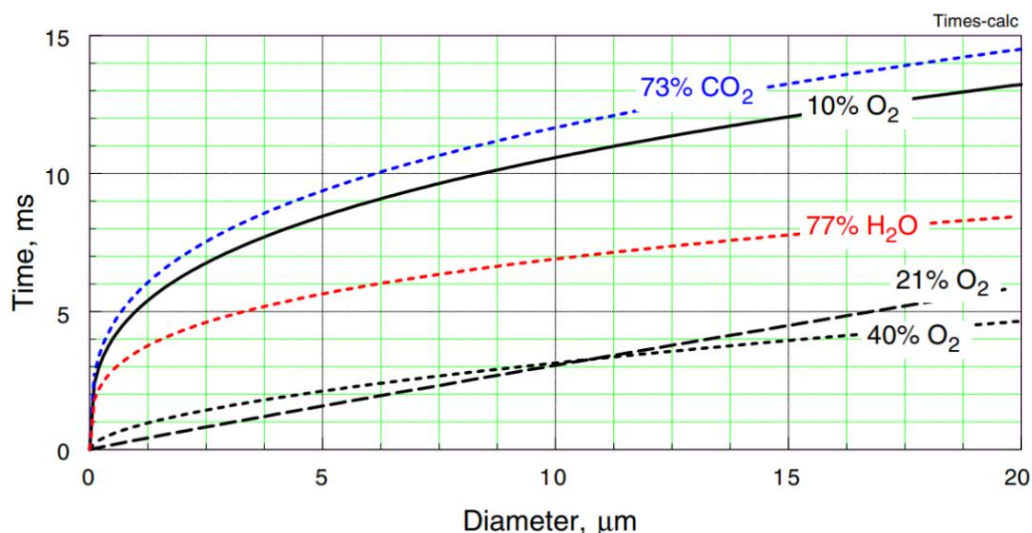


Figure II-2 — Évolution du temps de combustion en fonction du diamètre initial de la particule pour différentes concentrations d'oxydant dans le milieu ambiant (Gill et al. (2010)^[59]).

D'après les études de Bazyn et al. (2005)^[63] et de Lynch et al. (2009)^[64], l'effet de la pression, évoqué dans un point précédent, varie selon le type d'oxydant. Ils constatent que l'élévation de la pression diminue le temps de combustion dans le cas de l'oxygène, mais semble augmenter pour le CO₂ et l'eau. Ces différences de comportement seraient liées à la dissociation de ces oxydants.

Les études sur la combustion des gouttes dans un environnement avec du monoxyde de carbone (CO) sont très peu nombreuses. Des descriptions qualitatives des réactions de l'aluminium dans le monoxyde de carbone pur sont données par Bucher et al. (1999)^[31], qui indiquent ne pas observer de flamme de diffusion. L'analyse des résidus et produits de combustion démontre qu'une réaction surfacique a eu lieu, car des produits condensés complexes se retrouvent en proche surface, comme de l'alumine et des molécules carbonées.

Ainsi, largement observée dans les mélanges avec l'oxygène, une phase de combustion asymétrique, pour laquelle la particule ne diffuse pas uniformément ses produits de réaction, est également supposée se produire pour les particules brûlant dans les mélanges avec du CO₂ ou de l'eau. Cependant, il s'avère que cette transition d'état est moins prononcée que dans le dioxygène, où de brusques mouvements de 'jetting' et 'spinning' sont observables. Ainsi, à l'instar des observations faites avec des gouttes réagissant dans des milieux contenant du dioxygène, les processus qui contribuent à la génération et à l'accumulation d'oxydes à la surface des gouttelettes existent toujours. En ce sens, en analysant la composition des particules ayant réagi avec du dioxyde de carbone pur, Rossi et al. (2001)^[65] trouvent la formation de plusieurs phases issues du système Al-O-C. Ils soulignent l'existence de réactions de surface ou de transitions de phase pouvant contribuer à de tels changements de phénoménologie dans cette atmosphère. Toutefois, concernant le mécanisme de transport des espèces, les auteurs émettent l'hypothèse que l'effet thermophorétique¹ est plus prononcé

¹ Phénomène observé dans les mélanges de particules mobiles où les différents types de particules réagissent différemment à la force d'un gradient de température.

dans le cas du CO_2 , notamment en raison de la réduction des actions opposées à la diffusiophorèse².

Les atmosphères contenant de la vapeur d'eau sont moins documentées, car difficiles à mettre en place. Sarou-Kanian et al. (2005)^[66] ont montré que les résidus de combustion contenaient des cavités sphériques dont l'existence était attribuée à la dissolution de dihydrogène (H_2) gazeux dans les gouttes. La quantité d' H_2 détectée étant faible, aucune réaction ne devrait avoir lieu durant la combustion. Une partie sera dédiée à cette atmosphère dans la section IV.1.3.1.

Les gaz diluants tels que le diazote, l'argon et l'hélium, intégrés au mélange, sont très importants pour la compréhension de la combustion de l'aluminium. Leurs effets sont premièrement inhibiteurs par la réduction de la concentration des oxydants. Une hausse de la proportion de ces diluants, au détriment des oxydants, provoque une augmentation du temps de combustion. La nature et la fraction volumique des gaz inertes fixent les propriétés thermiques et physiques du milieu ambiant. Les principaux diluants utilisés pour nos recherches sont le diazote (N_2), l'argon (Ar) et l'hélium (He). Le N_2 et l'Ar possèdent tous deux des comportements relativement similaires en ce qui concerne le transport diffusif des espèces et de la chaleur. Cela permet d'analyser leurs effets relatifs selon leur nature chimique. L'hélium possède des caractéristiques favorisant les différents transferts qu'ils soient thermiques ou de matière, ce qui permet d'analyser l'influence des diluants sur les propriétés diffusives de l'environnement autour de la particule. Théoriquement, à un pourcentage de diluant identique, une augmentation du taux de réaction est à prévoir pour le cas de l'hélium. Dreizin (1999)^[67] dans son étude montre des résultats allant dans ce sens. Il est aussi important de remarquer qu'une phénoménologie différente apparaît selon le diluant choisi. Prentice et al. (1967)^[68] notent une différence entre les trajectoires prises par les particules lors de leur combustion dans l'air ou dans un mélange O_2/Ar avec un taux de dilution identique. Il est possible d'observer l'occurrence des mouvements de 'spinning' et 'jetting' dans l'air (ou les mélanges O_2/N_2) d'après l'étude de Bucher (1999)^[31], mais qui ne sont pas constatés dans le cas du mélange O_2/Ar . Pour faire suite à cette observation, il est possible qu'il y ait formation de NO, ce qui contribue à la diffusion d'oxygène vers la goutte (Dreizin (1999)^[67]; Dreizin (2000)^[69]; Dreizin (2003)^[70]). La présence de NO induirait un accroissement de la cinétique des réactions hétérogènes et une augmentation de la dissolution d'oxygène dans l'aluminium liquide. Les mélanges contenant du N_2 favoriseraient donc l'établissement d'un régime asymétrique. Bucher et al. (1999)^[31] détectent du nitrure d'aluminium (AlN), aussi détecté par Sarou-Kanian et al. (2005)^[66]. La présence de ce dernier résulterait de réactions de surface de l'Al avec le N_2 . L'AlN peut aussi réagir avec l'alumine du lobe pour former un composé d'oxynitrure d'aluminium (AlON). Cela peut potentiellement englober la totalité de la goutte provoquant une perturbation de la vaporisation du métal et donc la combustion en général.

² Mouvement des particules en suspension (colloïdes, cellules, macromolécules, etc.) en réponse au gradient de concentration macroscopique d'un soluté moléculaire qui interagit avec la surface de la particule

II.2. Description fondamentale de la combustion de l'aluminium

I.1.1. Régime de combustion

L'oxydation des particules métalliques présente des spécificités. Le métal réagit avec les espèces oxydantes de son environnement gazeux et les produits de la combustion sont principalement des oxydes métalliques à l'état liquide. Les propriétés thermodynamiques et physiques du métal et des oxydes pilotent le mode de combustion. Pour notre cas, l'aluminium (Al) s'oxyde en alumine (Al_2O_3). Les propriétés thermodynamiques de couple Al/ Al_2O_3 sont indiquées dans le Tableau II-2. Il y a, durant le processus de combustion, une formation d'intermédiaires de réaction gazeux, principalement du monoxyde d'aluminium (AlO).

Métal/Oxyde métallique	T_{fus}^{metal}	T_{fus}^{oxyde}	T_{vap}^{metal}	T_{vap}^{oxyde}	$T_{vol/dis}^{oxyde}$
Al/ Al_2O_3	933	2326	2791	3250	4000

Tableau II-2 — Températures de fusion et vaporisation du couple Al/ Al_2O_3 à pression et température atmosphériques. $T_{vol/dis}^{oxyde}$ correspond à la température de volatilisation/dissociation de l'alumine.

Pendant la combustion de l'aluminium dans l'air à pression atmosphérique, c'est le régime diffusif qui est principalement présent. Il est caractérisé par une température de flamme ($T_f \sim 3600$ K) se rapprochant de la température de volatilisation/dissociation de l'alumine ($T_{vol/dis}^{Al_2O_3} \sim 4000$ K). Ceci est vérifié, car les oxydes métalliques possèdent une enthalpie de volatilisation/dissociation largement supérieure à l'énergie de combustion du métal pour une même température de référence. $T_{vol}^{Al_2O_3}$ correspond à la température de volatilisation/dissociation de l'oxyde à $P = 1$ atm. Il en résulte que la température de flamme sera bornée par la température de volatilisation/dissociation de l'oxyde associé. Ce critère a été proposé à l'origine par Glassman et al. (2014)^[71] et est décrit par l'Équation II-5:

$$\Delta H_{vap}^{oxyde} + \left(H_{T_{vol}}^0 - H_{T_{réf}}^0 \right) > \Delta H_{comb, T_{réf}}^0 \quad \text{Équation II-5}$$

Avec ΔH_{vap}^{oxyde} l'enthalpie de vaporisation/dissociation de l'oxyde métallique, $(H_{T_{vap}}^0 - H_{T_{réf}}^0)$ l'enthalpie requise pour augmenter la température de l'oxyde d'une température de référence ($T_{réf}$) à sa température de vaporisation (T_{vap}^{oxyde}) et $\Delta H_{comb, T_{réf}}^0$ l'enthalpie de réaction. Dans le cas de l'aluminium, le critère de Glassman est respecté lors d'une combustion dans l'air à pression et température atmosphérique, alors la température au sein de la flamme est bornée entre la température de vaporisation de l'aluminium et de l'alumine :

$$T_{vap}^{Al} < T_f < T_{vol/dis}^{Al_2O_3} \quad \text{Équation II-6}$$

Le régime diffusif de l'aluminium se caractérise par une température de flamme proche de celle de la température de volatilisation/dissociation de l'alumine. Un autre facteur impacte la température de la flamme : la taille initiale de la particule. D'après les mesures réalisées sur des particules d'aluminium en combustion par Bazyn et al. (2007)^[72] et Badiola et al. (2011)^[58], la température de la phase condensée diminue avec le diamètre initial de la particule (D_0). Ils démontrent aussi une réduction des niveaux d'émission d'AlO lors de cette diminution de diamètre. Les expériences menées par Braconnier (2020)^[2] démontrent l'existence d'un diamètre critique (D_{crt}) en dessous duquel la flamme de diffusion n'est plus présente. Expérimentalement, il décrit ce critère tel que $10 \mu m < D_{crt} < 15 \mu m$. Une particule proche du diamètre critique brûlera dans un régime de transition où la flamme n'est presque plus visible. En dessous de ce diamètre, la température de la flamme tend vers le point d'ébullition de l'aluminium. Pour des particules submicroniques, les températures mesurées sont même inférieures à ce seuil. La combustion passe alors dans un régime de réaction de surface. Tous ces régimes sont schématisés dans la Figure II-3.

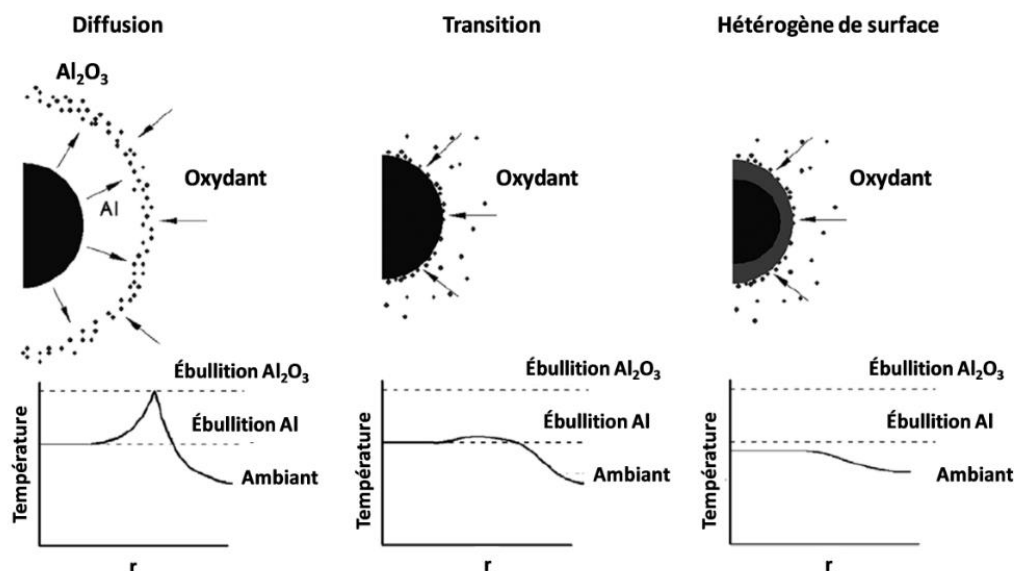


Figure II-3 — Représentation schématique des modes de combustion observés lors de la combustion d'une goutte d'aluminium (Bazyn et al. (2007)^[72])

La taille des particules influence les critères liés au transport et à la réaction des espèces. Pour la réaction d'une particule brûlant en régime diffusif le temps caractéristique de diffusion massique et de diffusion thermique (t_{dif}) de la particule, est supérieur aux temps relatifs à la cinétique chimique (t_{cin}). Le taux de réaction de la goutte est donc piloté par le transport diffusif. Dans le cas contraire ($t_{dif} < t_{cin}$), c'est la cinétique réactionnelle qui limite le processus de combustion. Cela se traduit par un déplacement des réactions à la surface de la goutte, car la diffusion est trop lente par rapport à la production d'alumine. Le nombre de Damköhler (Da^*) transcrit cette dualité entre les mécanismes diffusifs et cinétiques. L'expression de ce nombre est donnée par l'Équation II-7, si le nombre de Lewis (Le) est proche de 1, ce qui correspond à une égalité des diffusivités thermique (α_g) et massique (D_g). D_p est le diamètre de la particule, i le coefficient stœchiométrique massique, m_{ox} la fraction massique d'oxygène dans le milieu et k_s le taux de réaction hétérogène par unité de surface.

$$Da^* = \frac{t_{dif}}{t_{cin}} = \frac{D_p . i . m_{ox} . k_s}{4 . D_g . \ln(1 + i . m_{ox})} \quad \text{Équation II-7}$$

L'appauvrissement en oxygène de l'environnement provoque la diminution de la température de la flamme, et donc entraînera cette transition.

L'étude de Mohan et al. (2009)^[73] montre que l'échelle caractéristique du libre parcours moyen dans le gaz environnant (λ) est un facteur important dans la compréhension complète de l'influence du diamètre de la particule sur le processus de combustion. Avec le nombre de Knudsen (Kn), il est possible de vérifier si le système peut être considéré comme étant un milieu continu ou non. La définition de ce nombre est décrite par l'Équation II-3. Le libre parcours moyen est quant à lui décrit par l'Équation II-4. Il est dépendant des conditions de température et de pression ambiantes (T_∞ et P_∞), ainsi que du diamètre moléculaire des constituants du gaz environnant (D_m) et de la constante de Boltzmann ($k_b = 1,380 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$). Dans l'hypothèse où $Kn \ll 1$, il est possible de considérer la goutte comme un élément macroscopique dans l'environnement gazeux continu. Pour $Kn \cong 1$ le système doit être décrit par des modèles alternatifs basés sur le modèle de Fuchs (1963)^[74], puis développés par Filippov et al. (2000)^[75] et Mohan et al. (2009)^[73]. Ces deux dernières recherches introduisent l'existence d'un régime intermédiaire transitoire entre les régimes raréfié et continu. Cela suppose la présence d'une couche de Langmuir³ possédant une épaisseur (δ), approximativement égale au libre parcours moyen, autour de la goutte lors de la combustion. Selon les travaux de Kullmer (1996)^[76], cette couche se caractérise par une discontinuité de température prononcée. Dans ce modèle transitoire, l'expression du transfert de chaleur à l'intérieur de la couche de Langmuir est corrigée et formulée en faisant intervenir le libre parcours moléculaire, tandis que la relation pour le modèle continu est valable à l'extérieur de la couche vers le milieu ambiant. La Figure II-4 donne un diagramme schématique des différents régimes et des différents flux d'énergie considérés.

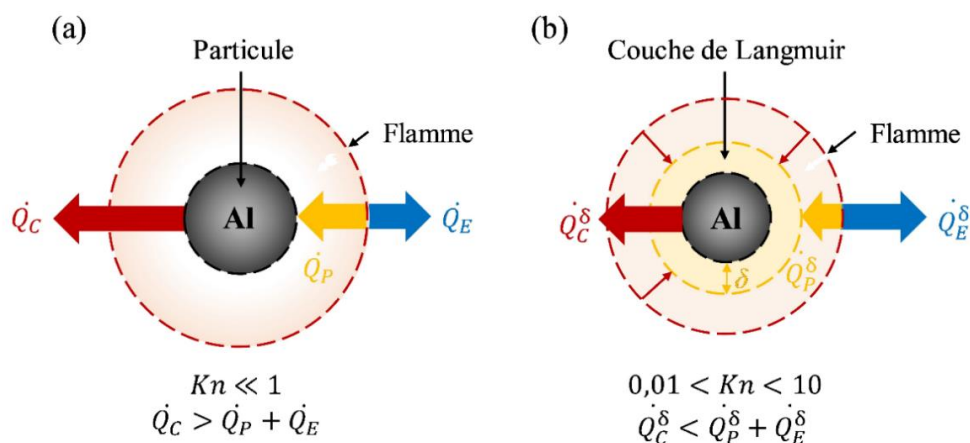


Figure II-4 — Représentation schématique d'une goutte en combustion. (a) régime de diffusion décrit par un modèle continu — (b) régime intermédiaire décrit par un modèle transitoire (Braconnier (2020)^[2]).

³ Strate d'une molécule d'épaisseur d'une matière organique insoluble qui est étalée sur une surface aqueuse.

En régime intermédiaire, l'équilibre énergétique du système réactionnel peut être limité par la taille de la particule. On peut retenir, de façon schématique, que pour entretenir la réaction en phase vapeur, il faut maintenir une puissance de réaction ($\dot{Q}_C$) supérieure à la somme des puissances dissipées de la flamme vers la goutte ($\dot{Q}_P$) et de la flamme vers le milieu environnant ($\dot{Q}_E$) (Équation II-8). Il est possible d'exprimer $\dot{Q}_C$ à partir du taux d'évaporation massique de la goutte ($\dot{m}_{Al}$) et de l'enthalpie d'oxydation (ΔH_{ox}), puis enfin, il est possible de décrire $\dot{m}_{Al}$ comme le rapport de $\dot{Q}_P$ et de l'enthalpie de vaporisation de l'aluminium (ΔH_{vap}^{Al}) (Équation II-9).

$$\dot{Q}_C \geq \dot{Q}_P + \dot{Q}_E \quad \text{Équation II-8}$$

$$\dot{Q}_C = \dot{m}_{Al} \cdot \Delta H_{ox} = \frac{\dot{Q}_P}{\Delta H_{vap}^{Al}} \cdot \Delta H_{ox} \quad \text{Équation II-9}$$

Lorsque le nombre de Knudsen est compris entre 0,01 et 10 ($0,01 < Kn < 10$), les échanges convectifs vers la particule estimés dans la couche de Langmuir ($\dot{Q}_P^\delta$), sont inférieurs à ceux utilisant le modèle continu ($\dot{Q}_P^\delta < \dot{Q}_P$). D'après les recherches de Filippov et al. (2000)^[75] et Mohan et al. (2008)^[77], cette diminution serait provoquée par l'abaissement du coefficient adimensionnel d'échange convectif. Dans cette situation, en omettant la contribution du rayonnement, et avec une température de flamme bornée, l'apport énergétique diminue au point de ne plus entretenir la combustion en phase vapeur, modifiant alors le mode de combustion.

En conclusion, plusieurs modes de combustion différents existent et sont observés expérimentalement. La taille des particules est un paramètre déterminant puisqu'elle pilote le rapport entre les temps caractéristiques de diffusion massique et de cinétique chimique. Dans les cas où le diamètre des gouttes est comparable au libre parcours moyen du milieu ambiant, le transfert thermique contrôlant la réaction peut également être modifié. Par conséquent, pour des particules de diamètre D_p suffisamment grandes pour brûler dans un environnement donné, la cinétique de réaction est rapide et la combustion n'est limitée que par la diffusion des espèces. Il en résulte que les métaux réagissent en phase gazeuse avec les oxydants ambiants à l'intérieur de la flamme à des températures supérieures à la température de vaporisation de l'aluminium, tout en restant bornés par la température de volatilisation/dissociation de l'alumine. À l'inverse, si D_p est trop faible, alors la cinétique chimique devient limitante et elle restreint la réaction à des mécanismes réactionnels hétérogènes en surface. L'énergie libérée n'est pas suffisante pour permettre l'évaporation de l'aluminium. Il existe un mode de combustion transitoire qui peut être établi si le temps caractéristique du transport de masse est égal à celui de la cinétique de la réaction, alors $Da^* \cong 1$. Dans ces conditions particulières, des réactions peuvent s'établir en phase gazeuse, mais des espèces oxydantes gazeuses parviennent également à diffuser vers la goutte, provoquant des réactions de surface hétérogènes. En conséquence, la flamme s'établit en proche surface de la goutte du fait d'une température de flamme trop faible comparativement à la température d'évaporation de l'aluminium. Parallèlement, comme la taille des particules tend vers le libre parcours moyen du milieu réactionnel, les effets liés à l'établissement de la couche de Langmuir affectent également le bilan énergétique du processus de combustion, contribuant ainsi à rapprocher la flamme de la goutte.

II.2.1. Phénoménologie de la combustion d'une particule d'aluminium

Les particules utilisées pour cette étude ont un diamètre compris entre 40 et 100 μm . Cette taille est suffisamment importante pour permettre la mise en place d'une combustion en phase vapeur en régime diffusif à pression atmosphérique dans l'air. Une modification de l'ambiance gazeuse, comme une augmentation de la pression ou une variation des espèces oxydantes, peut induire un changement de mode de combustion. À noter que le régime en phase vapeur sera le plus rencontré dans la suite du manuscrit. Ce régime est détaillé dans la suite.

La Figure II-5 illustre les différentes étapes de la combustion d'une particule d'aluminium qui sont :

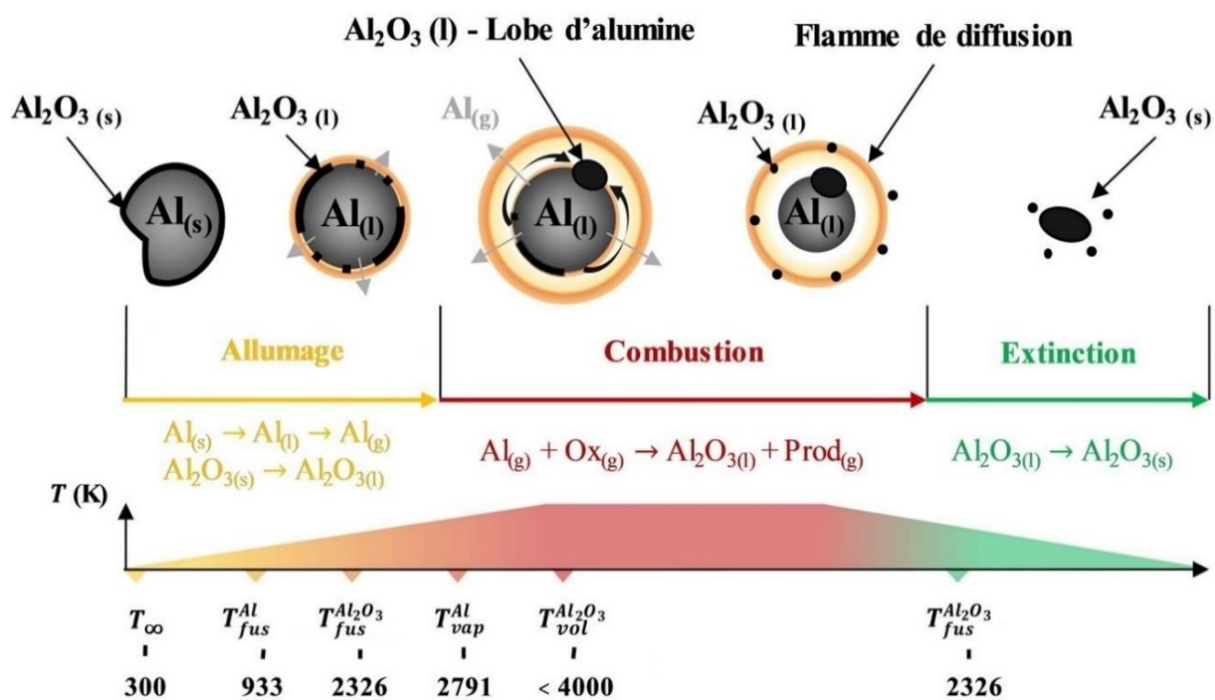


Figure II-5 — Illustration du processus de réaction d'une particule d'aluminium en régime diffusif (Braconnier (2020)^[2]).

II.2.1.1. Allumage

Initialement, la réaction de l'aluminium avec l'oxydant est impossible à cause de la couche solide d'alumine naturellement présente autour de la particule. Le temps de chauffage de la particule coïncide approximativement avec la rupture de cette couche inerte. Pour y arriver, il est nécessaire d'élever la température jusqu'au point de fusion de l'alumine. Dans un explosif, la chaleur est apportée par la détonation. Comme l'aluminium possède une température de fusion (T_{fus}^{Al}) de 933 K, inférieure à celle de l'alumine ($T_{fus}^{Al_2O_3}$) qui est de 2326 K, le changement de phase de l'aluminium s'opère avant celui de la couche d'alumine. Le passage à l'état liquide de l'aluminium provoque une augmentation de son volume, ce qui provoque une sollicitation mécanique interne de la strate solide d'alumine. Cela permet de

craqueler cette couche pour libérer l'aluminium de son enveloppe et d'initier les premières réactions. Il est communément convenu que l'allumage de la particule s'opère une fois la température de fusion de l'alumine atteinte, car expérimentalement le craquage et le palier de la température de fusion de l'alumine se réalisent quasiment au même moment. La couche d'alumine fond sous l'effet des contraintes thermiques et se rassemble en un lobe sous l'effet de la tension superficielle (l'aluminium et l'alumine ne sont pas miscibles). L'aluminium liquide est alors exposé à l'environnement réactif. Le processus de combustion peut alors démarrer.

II.2.1.2. Combustion

L'aluminium est exposé à des températures supérieures à sa température de vaporisation (T_{vap}^{Al}) qui est de 2791 K, mais inférieures à la température de volatilisation/dissociation de l'alumine ($T_{vol}^{Al_2O_3}$) qui est d'environ 4000 K à 1 bar. La particule se vaporise progressivement et l'aluminium gazeux produit en surface de la goutte diffuse vers l'extérieur. Ce phénomène induit une diminution progressive du diamètre de la goutte. L'aluminium gazeux réagit avec les oxydants présents, ce qui permet la mise en place d'une flamme de diffusion autour de la goutte. L'alumine produite se condense sous forme nanométrique pour former un front lumineux uniformément réparti et homogène. Cette réaction produit de l'énergie qui se dissipe vers le milieu ambiant et vers la goutte. Le flux thermique dirigé vers la goutte permet d'entretenir le processus d'évaporation, en apportant l'énergie requise à celle-ci, et maintient la goutte à la température de vaporisation de l'aluminium.

Le lobe se situant sur la goutte empêche localement l'aluminium de s'évaporer et altère la répartition des espèces provoquant une variation de température et des forces mises en jeu (poussée produite par le débit massique d'aluminium). Ce déséquilibre est à l'origine des phénomènes de spinning/jetting. Le lobe d'alumine est alimenté par le processus de combustion et voit sa taille augmenter progressivement.

La réaction de combustion de l'aluminium fait intervenir des espèces gazeuses intermédiaires instables comme AlO, Al₂O et Al₂O₂. Ces oxydes d'aluminium réagissent très rapidement pour finalement se transformer en alumine liquide (Al₂O_{3(l)}) sous la forme d'un nuage de particules submicroniques. Les travaux de Bucher et al. (2000)^[78] décrivent la complexité de la structure d'une flamme en régime de diffusion (Figure II-6). L'énergie de la combustion est majoritairement issue de la formation d'alumine liquide, qui est le produit final de la combustion de l'aluminium. Nous pouvons définir les limites géométriques de la flamme à partir du profil d'AlO, qui est l'oxyde intermédiaire majoritaire de cette réaction. Ainsi, la zone de réaction s'entend sur un rayon 2 à 5 fois supérieur au diamètre initial de la goutte selon l'étude de Bucher et al. (2000)^[78].

Un rayonnement est émis lors de la combustion par l'ensemble des espèces condensées et gazeuses. La goutte d'aluminium, mais aussi les particules d'alumine produites, peuvent être considérées en première approximation comme des corps noirs dont la radiation thermique est estimée à partir de la loi de Planck. Cette hypothèse est utilisée dans la section III.6.3 pour le calcul de la température de la réaction. Comme l'illustre la Figure II-7, la contribution des espèces excitées gazeuses est également relativement importante, surtout celle du AlO.

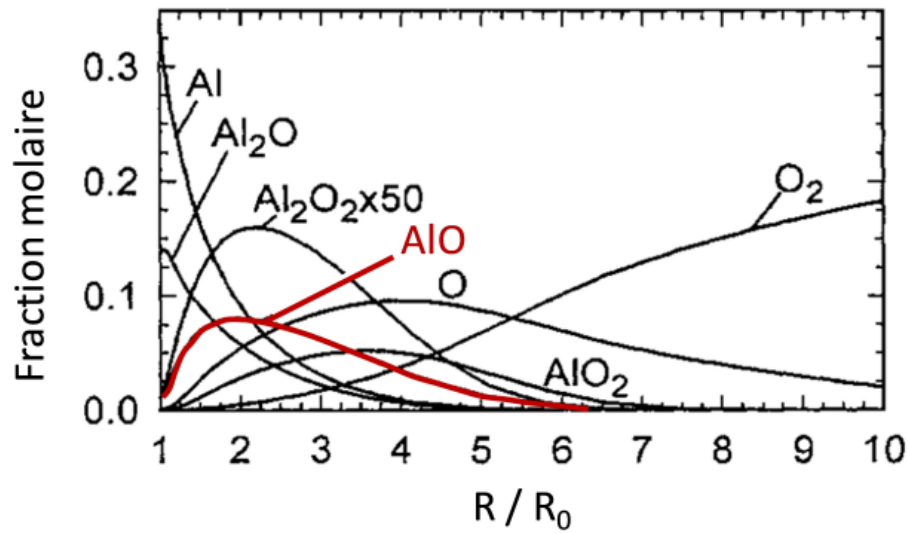


Figure II-6 — Structure radiale de la flamme autour d'une particule d'aluminium en réaction dans un milieu oxydant (21% O₂/79% Ar) en régime de diffusion (Bucher et al. (2000)^[78]).

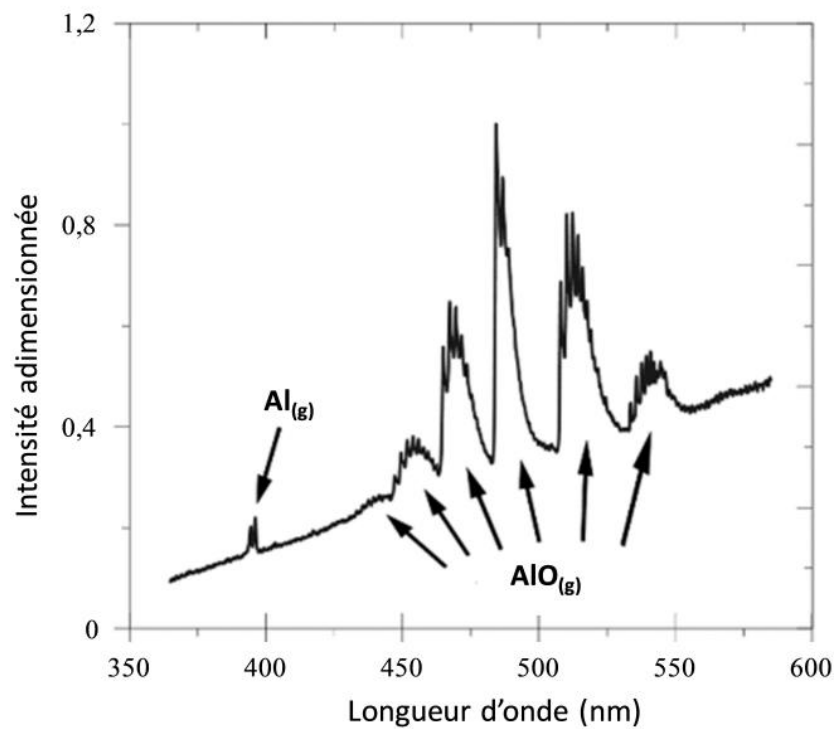


Figure II-7 — Spectre d'émission d'une flamme d'aluminium dans l'air (Lomba (2017)^[38]).

Enfin, durant de la combustion, la goutte d'aluminium est progressivement consommée pour produire de l'alumine. Ce processus de consommation des particules est similaire à celui des gouttes d'hydrocarbures. Le temps de combustion (t_c) de la particule d'aluminium, est corrélé au diamètre initial de la goutte (D_0) par la loi du D^2 , avec $t_c \propto D_0^2$.

II.2.1.3. Extinction

Plusieurs scénarii d'extinction peuvent être rencontrés. Le plus courant est l'extinction par manque de combustible. Ce processus survient quand la quantité d'aluminium disponible passe sous un certain seuil amenant à un arrêt progressif de la réaction. Il existe d'autres processus particuliers qui n'arrivent que très rarement, comme l'arrêt de la combustion par l'absorption de la particule d'aluminium par une autre particule plus grande, qui n'est pas allumée. Ces phénomènes sont très spécifiques et ne peuvent que difficilement être étudiés avec une bonne répétabilité. Un mode d'extinction courant est l'encapsulation de la goutte par le lobe d'alumine, ce qui stoppe la production d'aluminium gazeux et provoque donc l'arrêt brutal de la combustion. Lors de l'arrêt de la combustion, une baisse progressive de la température de la flamme est observée, jusqu'à passer sous la température de vaporisation de l'aluminium.

Un phénomène de surfusion peut apparaître lors de certaines combustions. La surfusion est un processus où la température d'un liquide est abaissée en dessous de son point de solidification sans qu'il ne devienne solide. La solidification n'est alors possible que si un échange d'énergie a lieu en direction de la particule de façon à ce que celle-ci voie sa température augmenter pour atteindre la température de fusion. Cette augmentation est perceptible pour l'aluminium, car expérimentalement, durant l'extinction, la goutte émet plus fortement sur une courte période, signe d'un gain d'énergie, puis continue son extinction progressive. Il est possible d'observer ce phénomène avec le dispositif expérimental du lévitateur électrodynamique (cf. III.6.2.1). Il est généralement observé pour l'eau et d'autres métaux ou alliage (Figure II-8).

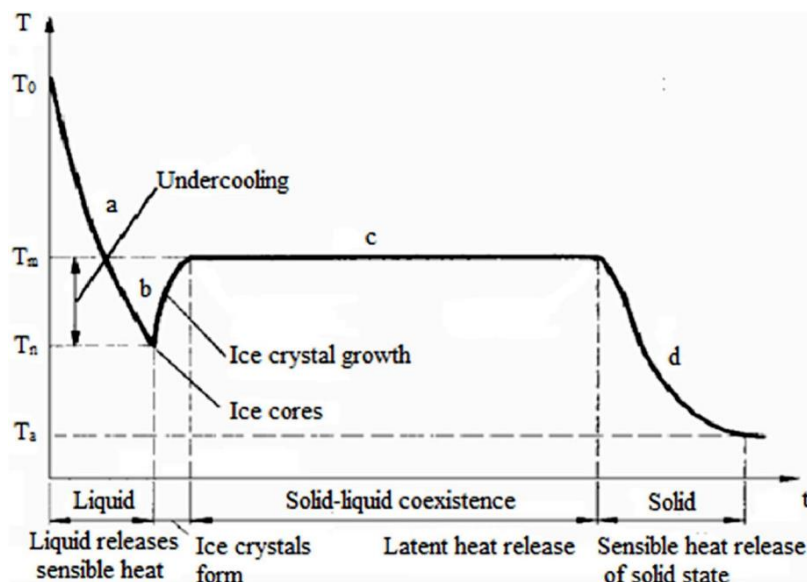


Figure II-8 — Représentation du phénomène de surfusion (Man et al. (2023)^[79])

Chapitre III : Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental exploité durant cette thèse a déjà été utilisé dans les travaux de Marion (1996)^[40], Legrand (2000)^[41] et Braconnier (2020)^[2]. Le dispositif initial, qui permet d'isoler une particule métallique, de l'aluminium pour cette étude, dans une atmosphère gazeuse dont la pression et la composition peuvent être choisies, et son système d'allumage ont été conservés. Pour isoler cette particule, un lévitateur électrodynamique est utilisé. Il est disposé dans une chambre haute pression (HP) qui contient l'ambiance gazeuse à étudier. La sélection d'une seule particule isolée permet d'étudier ses caractéristiques fondamentales de combustion, en comparaison avec les montages expérimentaux précédemment cités. Les effets de groupe, caractéristiques d'une combustion de poudre dispersée, n'interviennent pas dans cette étude. De même, il n'y a pas d'échange thermique supplémentaire provoqué par conduction ou convection tel que l'on peut les retrouver dans d'autres études. L'initiation de la combustion est ensuite réalisée par un laser CO₂, disposé à l'extérieur de la chambre HP, qui apporte l'énergie nécessaire pour débiter le processus réactionnel.

Les travaux de thèse de Braconnier (2020)^[2] ont permis la mise en œuvre d'un système de visualisation plus évolué. Précédemment, seule l'utilisation de caméras argentiques permettait d'avoir une bonne cadence d'image et d'étudier ainsi les réactions chimiques dont le temps caractéristique est de l'ordre de la milliseconde. Grâce à l'évolution technologique, l'utilisation des caméras numériques à haute cadence a permis d'améliorer le dispositif expérimental comme le montre le Tableau III-1 qui compare les différentes caméras utilisées lors des précédentes études de Marion (1996)^[40], Legrand (2000)^[41] et Braconnier (2020)^[2]. Ces enregistrements vidéo à haute fréquence sont nécessaires pour résoudre correctement l'évolution temporelle de la combustion d'une particule d'aluminium, dont la durée totale est comprise entre 1 et 100 ms en fonction de l'oxydant utilisé, ainsi que des conditions initiales de pression et de température. Les nouvelles caméras ultra rapides peuvent atteindre une fréquence de plus de 200 000 ips. Une haute cadence associée à une bonne résolution spatiale permet d'observer la combustion de la particule avec plus de détails, car les phénomènes rencontrés durant la combustion varient très rapidement (cf. II.2.1). L'utilisation d'une caméra numérique a aussi permis d'accroître considérablement le nombre d'expériences réalisées. Leur plage dynamique permet aussi de distinguer les éléments qui interviennent pendant la combustion, tels que le lobe et la goutte.

Différentes modifications ont été effectuées sur le dispositif expérimental pendant ces travaux de thèse. Premièrement, il y a eu la mise en place d'une résistance chauffante adaptée à la chambre HP et permettant de réaliser des essais en atmosphère chaude ou en présence de vapeur d'eau. Cette enveloppe chauffante avait été dimensionnée, conçue et réalisée durant les travaux de Braconnier (2020)^[2], mais n'avait pas pu être installée et utilisée. Dans un second temps, une nouvelle caméra ultra rapide, la Phantom TMX 7510, plus récente que

la Phantom v2512 utilisée jusqu'à présent, a été installée sur le dispositif afin d'encore améliorer la résolution et la vitesse d'acquisition. Ainsi, cette caméra permet d'atteindre des fréquences de 76 000 ips en pleine résolution (1280x800 px²), ou jusqu'à 200 000 ips, pour certaines expériences, en résolution plus réduite (256x256 px²). Ensuite, un pyromètre fut développé avec de nouveaux photomultiplicateurs (PM) pour suivre l'évolution temporelle de la température moyenne pendant la combustion. Enfin, l'ajout d'un spectromètre a permis d'identifier les espèces gazeuses rencontrées durant le processus réactionnel, mais aussi de remonter à la température de la phase gazeuse durant la combustion.

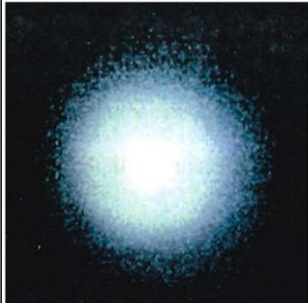
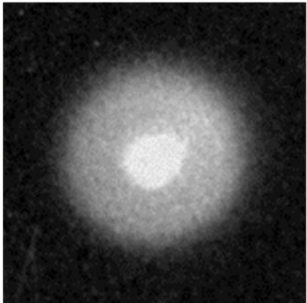
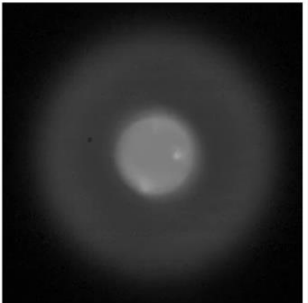
Étude	Marion (1996) ^[1]	Legrand (2000) ^[2]	Braconnier (2020) ^[3]
Caméra utilisée	Ektapro 1000	Himac 16HM / Cordin 350	Phantom v2512
Vitesse d'acquisition	1 000 ips	3 000 ips / 10 000 ips	25 000 ips
Rendu d'image			

Tableau III-1 — Comparatif des outils de capture d'image utilisés pour le lévitateur dans les précédents travaux de Marion (1996)^[40], Legrand (2000)^[41] et Braconnier (2020)^[2]. La vitesse d'acquisition correspond à un enregistrement en pleine résolution.

Ce chapitre décrit le fonctionnement du dispositif expérimental (Figure III-1) utilisé pour l'étude de la combustion de particules micrométriques d'aluminium. Il présente tous les éléments qui le composent. Pour apporter les éléments nécessaires à l'interprétation et à la compréhension des résultats, une description des méthodes d'analyse et de la méthodologie qui leur sont liées sera ensuite effectuée.

III.1. Système de lévitation électrodynamique

L'étude fondamentale de la combustion d'une particule d'aluminium est limitée soit par les effets de groupe avec les brûleurs de type bec Bunsen, soit par les échanges thermiques additionnels par conduction ou convection liés à l'utilisation de supports physiques, ou à l'utilisation des techniques de chute libre ou de lévitation aérodynamique. Le lévitateur électrodynamique permet d'isoler une particule unique sans aucun support matériel. Il permet de faire léviter une particule dans un puits de potentiel qui compense l'ensemble des forces s'appliquant à celle-ci de façon stable et dans une position répétable. Ce principe a déjà été mis en œuvre au sein de plusieurs dispositifs pour créer des balances électrodynamiques (Davis et al. (1990)^[80], Bar—Ziv et al. (1991)^[81] et W. H. Hartung et al. (1992)^[82]).

Le lévitateur fonctionne en superposant des champs électriques continu et alternatif appliqués à une particule préalablement chargée par effet triboélectrique. Le champ électrique continu permet la mise en place d'un potentiel électrique constant entre deux électrodes

disposées verticalement. Il permet de s'opposer à la force de pesanteur s'exerçant sur la particule. Bien que le poids soit compensé, la particule n'est pas dans une position stable. Un champ électrique alternatif, induit par une électrode circulaire, disposée entre les électrodes polaires produisant les champs continus, permet de stabiliser la particule. Cette électrode est percée radialement à ses quatre pôles pour permettre un accès optique au centre de la cavité. La Figure III-2 montre une représentation schématisée de la structure du léviteur utilisé durant cette thèse. La particule est représentée stabilisée au centre de la chambre par les deux électrodes inférieure et supérieure parcourues par un courant continu et par l'électrode circulaire parcourue par un courant alternatif.

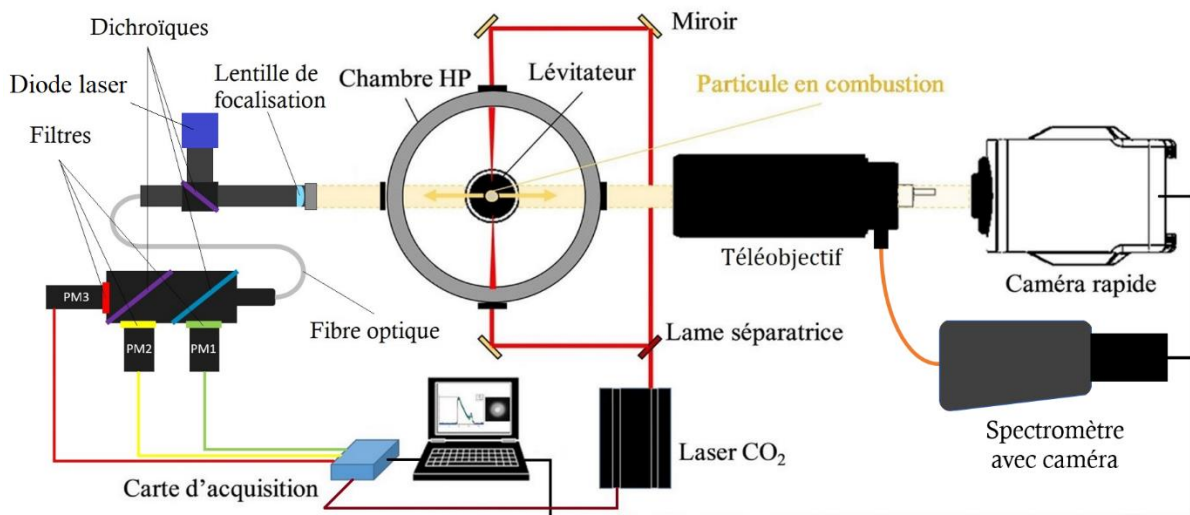


Figure III-1— Schéma de l'intégralité du dispositif expérimental

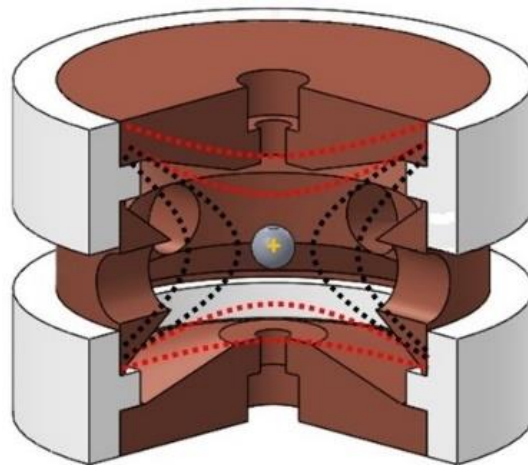


Figure III-2 — Schéma du léviteur électrodynamique (Braconnier, 2020^[2]).

Le champ électrodynamique est donc établi par trois électrodes indépendantes les unes des autres. Les électrodes supérieure et inférieure reçoivent toutes les deux une tension continue V_{dc} ce qui génère un champ électrique vertical $E_{z,dc}$ et un potentiel induit $\Phi_{z,dc}$, qui compense la force de pesanteur P . L'électrode centrale sert à maintenir et à stabiliser la particule au centre de la chambre. Elle est alimentée avec une tension alternative V_{ac} de fréquence f , et délivre un champ électrique E_{ac} et un potentiel induit Φ_{ac} représenté sur la

Figure III-3. Ce champ électrique résulte de la combinaison des composantes axiale $E_{z,ac}$ et radiale $E_{r,ac}$ qui induisent essentiellement une force centripète. Ainsi l'addition des champs électriques au sein de la chambre s'exprime avec l'Équation III-1 :

$$E = E_{ac} + E_{dc}$$

Équation III-1

$$E = \frac{(4.V \cdot \cos(2\pi.f.t) + V_1)}{2.z_0^2 + r_0^2} \cdot \frac{r}{2} \cdot \vec{r} - \left(\frac{4(V \cdot \cos(2\pi.f.t) + V_1)}{2.z_0^2 + r_0^2} \cdot z - C_{DC} \cdot V_{DC} \right) \cdot \vec{z}$$

avec V_1 le potentiel moyen entre les deux électrodes verticales, z_0 la hauteur de l'électrode supérieure par rapport au centre de la chambre, r_0 le rayon interne de l'électrode circulaire, z et r les composantes axiales du champ électrique, C_{DC} une constante géométrique pouvant être déterminée expérimentalement et V_{DC} la différence de potentiel entre les électrodes supérieure et inférieure

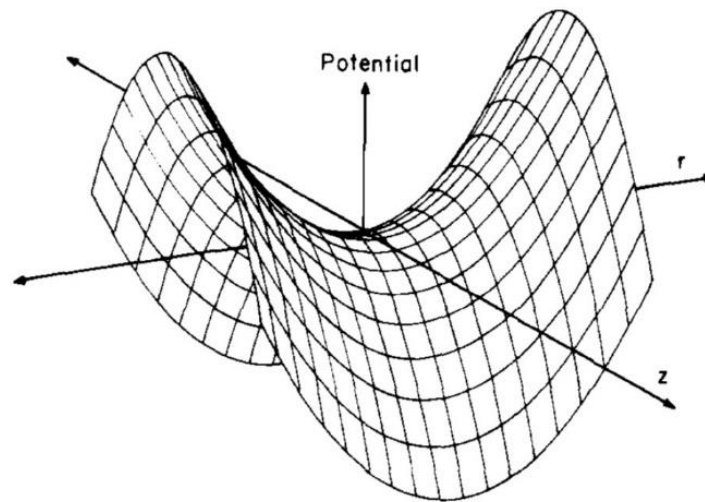


Figure III-3 — Représentation bidimensionnelle du potentiel électrique alternatif ϕ_{ac} (Bar-Ziv et Sarofim, 1991^[81])

Les champs électriques sont utilisés pour centrer la particule de façon à permettre la réalisation d'expériences reproductibles sans phénomène parasite. Toutefois, Brande (1814)^[83] a montré qu'un champ électrique pouvait déformer la flamme d'une bougie. Dreizin (1996)^[84] a fait un constat similaire à Brande dans le cas de la combustion de particules d'aluminium et a observé une modification de l'aspect visuel de la microflamme et des temps de combustion. Contrairement à leurs travaux, aucune déformation préférentielle de la flamme n'est observée avec les diagnostics du dispositif utilisé pour cette étude. La surface de la particule d'aluminium à l'état liquide, nommée « goutte », est parfaitement homogène. La visualisation directe de la goutte en combustion au sein du lévitateur sous tension montre que la géométrie de la flamme de diffusion est bien sphérique. Cette différence de comportement s'explique par l'intensité des champs électriques utilisés qui est largement plus importante dans le cas de Dreizin (1996)^[84] que dans les travaux actuels. Le champ induit est de 21 à 51 fois plus intense dans son expérience (entre 2105 et 5104 kV/m contre seulement 100 kV/m au maximum pour le lévitateur utilisé dans cette étude). Une étude de l'impact du champ électrique au cours de la combustion a été menée par Bar-Ziv (1991)^[81]. Il démontre

que le champ électrique n'influence quasiment pas la combustion, car, à haute température, la particule perd ses charges par émission thermoionique. D'après ces travaux, le temps caractéristique pour la perte totale de charge d'une particule d'aluminium est bien inférieur à la centaine de microsecondes pour une particule à plus de 1500 K. En conclusion, la particule sera entièrement déchargée à haute température et donc le champ électrique n'aura aucun impact sur la combustion.

III.2. Environnement de combustion

Le lévitateur électrodynamique permet d'isoler une particule unique pour analyser la combustion de l'aluminium dans des conditions maîtrisées et répétables. Un dispositif permettant de régler la pression et la composition chimique du milieu environnant est nécessaire pour s'approcher des conditions réelles de la postcombustion d'un explosif. Une chambre Haute Pression (HP) instrumentée a donc été utilisée pour répondre à cette demande. Elle permet de placer le système de lévitation dans un environnement contrôlable et modulable (Figure III-4).

La chambre HP est constituée de différentes parties métalliques en alliage d'aluminium EN AW-2017A. Cette enceinte de 37 mm d'épaisseur permet de résister à la pression et à l'oxydation qui pourrait être provoquée par les espèces choisies comme environnement gazeux. Le centre de la chambre est constitué d'un cylindre fermé à chaque extrémité par un couvercle. La forme cylindrique a été choisie pour résister à de fortes pressions. La pression maximale supportée par la chambre est de 120 bars à température ambiante.

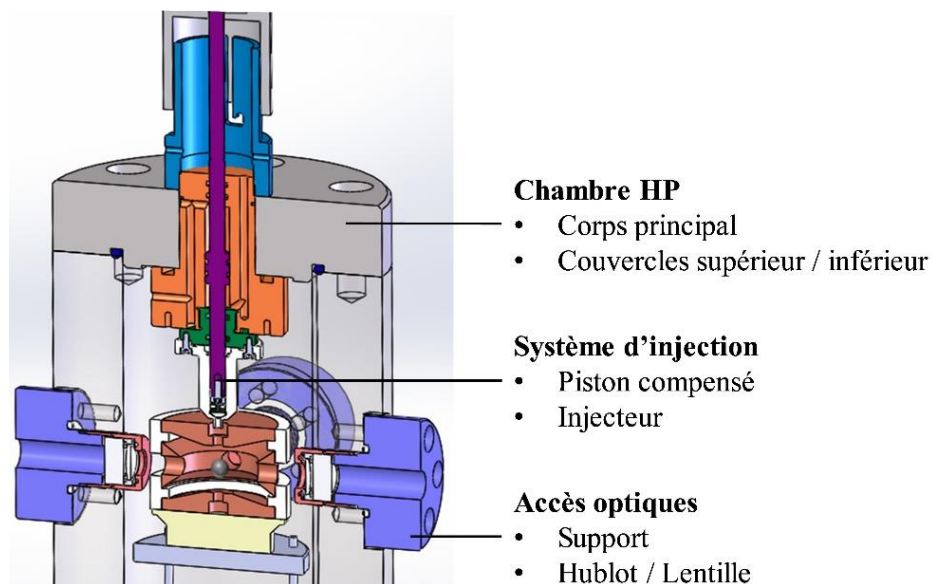


Figure III-4 — Schéma de la chambre haute pression instrumentée contenant le lévitateur électrodynamique (Braconnier (2020)^[2])

Cette enceinte est alimentée en gaz par plusieurs lignes équipées de manomètres. Les bouteilles de gaz pressurisées contenant les différents éléments nécessaires pour choisir l'environnement gazeux souhaité (Air, CO₂, N₂...) sont stockées dans un local technique dédié

situé à l'extérieur de la pièce contenant le lévitateur. À l'aide de vannes micrométriques disposées sur les lignes d'alimentation, il est possible d'injecter précisément le gaz souhaité. Un manomètre numérique permet de connaître la pression absolue à l'intérieur de la chambre et, grâce à cela, de régler la composition du milieu avec précision en jouant sur les pressions partielles de chaque espèce.

Cette chambre HP comporte plusieurs éléments permettant d'injecter, d'allumer et de visualiser les particules. L'injection est réalisée grâce à un piston à pression compensée, ce qui permet d'actionner le piston indépendamment de la pression qui se trouve dans la chambre. Il est intégré à la partie supérieure de celle-ci où une seringue est fixée. Cette dernière est constituée en plastique PEEK (PolyEtherEtherKetone) résistant à la chaleur, et contient les particules métalliques préalablement chargées par friction. Des hublots sont disposés par paire à l'opposé l'un de l'autre, à mi-hauteur du cylindre central. Pour l'axe d'observation, la chambre est munie de deux hublots en fluorure de baryum ($\text{BaF}_2/\text{ZKN7}$) qui laissent passer l'ensemble du spectre visible. Pour l'allumage de la particule, deux autres accès sont prévus pour propager et focaliser le faisceau du laser. Ces derniers sont constitués de sélénure de zinc (ZnSe) qui permet de transmettre efficacement le rayonnement infrarouge du laser CO_2 ($10,6 \mu\text{m}$) et celui de la diode laser de calibrage. Une lentille de focalisation, qui est également en ZnSe et qui possède une focale de 50 mm, est disposée derrière ce hublot, afin de focaliser l'énergie du laser CO_2 sur la particule.

Un mécanisme permettant de produire et d'injecter de la vapeur d'eau sous pression dans la chambre HP a été conçu et ajouté par Braconnier (2020)^[2]. Il est constitué d'un réservoir d'eau équipé d'un système de chauffage par résistance qui permet son évaporation. Une fois évaporée, la vapeur d'eau est guidée à l'aide de lignes chauffées vers la chambre HP puis elle est injectée via le couvercle inférieur de la chambre. La chambre HP et les lignes de gaz sont chauffées par une résistance électrique qui les entoure. La température est paramétrée selon la pression souhaitée en prenant en compte le diagramme de phase de l'eau pour la conserver à l'état gazeux. Toutes les températures sont pilotées par des régulateurs et suivies par des thermocouples positionnés dans le réservoir, sur les lignes d'alimentation en gaz, dans la chambre et sur la surface de celle-ci. Ce mécanisme élargit la variété des ambiances gazeuses qu'il est possible d'étudier dans le dispositif, et permettra d'acquérir des informations supplémentaires sur la combustion de l'aluminium dans des conditions encore peu documentées dans la littérature.

III.3. Système d'allumage : Laser CO_2

Un laser CO_2 ($\lambda_{\text{laser}} = 10,6 \mu\text{m}$) SYNRAD 48-5 est utilisé pour apporter l'énergie nécessaire à l'allumage de la particule. Celui-ci fut monté et étudié par Marion (1996)^[40]. En conclusion de son étude, la seule interaction relevée était une élévation de la température au sein de la particule, sans observer d'effet de photodissociation. D'après ces résultats, il est démontré que l'utilisation du laser permet d'initier la combustion d'une façon compatible avec l'étude de la postcombustion, où la chaleur est transmise par la convection et par rayonnement du milieu.

Le faisceau généré par le SYNRAD 48-5 est gaussien et d'un diamètre ($D_{0,waist}$) de 3,5 mm. Il est séparé en deux par une lame séparatrice 50/50 en ZnSe. Les deux faisceaux sont guidés et réfléchis par un ensemble de miroirs en silicium plaqués or vers deux hublots diamétralement opposés. Ils sont focalisés par une lentille de focalisation ($f = 50$ mm) se trouvant sur chacun des deux accès optiques (Figure III-5). Avec ce système, la particule lévitant au centre de la chambre, qui se situe au plan focal des deux lentilles, est chauffée symétriquement pour conserver sa position dans la chambre. Avec les relations optiques de conjugaison gaussienne (Équation III-2), il est possible de déterminer le diamètre du faisceau au point focal. Cette relation dépend du diamètre objet du rayon ($D_{0,waist}$), de la longueur d'onde du laser (λ_{laser}) et de la longueur focale de la lentille de focalisation (f). La distance de Rayleigh (Z_R) est définie par l'Équation III-3 comme la distance à partir de laquelle la section transversale du faisceau est multipliée par un facteur $\sqrt{2}$. Si elle est supérieure à la distance parcourue par le faisceau laser avant focalisation, alors le diamètre du laser peut être considéré comme constant. La valeur de Z_R est de 0,92 m dans le cas du dispositif expérimental utilisé pour cette étude. La distance parcourue par le laser jusqu'à la lentille de focalisation (0,70 m pour le parcours le plus long et 0,20 m pour le plus court) est inférieure à la distance de Rayleigh donc le diamètre du faisceau au niveau de la lentille peut être considéré comme identique au diamètre initial du faisceau $D_{0,waist}$. Le diamètre du faisceau dans le plan focal ($D'_{0,waist}$) est de 191 μm , pour un diamètre de particule étudiée compris entre 20 et 100 μm . L'énergie du laser est donc répartie de façon homogène sur la particule.

$$D'_{0,waist} = \frac{4 \cdot f \cdot \lambda_{laser}}{\pi \cdot D_{0,waist}} \quad \text{Équation III-2}$$

$$Z_R = \frac{\pi \cdot D_{0,waist}^2}{4 \cdot \lambda_{laser}} \quad \text{Équation III-3}$$

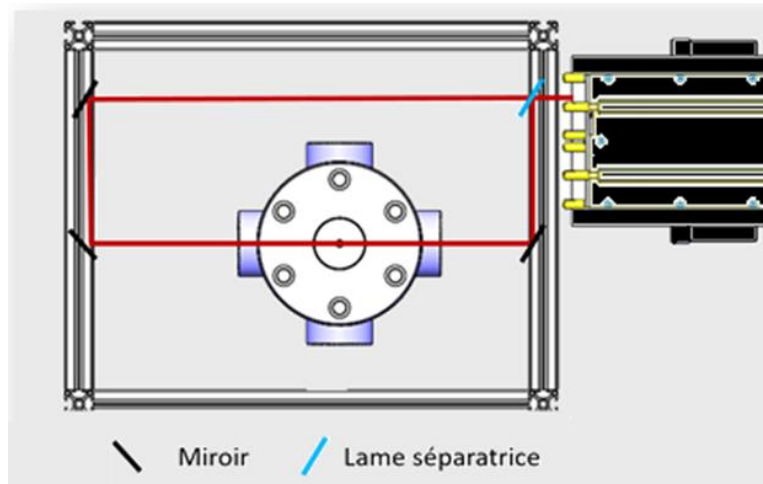


Figure III-5 — Schéma du chemin du laser CO₂ SYNRAD 48-5, lame séparatrice 50/50 en bleu et miroirs plaqués or en noir (Braconnier (2020)^[2])

La puissance du laser est paramétrable avec une commande intermédiaire et elle est stable durant toute l'impulsion. Sa puissance maximale exploitée est de 50 W et le coefficient de transmission global du trajet optique τ est mesuré à 0,85. La densité surfacique de puissance du laser est évaluée après focalisation à $1,48 \times 10^9 \text{ W.m}^{-2}$.

Wilson Jr et al. (1971)^[46] proposent que la valeur de cette grandeur soit égale à 10^{10} W.m^{-2} plus ou moins 20 % pour obtenir un allumage de la particule en 200 μs . Cela signifie que la densité surfacique d'énergie nécessaire pour l'allumage est de $2 \times 10^6 \text{ J.m}^{-2}$, alors, avec le dispositif expérimental, pour atteindre la densité surfacique d'énergie nécessaire, le temps de chauffage doit être supérieur 1,35 ms. Dans la présente étude, le temps de chauffage avant d'atteindre la température nécessaire à la rupture de la couche d'alumine, qui fixe le début de la réaction, est de l'ordre de la milliseconde. Ce temps plus long est cohérent avec l'étude de Wilson Jr et al. (1971)^[46]. Il est précisé qu'une densité surfacique de puissance supérieure à 10^{11} W.m^{-2} peut entraîner un déplacement lors de l'impulsion laser, projetant la particule en dehors du champ d'études. De plus, une densité inférieure à 10^8 W.m^{-2} ne permet pas d'atteindre la température de fusion de l'alumine ($T_{\text{fus}} = 2050 \text{ °C}$ à 1 bar), ce qui empêche la rupture de la couche qu'elle forme sur la particule et inhibe le régime de diffusion. Enfin, Marion (1996)^[40] a montré que l'énergie transmise par le laser à la particule est indépendante de milieu environnant. Les paramètres du dispositif permettent un allumage rapide tout en préservant la stabilité et l'intégrité de la particule.

III.4. Diagnostics optiques

Les outils d'analyse utilisés dans le dispositif reposent sur des diagnostics optiques. Il y en a trois types : les photomultiplicateurs, la caméra rapide et le spectromètre. La section III.6 précise la méthode de dépouillement des mesures.

III.4.1. Photomultiplicateurs

Les Photomultiplicateurs (PM) sont utilisés pour détecter les signaux optiques provenant de sources faiblement émettrices. Le dispositif est équipé de 3 PMT1002 de chez Thorlabs. Ces PM sont commandés à l'aide d'un logiciel constructeur qui permet de choisir la tension d'alimentation à appliquer et ainsi de faire varier leur gain. Ils permettent de collecter le rayonnement émis par la particule pour la transformer en signal de tension, ce qui permet de suivre son évolution lumineuse au cours du processus de combustion. Cet outil est très utile, car il permet de suivre l'évolution temporelle de la combustion. Il est également utilisé comme signal pour arrêter le laser CO_2 et permet de mesurer la température moyenne à un instant donné de la combustion.

Le fonctionnement d'un PM est le suivant. Les PM utilisent des éléments de détecteur alcalin ou GaAsP qui offrent une sensibilité aux rayons UV, visibles et NIR. Leur performance peut être quantifiée par leur efficacité quantique (EQ exprimée en %) qui décrit le nombre de photons incidents convertis en électrons. L'efficacité quantique est étroitement liée à la sensibilité radiante (SR exprimée en mA.W^{-1}), comme le montre l'Équation III-4. Les courbes de sensibilité radiante des PM et celle de leur efficacité quantique sont indiquées sur la Figure III-6. Ces PM ont une réponse spectrale large bande (185 – 900 nm), un gain élevé (supérieur à 10^7) et un temps de réponse rapide (1,4 ns). Afin de générer un gain interne élevé, les électrons initialement captés par la photocathode du PM sont accélérés par un potentiel à haute tension, de l'ordre du kilovolt. Ce potentiel pousse les électrons à frapper plusieurs dynodes qui génèrent des électrons secondaires. Le courant photoélectrique qui s'est accumulé représente le signal amplifié et est recueilli par une anode. Il est ensuite

généralement envoyé dans un amplificateur de transimpédance qui convertit le courant photoélectrique en tension et fournit une amplification supplémentaire. Le signal analogique est transmis à une carte d'acquisition USB-1808X qui permet de visualiser et d'enregistrer le signal sur 18 bits avec un pas de quantification de 75 μV et une fréquence de sortie maximale de 100 kHz. La fréquence d'acquisition utilisée pour ces travaux est de 50 kHz.

$$EQ (\%) = \frac{SR (mA/W)}{\lambda (nm)} \times 124 \quad \text{Équation III-4}$$

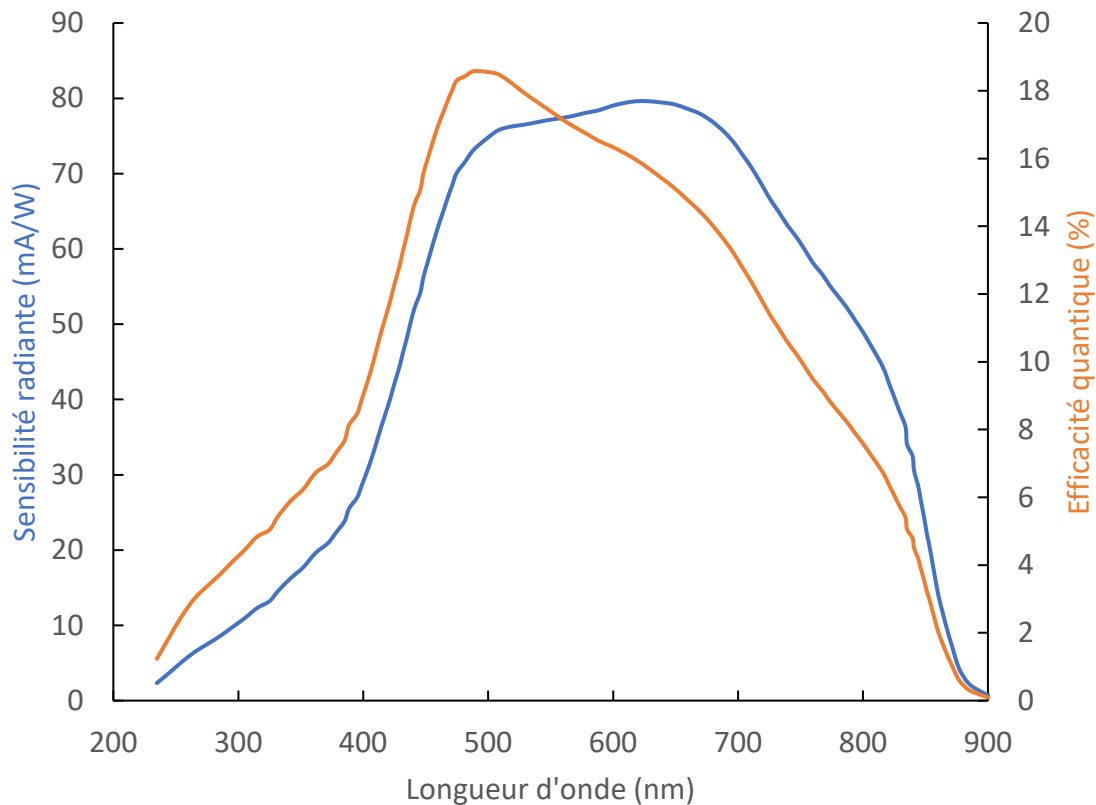


Figure III-6 — Courbes de la sensibilité radiante et de l'efficacité quantique des modules PM utilisés en fonction de la longueur d'onde.

Les PM sont disposés sur un module de fixation afin de former un pyromètre dont le fonctionnement est décrit dans la section III.6.3. Ce module permet d'échanger facilement les jeux de filtres dichroïques et les filtres de couleur. Ces filtres permettent de répartir le signal lumineux sur des plages de longueurs d'onde d'intérêt pour chaque PM, en minimisant la perte de signal. Cette configuration permet la détection de signaux à trois longueurs d'onde différentes. Le module dispose d'un connecteur à fibre optique SMA pour fixer un câble de connexion à fibre optique multimode. Cette fibre est reliée au système optique centré sur la chambre HP qui est utilisé pour collecter les émissions lumineuses et les concentrer dans la fibre. Il intègre pour cela une lentille plan-convexe ($f = 150 \text{ mm}$) dirigée vers le centre du lévitateur et située à 150 mm de ce dernier (Figure III-7).

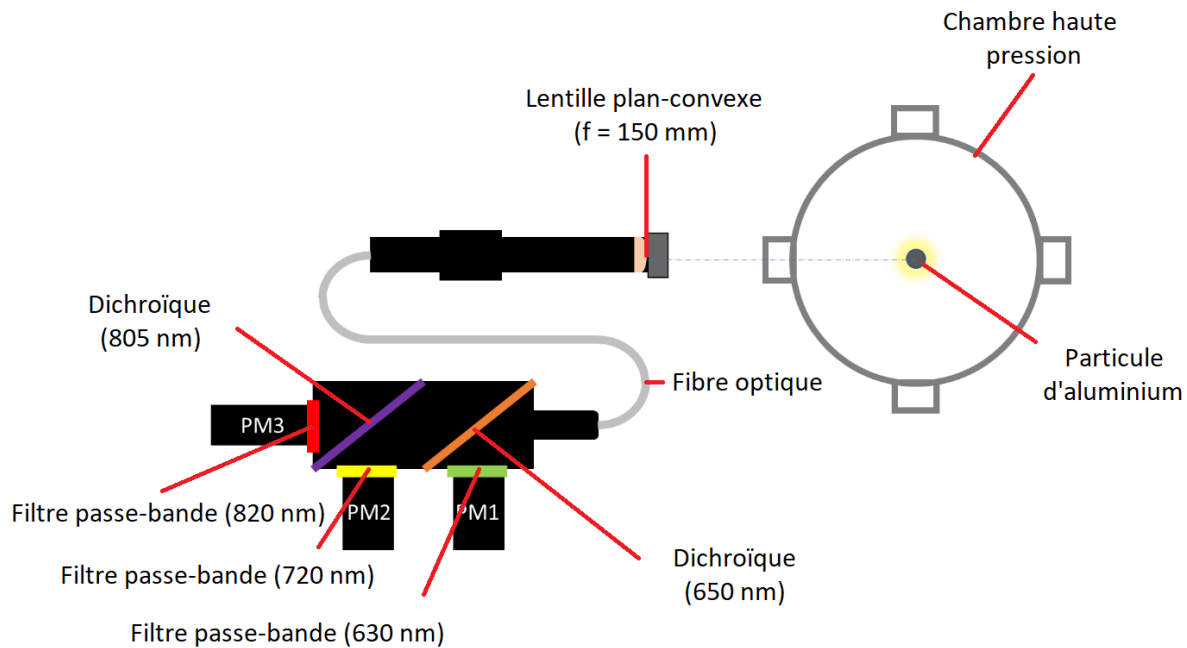


Figure III-7 — Schéma détaillé du pyromètre constitué par les PM

III.4.1. Spectromètre

Un spectromètre IsoPlane SCT 320 couplé à une caméra PI-MAX 4 avec une résolution de 1024x1024 pixels a été ajouté au dispositif expérimental. Il permet d'acquérir le spectre d'une source lumineuse, dans une gamme spectrale définie. La distance focale du spectromètre est de 320 mm. Il est équipé de tourelles à triple réseau interchangeables qui permettent un fonctionnement de l'UV au NIR avec des niveaux de lumière très faibles et une résolution spectrale élevée, faible ou moyenne. Le spectromètre permet un échantillonnage des mesures sur 32 bits et est doté de fentes d'entrée contrôlées au micromètre. Le spectromètre est paramétré dans la gamme de longueurs d'onde entre 460 et 520 nm avec une dispersion de 0,061 nm/px. La résolution spectrale du système est déterminée à 5,61 cm^{-1} et celle de la caméra et de 0,13 nm. La capacité de déclenchement est de l'ordre d'une centaine de picosecondes, permettant l'application de l'imagerie et de la spectroscopie à résolution temporelle. La caméra offre une cadence d'acquisition de 5 MHz et une très bonne sensibilité.

Le spectromètre a été calibré à l'aide d'une lampe à mercure. Un système de calibrage automatique intégré au logiciel du constructeur convertit les images reçues par la caméra en spectres en se basant sur les pics d'émission de la lampe à mercure.

III.4.2. Caméra rapide

Une nouvelle caméra rapide a été installée sur le dispositif expérimental. Il s'agit d'une caméra PHANTOM TMX 7510 couplée au téléobjectif longue distance utilisé précédemment sur le dispositif, le QUESTAR QM100, qui est focalisé sur la particule en lévitation. Cette caméra est capable d'enregistrer à 76 000 ips en pleine définition (1280x800 px²), mais elle est principalement utilisée dans ces travaux avec une cadence d'acquisition de 78 000 ips et une définition de 758x758 px². Pour des cas particuliers tels que la combustion dans la vapeur

d'eau présentée dans la partie IV.1.3.1, des vidéos ont été réalisées avec une cadence d'acquisition de 230 000 ips pour une définition de 256x256 px². La caméra rapide utilisée durant la thèse de Braconnier (2020)^[2] était une PHANTOM V2512. Elle permet une acquisition à une cadence de 16 000 ips et à une définition maximale de 1280x800 px². Le nouveau matériel représente une avancée significative pour observer les phénomènes de l'ordre de la dizaine de microsecondes. Le couplage entre la caméra et le téléobjectif offre une résolution comprise entre 1 et 2 $\mu\text{m}/\text{px}$. Une mesure de la résolution est réalisée avec un objet de dimension connue après chaque déplacement du système optique. Le montage optique permet d'obtenir une profondeur de champ qui est d'environ 500 μm . Cela explique la nécessité de réaliser de nombreux essais pour que les objets observés restent nets et dans le champ de la caméra durant une grande partie de la combustion. Pour des combustions dans des environnements standards ou très réactifs (surpression, suroxygénée...), des phénomènes de spinning et de jetting vont éjecter les particules hors du champ de vision de la caméra. La réponse spectrale du montage est limitée par celle du capteur de la caméra, présentée sur la Figure III-8.

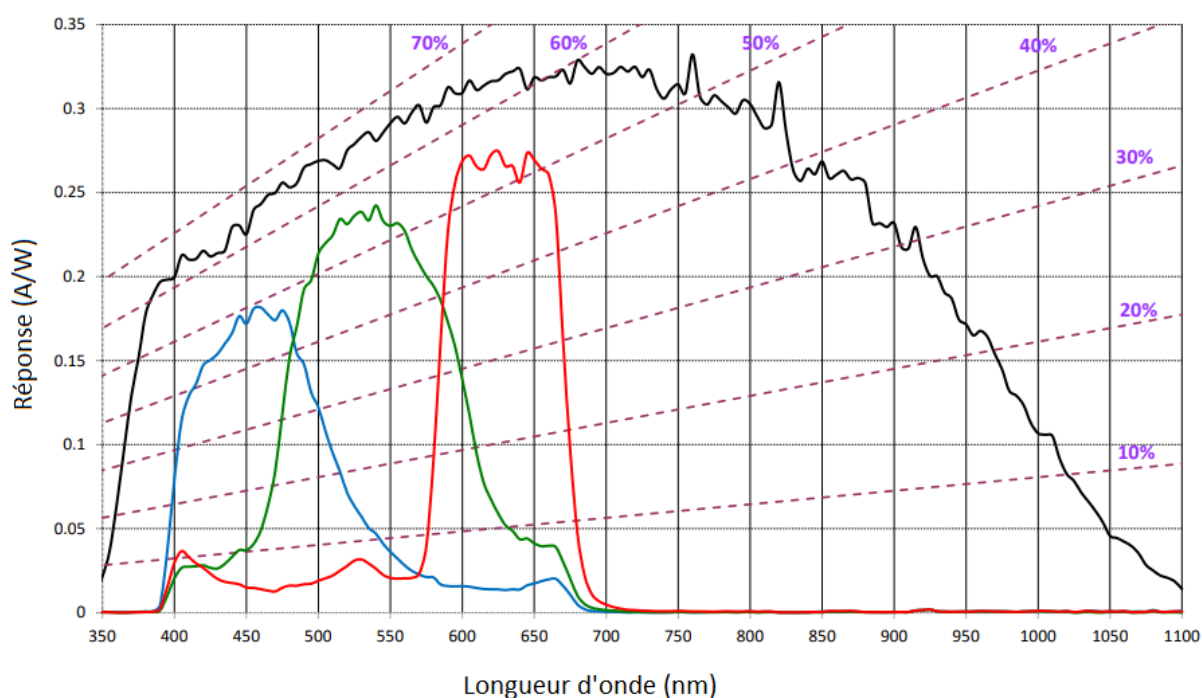


Figure III-8— Réponse spectrale et efficacité quantique de la caméra PHANTOM TMX 7510 — La courbe noire représente la réponse spectrale de la caméra — En violet : pourcentage d'efficacité quantique de la caméra — Les courbes bleue, verte et rouge sont les réponses spectrales de la caméra en mode couleur (celle du dispositif n'étant pas équipée de cette option, il ne faut pas tenir compte de ces courbes).

III.5. Procédure expérimentale

La première étape du protocole expérimental consiste à créer une atmosphère contrôlée en composition et en pression dans la chambre HP. Les différents gaz sont injectés successivement en respectant les pressions partielles respectives des différentes espèces du mélange final. Avant le remplissage, une pompe à vide externe est activée pour produire un

vide relatif. La pression absolue minimale à l'intérieur de l'enceinte est inférieure à 0,09 bar quand la pompe est activée. Pour limiter l'imprécision causée par ce volume mort, la chambre est remplie avec le mélange gazeux désiré à une pression élevée (supérieure à 10 bar) avant une nouvelle mise au vide de la chambre. L'opération est répétée plusieurs fois, permettant que le volume mort soit majoritairement constitué du mélange à étudier.

Le laser est préalablement aligné sur l'emplacement correspondant à la zone de stabilisation de la particule au centre du lévitateur. Son bon alignement peut être vérifié par une diode laser rouge dont le trajet optique est superposé avec celui du faisceau du laser CO₂. Il est indispensable de s'assurer préalablement de ce bon alignement entre les deux faisceaux. L'activation du laser constitue la référence de temps pour l'observation par la caméra et les PM. L'arrêt du laser se fait lorsque l'émission lumineuse de la particule chauffée dépasse un seuil variable selon les expériences, garantissant ainsi la combustion autonome de la goutte d'aluminium. Cette émission lumineuse est due à l'emballement thermique qui suit le début de la combustion (Figure III-9), car le seuil d'arrêt du laser est optimisé pour correspondre à la période où l'aluminium et sa couche d'alumine se liquéfient. Cette détection est réalisée automatiquement et en temps réel grâce aux enregistrements des photomultiplicateurs.

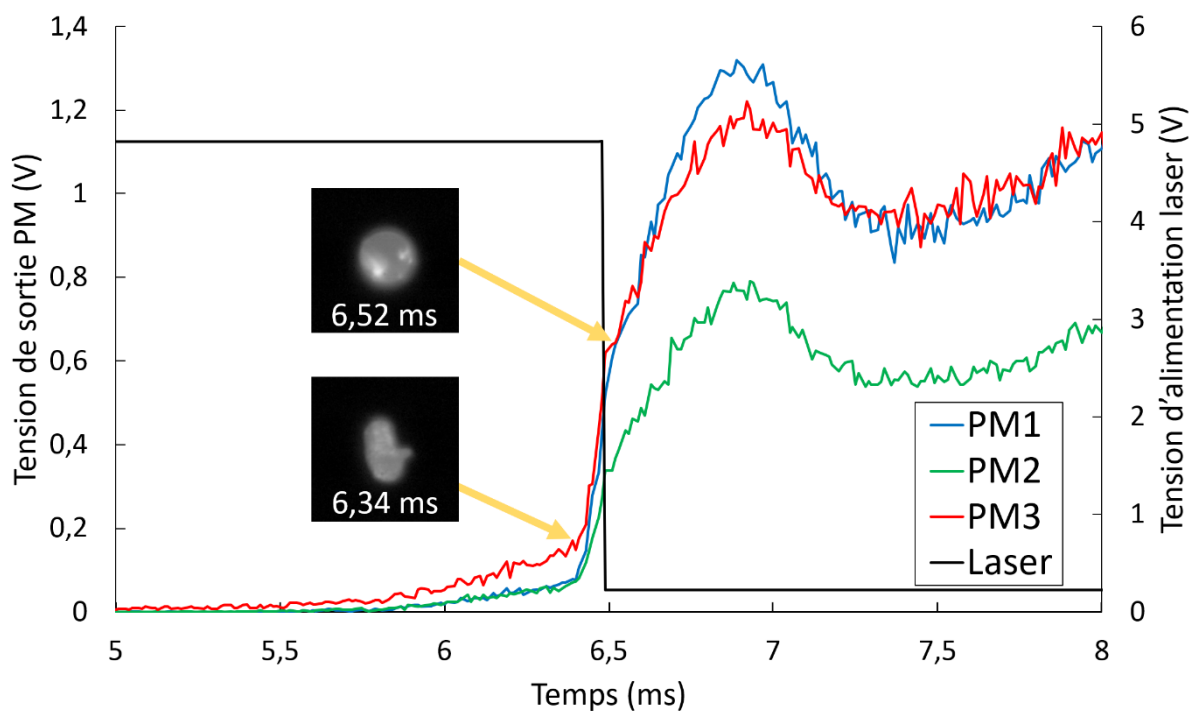


Figure III-9 — Visualisation de l'initiation de la combustion d'une particule d'aluminium. Les courbes bleu, verte et rouge correspondent respectivement aux signaux PM 1, 2 et 3. La courbe noire représente l'alimentation du laser.

Les particules d'aluminium sont chargées par friction en utilisant l'effet triboélectrique puis injectées dans le lévitateur à l'aide d'un piston compensé une fois le mélange gazeux établi. Plusieurs particules sont alors introduites et, comme leur charge les rend sensibles au champ électrique induit par les électrodes, elles restent piégées sur des lignes du champ (Figure III-10). Une opération manuelle de sélection est réalisée en ajustant les paramètres de tension pour ne conserver qu'une seule particule au centre du lévitateur.



Figure III-10 — Photographie prise par l'un des hublots de la chambre montrant des particules chargées dans le champ électrique du lévitateur. Les particules sont illuminées par une source de lumière disposée devant l'un des hublots situés sur l'axe perpendiculaire à l'axe de visée utilisé pour la photographie.

Lorsqu'une particule est centrée dans la chambre et que la diode l'illumine, la particule est également alignée avec le laser. Le laser et les diagnostics optiques sont déclenchés en même temps.

III.6. Analyse et traitement

Les informations fournies par les diagnostics intégrés au dispositif expérimental avant ces travaux sont limitées : les PM permettent d'estimer le temps de combustion et la caméra rapide donne accès à la phénoménologie et à quelques grandeurs physiques de la particule. Pour améliorer la compréhension globale de la combustion des particules d'aluminium, des diagnostics complémentaires ont été installés au dispositif. Un système de pyrométrie a été mis en place. Il permet de mesurer l'évolution temporelle de la température moyenne globale lors de la combustion. Un spectromètre a également été ajouté. Il renseigne sur les espèces excitées mises en jeu durant la combustion. Il permet également d'obtenir une information sur la température de la phase gazeuse grâce à la mesure des raies d'AlO. Des programmes codés avec le logiciel Matlab ont été développés dans le cadre de cette thèse afin de traiter les images, les signaux PM et les données du spectromètre.

III.6.1. Analyse des images/vidéo

L'utilisation d'une caméra rapide par Braconnier (2020)^[2] a permis d'obtenir des séquences d'images inédites permettant de détailler les phénomènes en jeu. Les réglages de la caméra (temps d'exposition, fréquence...) doivent être adaptés aux phénomènes à visualiser afin d'obtenir des images nettes et contrastées. La Figure III-11 représente une particule d'aluminium brûlant sous forme de goutte dans de l'air à pression atmosphérique. Dans cet exemple, un lobe d'alumine est visible en surface de la goutte d'aluminium. Il est identifiable par son rayonnement plus intense que celui de l'aluminium. Cette différence de luminosité s'explique notamment par leur émissivité différente. Une flamme de diffusion peut aussi être observée autour de la goutte. Elle est essentiellement visible grâce à la présence de particules submicroniques d'alumine condensée qui rayonnent à haute température.

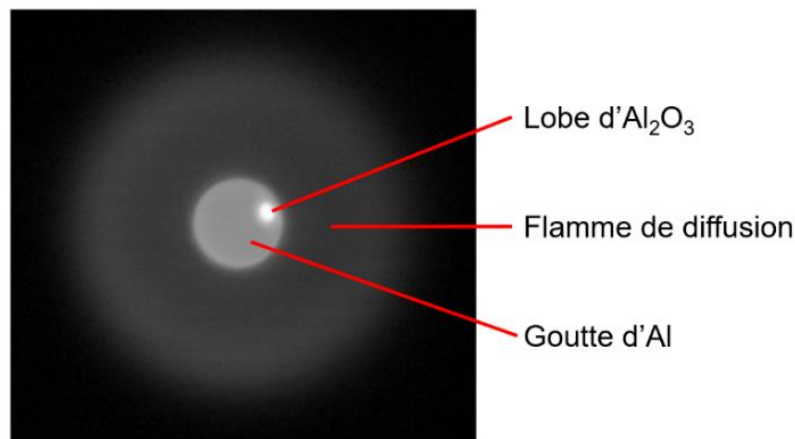


Figure III-11 — Image d'une goutte d'aluminium durant sa combustion dans de l'air à pression atmosphérique.

Les méthodes de traitement d'image présentées dans cette partie ont été reprises des travaux de thèse de Braconnier (2020)^[2] et adaptées pour convenir au changement de caméra rapide survenu au cours de ces travaux.

Le premier objectif est de suivre la goutte durant sa combustion. Une soustraction du fond parasite, provoqué par la réponse de chaque pixel dans le noir absolu, est nécessaire pour réduire le bruit numérique résiduel. Ensuite, une méthode de seuillage est appliquée. Elle permet de délimiter une zone d'intérêt et de cibler l'ensemble flamme/goutte (Figure III-12).

La mesure du diamètre de la goutte et de la flamme se fait ensuite par l'interprétation des profils d'intensité. La Figure III-13 illustre la méthode de mesure du diamètre de la goutte d'aluminium pendant la combustion. L'interface flamme/goutte est identifiable par un changement d'intensité lumineuse marqué. Un masque est appliqué pour supprimer la majorité de la flamme, ce qui limite les contributions des éléments lumineux extérieurs et facilite le traitement des données. Pour éviter des problèmes de détection, le lobe d'alumine présent à la surface de la goutte est ciblé par seuillage puis masqué en lui attribuant un niveau d'intensité égal au niveau de gris moyen de la goutte. Ce dernier est déterminé sur un ensemble de pixels centraux ($25 \times 25 \text{ px}^2$) de la zone d'intérêt de l'ensemble goutte/flamme, déterminé précédemment et qui est centré sur la goutte. La goutte étant moins brillante que le lobe, alors seules les valeurs basses sont conservées pour déterminer le niveau de gris moyen. Les niveaux de gris sont alors extraits sur plusieurs profils verticaux et horizontaux (~ 5 profils par axe). Ils sont dérivés puis les extrema de la dérivée sont identifiés tout en ignorant le passage masque/flamme, ce qui permet de localiser le bord de la goutte. Sur l'ensemble des profils (i) étudiés par axe l'écart entre les deux extrema induits par la limite de la goutte est mesuré, il permet de déterminer le diamètre de la goutte pour les différents profils, noté $D_{g,i}$. Une moyenne des $D_{g,i}$ horizontaux et verticaux permet enfin de déterminer le diamètre de la goutte, noté D_g . Cette méthode limite les erreurs de détection de la goutte en mesurant différents profils.

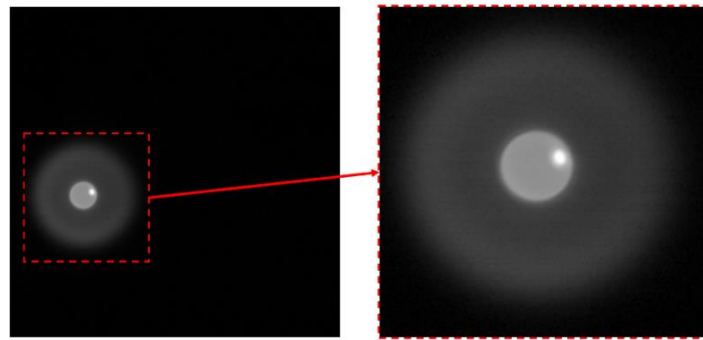


Figure III-12 — Démonstration du fonctionnement de la détection de la zone d'intérêt lors de la combustion.

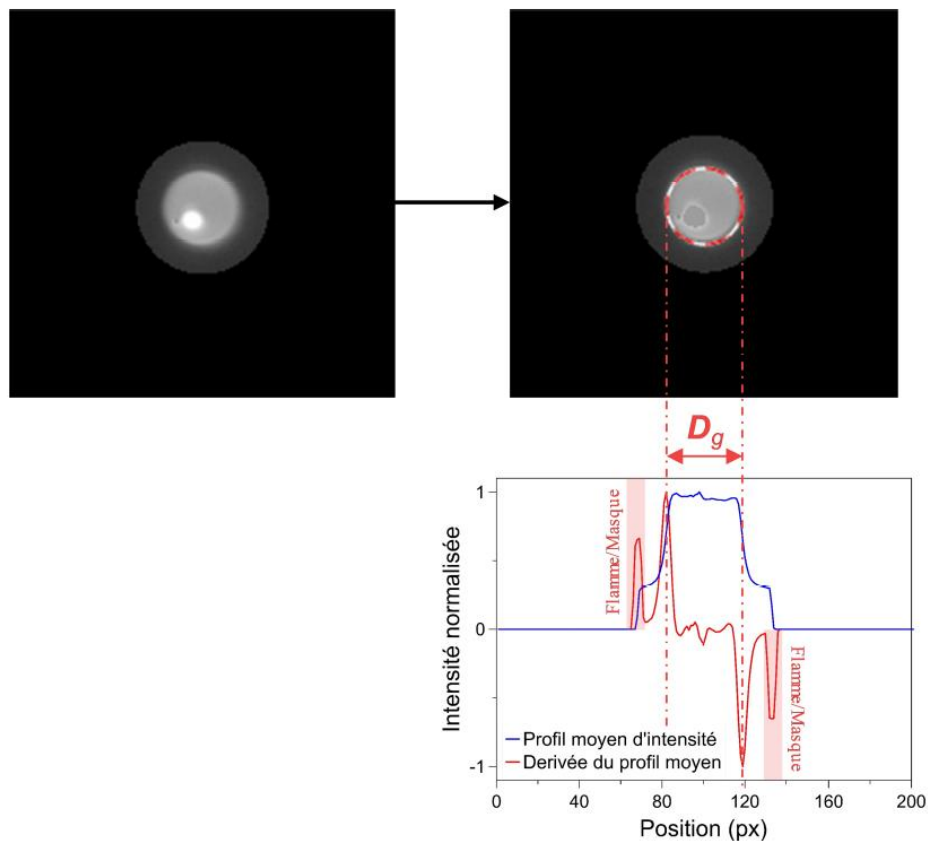


Figure III-13 — Illustration de la méthode de détection du diamètre de la goutte durant la combustion (Braconnier (2020)^[2]).

Une des propositions pour définir le diamètre de la flamme est de considérer la position où tous les produits de combustion intermédiaires, tels que du AlO , sont entièrement consommés. D'après les études de Bucher et al. (1996)^[85], la fin de la réaction d' AlO coïncide avec le maximum de la concentration en $\text{Al}_2\text{O}_{3(l)}$ et avec le maximum de température. Braconnier (2020)^[2] utilise la méthode de mesure du maximum de concentration en alumine dans la flamme pour déterminer son diamètre. À la suite d'un traitement d'image, il retrouve l'interface où le maximum d' $\text{Al}_2\text{O}_{3(l)}$ est présent (Figure III-14). Une confirmation de la mesure du diamètre de la flamme peut être envisagée en prenant l'interface où la température commence à fortement diminuer, marquant la fin de la zone de réaction et donc la limite de la flamme. Le diamètre de flamme, noté D_f , sera, dans cette étude, mesuré par la méthode de détermination du maximum de concentration en $\text{Al}_2\text{O}_{3(l)}$.

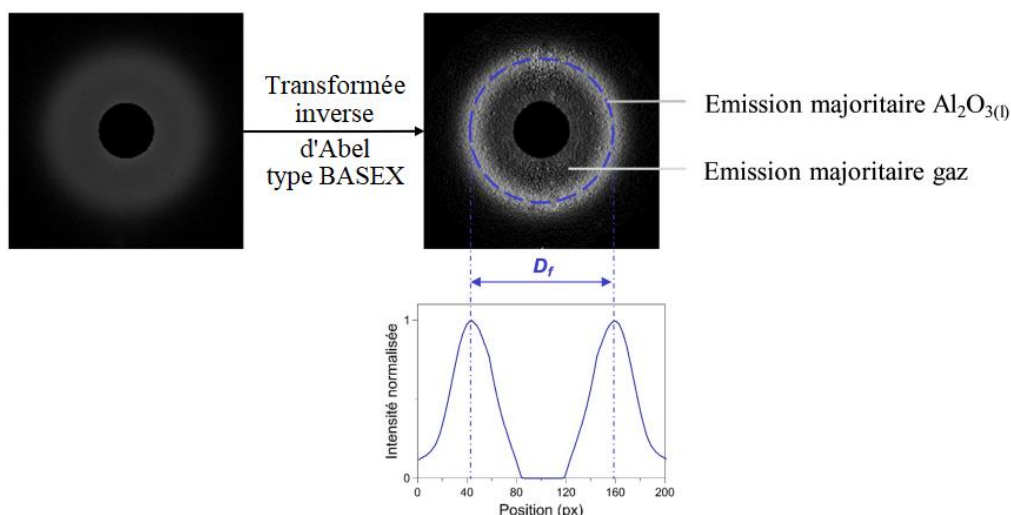


Figure III-14 — Illustration de la méthode de détection du diamètre de la flamme (Braconnier (2020)^[2]).

Ce processus de détermination du diamètre de la goutte et de la flamme de manière itérative sur l'ensemble des images d'une séquence vidéo permet un suivi temporel de l'évolution de leur diamètre (Figure III-15). Il est alors possible de calculer un taux de régression de la goutte en calculant le coefficient directeur de l'évolution temporelle de son diamètre. Il est important de noter que toutes les conditions explorées ne permettent pas toujours un suivi du diamètre de la goutte et de la flamme. Par exemple, la mesure du diamètre de la goutte est parfois empêchée par la densité du nuage d'alumine qui l'entoure, et, durant certaines combustions, l'absence de phase symétrique rend la mesure du diamètre de la flamme de diffusion impossible.

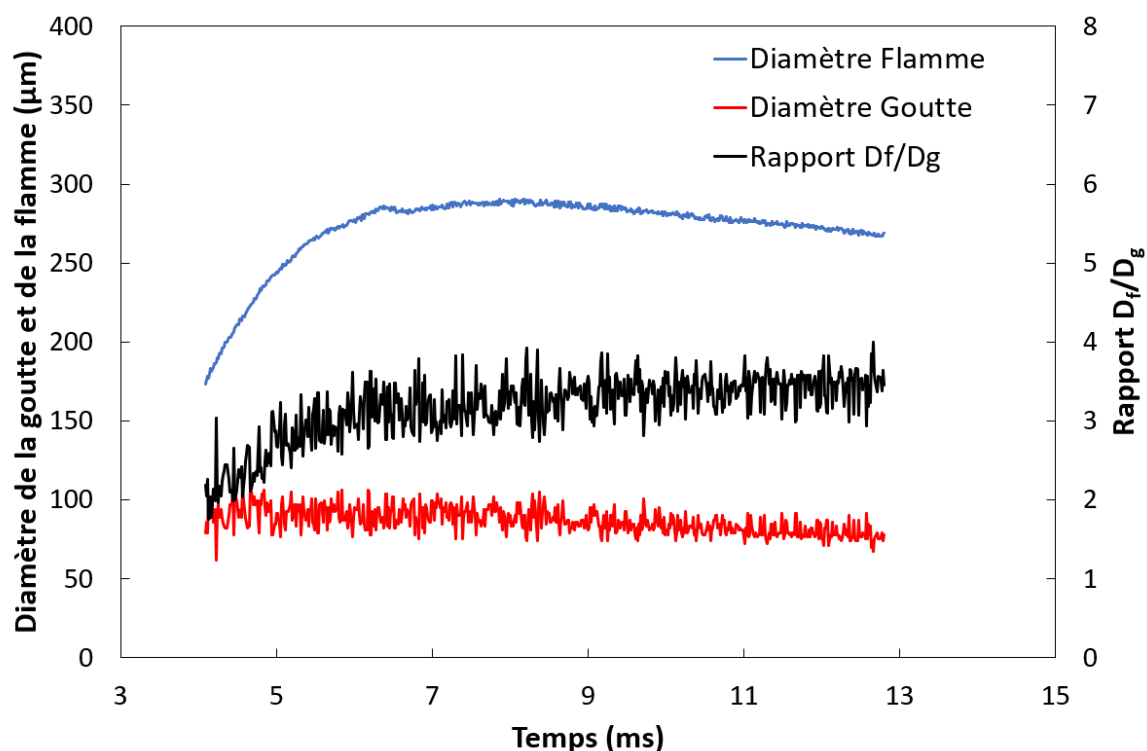


Figure III-15 - Suivi du diamètre de la goutte et de la flamme durant la combustion d'une particule d'aluminium de 73,8 µm dans de l'air à 1 bar.

La Figure III-16 illustre les différents paramètres géométriques utilisés pour caractériser le volume du lobe d'alumine. Le suivi de ces paramètres reste complexe du fait d'une résolution spatiale encore insuffisante malgré les améliorations apportées au dispositif et des mouvements du lobe et de la particule. Plus particulièrement, le suivi de la hauteur du lobe, nommée h_l , et de la hauteur de la particule, nommée h_p , est soumis à une forte incertitude. Dans cette étude, l'évolution du lobe sera donc uniquement décrite qualitativement.

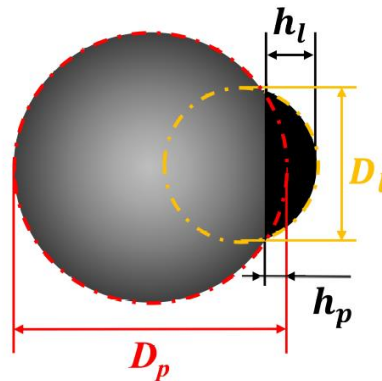


Figure III-16 — Schéma d'une goutte d'aluminium avec un lobe d'alumine (Braconnier (2020)^[2]).

Dans des cas spécifiques (cf. IV.1.1.2 (air à 5 bar), IV.1.3 et IV.1.4 (ambiance humide)), un agglomérat d'alumine liquide, nommé globule, se forme dans la zone de réaction entourant la goutte (Figure III-17). Le globule est ciblé par seuillage et son diamètre, noté D_{gl} , est mesuré pour déterminer son volume V_{gl} . Il est donc possible de suivre l'évolution de son volume au cours de la combustion. Un taux de conversion de l'aluminium en alumine peut être mesuré en traçant l'évolution du rapport du volume de la goutte, V_g , et du volume du globule, V_{gl} , en fonction du temps.

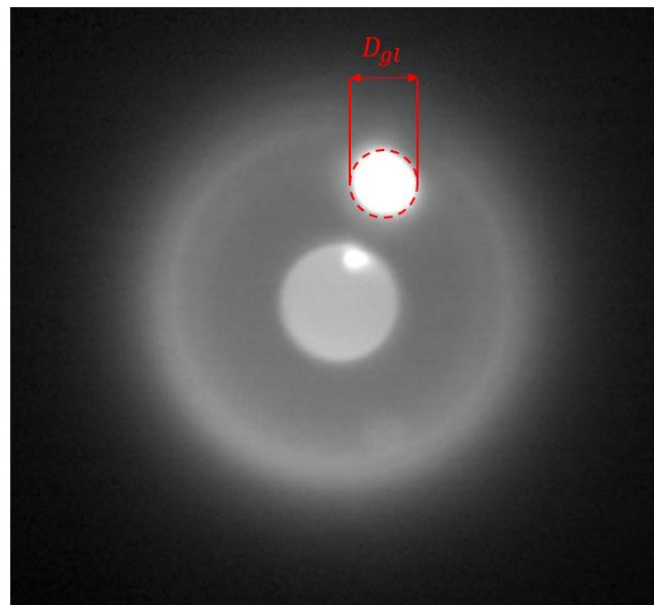


Figure III-17 — Image d'une goutte d'aluminium en combustion dans l'air synthétique à 5 bar de pression montrant un globule.

Il est possible de déterminer le diamètre initial de la particule, noté D_0 (Figure III-18). Le temps de combustion, noté t_c , étant dépendant du diamètre initial, il est primordial de le connaître pour évaluer correctement la relation entre les deux. Pour identifier ce diamètre, il est nécessaire de déterminer l'image où la particule d'aluminium devient liquide. Cet instant est détectable par l'aspect sphérique que prend la goutte à la suite de sa fusion (Figure III-18 (b)), alors qu'à l'état solide elle possède une forme irrégulière (Figure III-18 (a)).

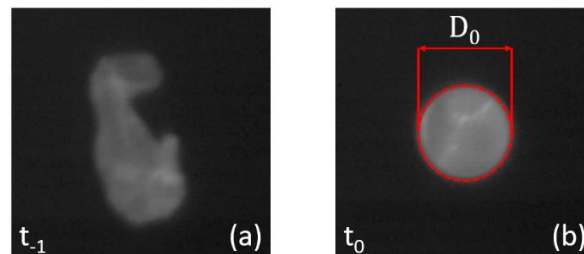


Figure III-18 — Image montrant une particule d'aluminium solide en cours de chauffe avant sa fusion (à t_{-1}) (a) et au début de sa combustion (à t_0) (b) où le diamètre initial peut être mesuré.

III.6.2. Temps de combustion

Le temps de combustion est un paramètre essentiel pour décrire la combustion d'une particule d'aluminium. Il est nécessaire de connaître la loi qui le régit. Plusieurs propositions ont été faites pour estimer ce paramètre. Tous les temps de combustion proposés dans cette section ont été mesurés à l'aide des signaux des PM.

III.6.2.1. Mesure manuelle par l'opérateur

Le temps de combustion peut être mesuré avec une estimation manuelle des instants de début et de fin de la combustion. Une routine informatique, sous Matlab, propose à l'opérateur de choisir ces instants en fonction du tracé des signaux des PM.

Le choix de l'opérateur pour déterminer le départ de la combustion, noté $t_{0,\text{opérateur}}$, se fait au début de la première forte variation du signal des PM. La détermination de l'instant de fin de la combustion, nommée $t_{f,\text{opérateur}}$, est réalisée grâce à différentes méthodes. Cet instant peut, dans le cas d'une combustion classique, correspondre à l'extinction totale du signal des PM (Figure III-19 — a). Toutefois, ce choix est discutable, car la solidification n'est pas nettement définie, elle peut donc arriver avant que le signal ne devienne nul. Parfois, un processus de surfusion du résidu de la combustion est observable sur les signaux des PM. Ce processus est décrit dans la section II.2.1.3. Il est observable dans quelques cas de combustion et correspond au pic de luminosité observé à la fin des signaux des PM (Figure III-19 — c). Il marque la fin de la combustion, car ensuite, la particule étant solide, aucune réaction ultérieure n'est possible. Ce phénomène est observé avant la disparition totale du signal des PM. Il est alors admis de faire correspondre l'instant de fin de combustion avec celui du pic de surfusion. Cependant, lors de certaines combustions, des éléments perturbateurs peuvent empêcher la visualisation complète du processus de combustion par les PM. Des phénomènes, tels que le spinning et le jetting, entraînent une sortie de la particule du champ de vision des PM (Figure III-19 — b). Dans ce cas, si la particule ne revient pas au centre de la chambre, le temps de combustion ne peut pas être déterminé.

Le temps de combustion déterminé par l'opérateur, nommé $t_{c,opérateur}$, est alors calculé avec l'Équation III-5:

$$t_{c,opérateur} = t_{f,opérateur} - t_{0,opérateur} \quad \text{Équation III-5}$$

$t_{c,opérateur}$ s'avère une très bonne estimation des temps de combustion, hormis dans le cas où la particule sort du champ de vision des PM (Figure III-19 — b). Dans ce cas précis, une seconde méthode de mesure du temps de combustion est mise en place : la phase de diffusion symétrique stable de la combustion est extrapolée jusqu'à la régression complète de la particule.

III.6.2.2. Mesure par extrapolation du régime symétrique

Lorsque la particule sort du champ de vision des PM, cela entraîne un arrêt brutal du suivi de la combustion qui empêche de mesurer le temps de combustion. Pour y remédier, une méthode fut développée par Braconnier (2020)^[2]. Celle-ci utilise la phase de combustion en régime diffusif qui est symétrique et stable, et pour laquelle l'évolution du signal lumineux est linéaire. Ainsi une extrapolation de la partie linéaire des signaux des PM est faite jusqu'à l'instant où la droite prend une valeur nulle, moment où la combustion est terminée. Il est alors possible d'estimer l'instant de fin de la combustion avec chaque PM (Figure III-20). Enfin, une moyenne des trois temps est réalisée pour déterminer la borne de fin de combustion, nommée $t_{f,extrapolation}$.

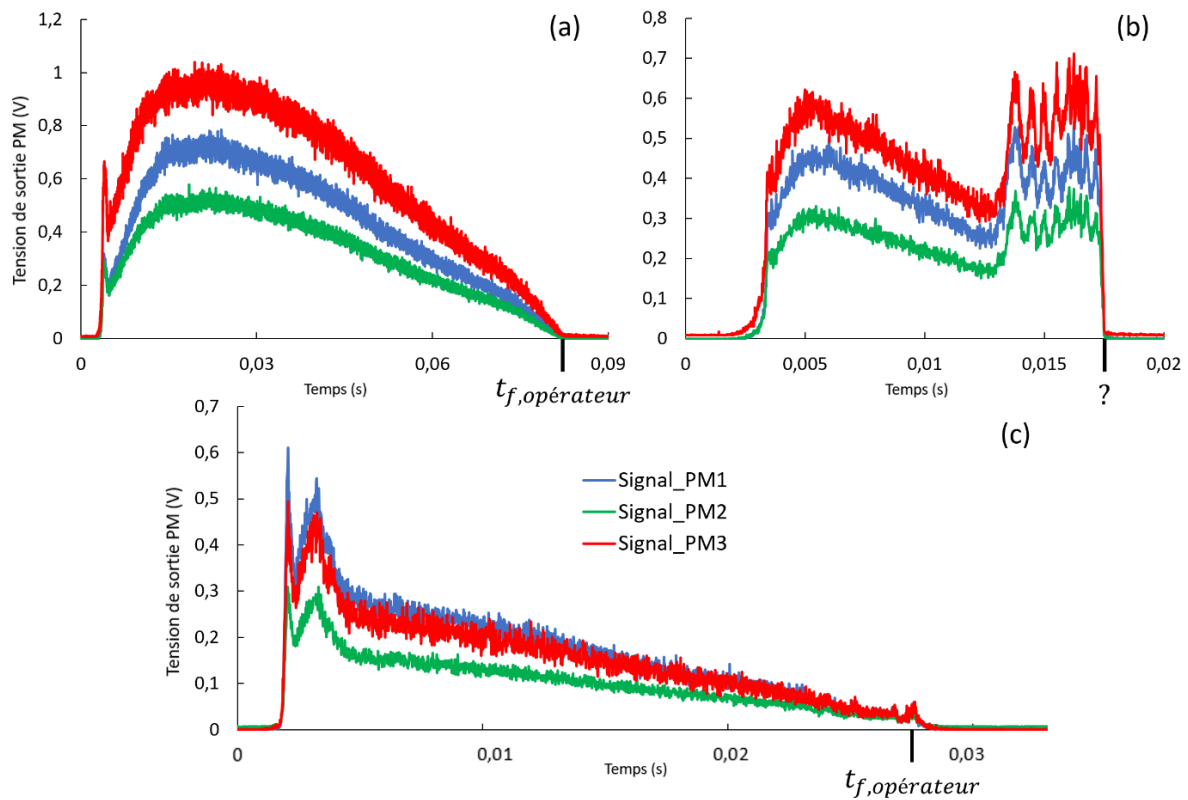


Figure III-19 — Graphiques représentant trois combustions différentes avec des signaux de fin de combustion différents. (a) Fin de combustion sans élément perturbateur (b) Interruption de la mesure causée par une sortie du champ de vision des PM (c) Fin de combustion avec la présence d'une surfusion.

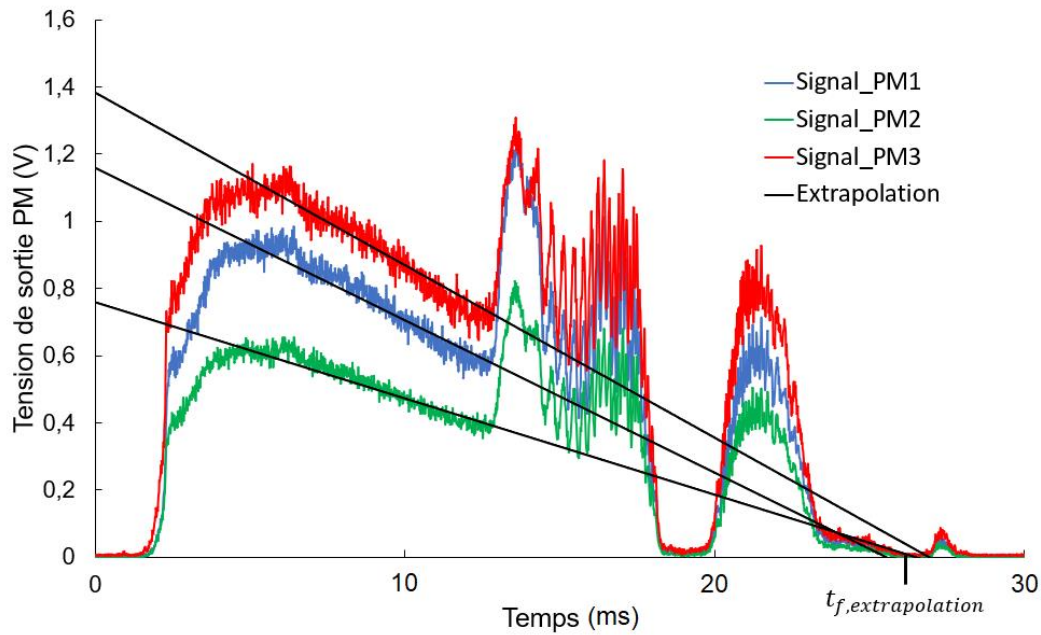


Figure III-20 — Extrapolation du régime symétrique de combustion

Cette méthode par extrapolation n'est pas exacte, mais permet une bonne approximation du temps de combustion. Pour rendre cette méthode plus fiable, il est demandé dans la routine Matlab de borner la zone de combustion stable. L'instant du début $t_{0,laser}$ de combustion est choisi automatiquement comme celui de l'arrêt du laser. Le temps de combustion déterminé avec cette méthode est calculé par l'Équation III-6 :

$$t_{c,extrapolation} = t_{f,extrapolation} - t_{0,laser} \quad \text{Équation III-6}$$

III.6.2.3. Mesure par la méthode d'Olsen

Une troisième méthode pour déterminer le temps de combustion de la particule d'aluminium est mise en œuvre. Elle repose sur le contrôle du temps de libération de l'énergie pendant la combustion des particules. Cette méthode fut proposée par Olsen (1996)^[86]. Il suppose que l'intensité relative est proportionnelle au taux de libération d'énergie aux longueurs d'onde considérées. Son intégrale est alors proportionnelle à l'énergie totale rayonnée aux longueurs d'onde considérées. La durée de combustion est alors définie comme le temps nécessaire pour atteindre un pourcentage donné de cette énergie. Les temps de combustion ont été évalués à des instants correspondant à 95 %, 99 % et 99,5 % de l'intégrale du signal d'intensité lumineuse relative (Figure III-21). Ce temps de combustion, nommé $t_{c,olsen}$, est ensuite calculé avec l'Équation III-7 :

$$t_{c,olsen} = t_{f,olsen} - t_{0,laser} \quad \text{Équation III-7}$$

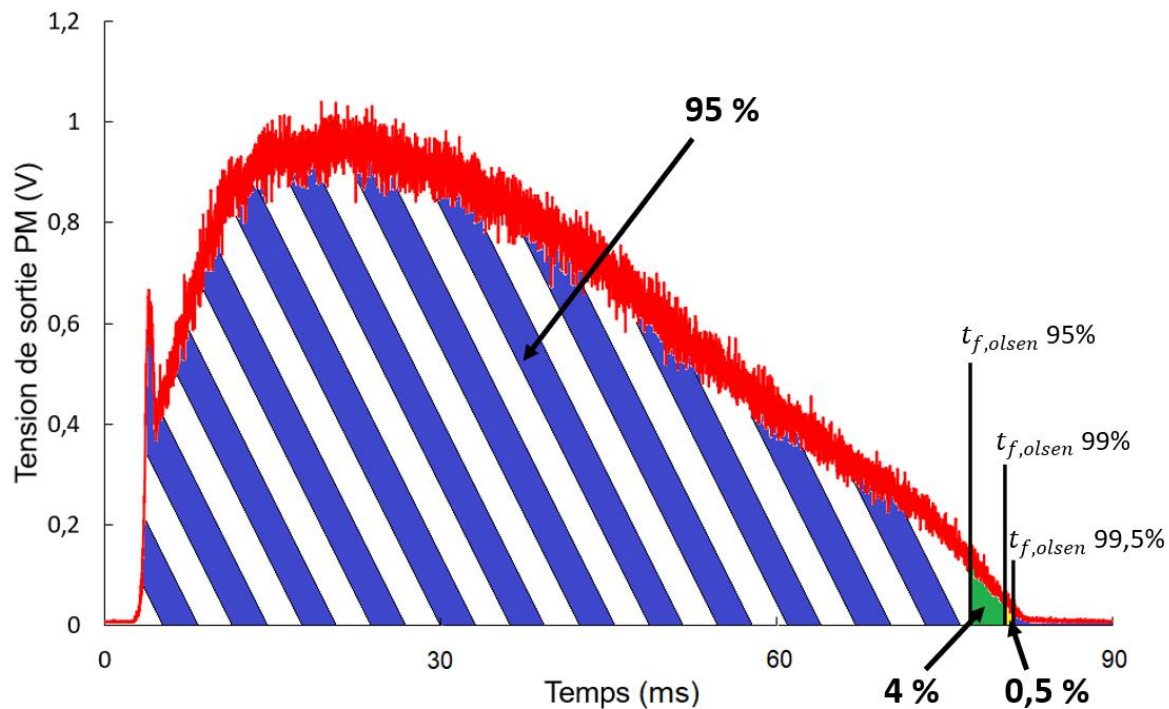


Figure III-21 — Méthode de mesure du temps de combustion selon la procédure proposée par Olsen (1996)^[86]. En bleu et blanc rayé se trouve l'aire sous la courbe. L'instant final de la combustion intervient lorsque 95, 99 ou 99,5 % de l'aire totale est atteint.

Les trois méthodes proposées pour mesurer le temps de combustion sont complémentaires. La méthode de mesure manuelle par l'opérateur permet une bonne approximation de ce temps, y compris pour les cas où il n'y a pas de régime diffusif stable. Elle est néanmoins tributaire de chaque utilisateur. La méthode basée sur l'extrapolation du régime diffusif, stable et symétrique, utilise l'hypothèse que la combustion continue sur cette dynamique jusqu'à l'extinction. Dans la section II.2.1 où les différentes phénoménologies sont présentées, il a été montré que le mode diffusif stable ne représente qu'une partie de la combustion, quand il est présent. Dans la plupart des cas, ce régime est perturbé par la présence du lobe d'alumine qui provoque des mouvements de spinning et de jetting. Cette méthode est intéressante si la fin de la combustion n'est plus visible sur les signaux des PM à cause d'une sortie de champ ou d'un mauvais réglage du temps d'acquisition des PM. La dernière méthode est similaire à la première, mais la mesure est réalisée de façon automatique. L'instant du début de la combustion correspond à l'arrêt du laser et l'instant d'extinction de la combustion est donné par la diminution du signal. Le seul cas où ce procédé n'est pas efficace correspond à celui pour lequel l'arrêt de la combustion est marqué par le phénomène de surfusion. Le temps de combustion est alors surestimé. Dans le cas où la particule sort du champ, cette méthode n'est pas applicable.

Les méthodes permettant de calculer le temps de combustion sont exclusivement basées sur l'exploitation des signaux des PM. Toutefois, ces signaux permettent aussi de mesurer la température moyenne de la phase de la phase condensée lors de la combustion.

III.6.3. Pyromètre (température globale)

La mesure de l'évolution temporelle de la température de la particule d'aluminium pendant la combustion est essentielle pour comprendre cette dernière. Elle permet, par exemple, d'estimer la capacité des particules à s'allumer entre elles ou encore de faire un bilan de chaleur durant la réaction. Il est ainsi possible de fournir des informations fiables et précises sur la température des particules d'aluminium et du gaz environnant pendant la phase de postcombustion afin d'améliorer les modèles de combustion.

La méthode mise en œuvre pour cette étude est la pyrométrie multispectrale, car elle est non intrusive. Elle permet de déterminer la température d'une phase condensée qui rayonne, et possède une meilleure précision que la pyrométrie monochromatique.

Les photomultiplicateurs, qui permettent de suivre l'évolution temporelle de l'émission globale de la lumière émise durant la combustion (cf. III.4.1), peuvent être utilisés pour former un pyromètre et donc mesurer la température. Ce système permet de retracer l'évolution temporelle de la température moyenne de la phase condensée (particule d'aluminium, lobe d'alumine et nuage condensé d'alumine) durant la combustion.

III.6.3.1. Calcul de la température

Un corps noir est un corps physique idéal qui peut absorber tous les rayonnements incidents. La luminance d'un corps noir s'exprime par l'Équation III-8, avec $h = 6,626\,070\,15 \times 10^{-34}$ J.s la constante de Planck, $c = 2,997\,924\,58 \times 10^8$ m/s la célérité de la lumière dans le vide, $k = 1,380\,649 \times 10^{-23}$ J/K la constante de Boltzmann, λ (en m) la longueur d'onde étudiée, ε l'émissivité du corps noir et T (en K) la température de celui-ci. L'approximation de Wien permet de simplifier la formule de la luminance lorsque $e^{(h.c/\lambda.k.T)} \gg 1$. Cela donne l'Équation III-9.

En faisant l'hypothèse forte que le corps étudié est un corps gris alors, pour des longueurs d'onde proches, la valeur de l'émissivité de l'alumine peut être considérée constante. En évaluant le rapport de luminances ($L_{\lambda_1}/L_{\lambda_2}$) à deux longueurs d'onde différentes proches (λ_1 et λ_2), une formulation dans laquelle l'émissivité (ε) se simplifie est obtenue. Une fonction du type $T = f(\Gamma, \lambda_1, \lambda_2)$ (Équation III-10) est déterminée après cette simplification, avec $L_{\lambda_1}/L_{\lambda_2} = \Gamma$ et λ_1, λ_2 les deux longueurs d'onde sélectionnées.

$$L(\lambda, T) = \varepsilon(\lambda, T) \cdot \frac{2.h.c^2}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{e^{\left(\frac{h.c}{\lambda.k.T}\right)} - 1} \quad \text{Équation III-8}$$

$$L(\lambda, T) = \varepsilon(\lambda, T) \cdot \frac{2.h.c^2}{\lambda^5} \cdot e^{-\left(\frac{h.c}{\lambda.k.T}\right)} \quad \text{Équation III-9}$$

$$T(\Gamma, \lambda_1, \lambda_2) = \left[\frac{k}{h.c} \cdot \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \left(\ln(\Gamma) - 5 \cdot \ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right) \right) \right]^{-1} \quad \text{Équation III-10}$$

Les PM génèrent une tension de sortie en volts (V) qui est proportionnelle à la luminance énergétique spectrale en watts par mètre carré par stéradian et par hertz ($\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{Hz}^{-1}$). L'équation de correspondance est donnée par l'Équation III-11 :

$$\frac{S_1}{S_2} = f_{cal} \times \Gamma \quad \text{Équation III-11}$$

avec S_1 et S_2 les tensions de sorties générées par les PM et f_{cal} le facteur de proportionnalité obtenue par l'étalonnage des PM. Le calcul de la température est alors possible en utilisant l'Équation III-12 :

$$T(S_1, S_2, \lambda_1, \lambda_2, f_{cal}) = \left[\frac{k}{h.c} \cdot \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \left(\ln \left(\frac{S_1/S_2}{f_{cal}} \right) - 5 \cdot \ln \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right) \right) \right]^{-1} \quad \text{Équation III-12}$$

III.6.3.2. Pyrométrie avec les photomultiplicateurs

Le schéma du montage des PM est décrit sur la Figure III-22. Premièrement, le flux lumineux émis par la particule est collecté au moyen d'un objectif focalisé au centre de la chambre de lévitation. La lumière traverse ensuite le premier filtre dichroïque qui transmet la partie du spectre d'émission au-dessus de sa longueur d'onde de coupure et réfléchit le reste. Dans cette étude, les filtres dichroïques sont préférés aux filtres semi-réfléchissants utilisés par Braconnier (2020)^[2]. Ils permettent de conserver une grande partie du signal initial avec une transmission et une réflexion à plus de 95 % sur les plages de longueurs d'onde spécifiques à chaque PM, a contrario de l'ancien dispositif, où 50 % du signal n'était pas transmis aux PM. Avec ce nouveau type de filtre, il est possible de rajouter un troisième photomultiplicateur et une diode laser alors que l'ancien montage n'autorisait que deux photomultiplicateurs. Le premier filtre, situé dans l'objectif, permet ainsi de réaliser de l'ombroscopie avec une diode laser. Cette méthode est utilisée pour obtenir d'autres types d'informations phénoménologiques sur la combustion de la particule d'aluminium, mais n'est pas exploitée durant cette thèse. Ce procédé peut être utilisé sans perdre la mesure faite par les PM, car le filtre dichroïque réfléchit tout le flux lumineux en dessous de 567 nm et transmet le reste. L'extinction du laser utilisé pour initier la combustion étant pilotée par l'élévation du signal issu de l'un des PM, il reste alors possible de le couper même lorsque la diode laser est utilisée.

La lumière est ensuite guidée par une fibre optique vers le banc de mesure où les PM sont fixés. Ce procédé est mis en place pour empêcher tout désalignement du système optique à l'intérieur du pyromètre, tout en permettant à l'objectif d'être amovible. À la sortie de la fibre se trouvent deux autres filtres dichroïques placés en série. Ils permettent de guider le signal vers trois modules PM. Ces derniers sont équipés d'un filtre passe-bande, chaque PM étant associé à une longueur d'onde différente pour pouvoir réaliser la pyrométrie multispectrale.

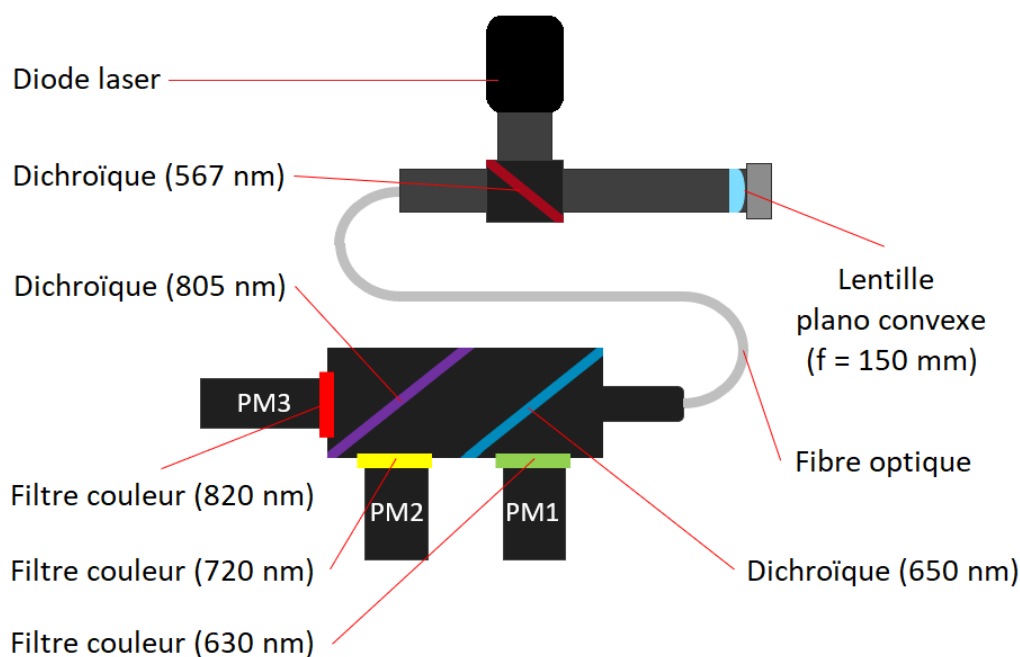


Figure III-22 — Schéma du dispositif de pyrométrie trichromatique utilisant les photomultiplicateurs.

Plusieurs contraintes entrent en jeu pour le choix des filtres. Le choix de longueurs d'onde des filtres passe-bande se base sur les travaux réalisés par Rodiet (2014)^[87] et Dabos (2019)^[88]. Une gamme de longueurs d'onde à éviter est décrite par Dabos (Tableau III-2) et correspond aux émissions d'espèces pouvant être présentes lors des réactions.

Longueur d'onde (nm)	Forme	Origine
500 à 640	Continuum	Chimiluminescence d'AIO*
309,2 - 394,4 - 396,1	Pic	Émission d'Al
464 — 486 — 507	Pic	Émission d'AIO
429	Pic	Émission d'AIO
500	Pic	Émission d'AIO
800 à 1000	Pic étendu	Émission de H ₂ O
1080 à 1200	Pic étendu	

Tableau III-2 — Longueurs d'onde à éviter pour le choix des filtres couleur (Dabos (2019)^[88]).

Ensuite, plusieurs contraintes matérielles entrent en jeu. Premièrement, les caractéristiques physiques des PM contraignent le choix des filtres dichroïques, car leur sensibilité radiante n'est suffisante (au-dessus de 20 mAW) que dans une gamme de longueurs d'onde restreinte de 400 à 850 nm (Figure III-6). La diode laser Thorlabs M455L4 dispose d'une largeur spectrale de 55 nm, entre 420 et 475 nm. Le premier filtre dichroïque est ainsi le Thorlabs DMLP567 (Figure III-23 — (a)) qui possède un coefficient de réflexion de plus de 95 % entre 370 et 550 nm ce qui comprend la plage d'émission de la diode laser. Ce filtre dichroïque a aussi un coefficient de transmission supérieur à 95 % entre 580 et 840 nm. Les autres filtres dichroïques doivent être sélectionnés dans cette gamme de longueurs d'onde. Le choix s'est porté sur des filtres dont la fréquence de coupure est respectivement de 650 nm (Thorlabs DMLP650) (Figure III-23 — (b)) et de 805 nm (Thorlabs DMLP805)

(Figure III-23 — (c)). Les filtres à 630, 720 et 820 nm sont ressortis comme étant la meilleure option. Cette décision se base sur les gammes de longueurs d'onde à éviter, ainsi que les longueurs d'onde imposées par les filtres dichroïques (PM 1 : [580 - 650] nm/PM 2 : [650 - 805] nm/PM 3 : [805 - 900] nm).

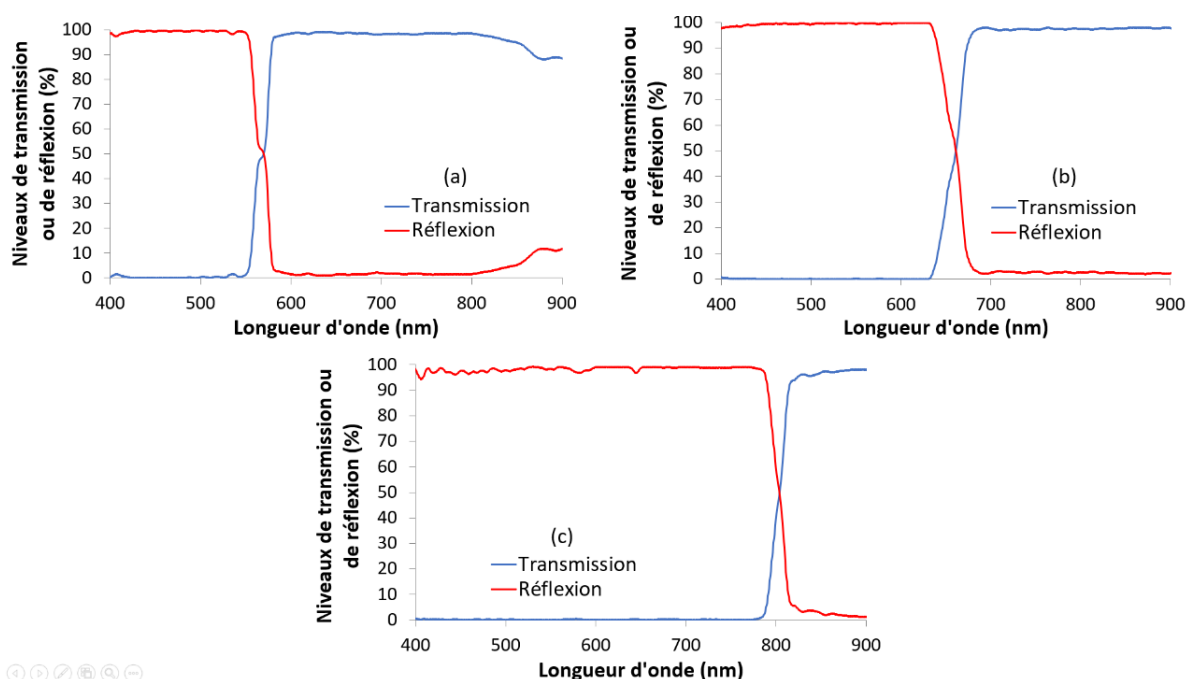


Figure III-23 — Réflexion et transmission des filtres dichroïques utilisés dans le système de pyrométrie. (a) Thorlabs DMLP 567, (b) Thorlabs DMPL650, (c) Thorlabs DMLP805.

La longueur d'onde associée au premier filtre passe-bande (630 nm) est dans la limite haute de la plage de longueurs d'onde réfléchies par le filtre dichroïque Thorlabs DMPL650 (Figure III-24), mais ce choix fut imposé par la contrainte induite par l'existence d'un continuum de chimiluminescence d'AIO* entre 500 et 640 nm. Cette émission est décrite dans les études de Kolb (1975)^[89] et Oblath (1980)^[90]. Cependant, selon l'étude de Rosenwaks (1975)^[91], l'intensité de la chimiluminescence d'AIO* pourrait être très faible avec O₂ comme oxydant. Le choix a tout de même été fait de s'éloigner au maximum de cette zone d'émission, d'où la décision de prendre un filtre à 630 nm. Toutefois il est nécessaire de rester vigilant quant aux mesures effectuées par le photomultiplicateur concerné (PM1). Il est à noter qu'après plusieurs mesures durant différentes combustions la chimiluminescence d'AIO* ne semble pas être détectée par le PM1. Le filtre à 720 nm respecte toutes les contraintes du système, il est compris dans la gamme de longueurs d'onde imposée par les filtres dichroïques et n'est pas à une longueur d'onde où une émission d'espèce se trouve. Quant au filtre à 820 nm, il entre dans la gamme de sélection de 805 à 900 nm, mais il capte une partie de l'émission de la vapeur d'eau. Après plusieurs essais dans une atmosphère contenant de la vapeur d'eau, aucune émission significative induite par sa présence n'est à noter. Il est tout de même important de traiter ces cas avec prudence.

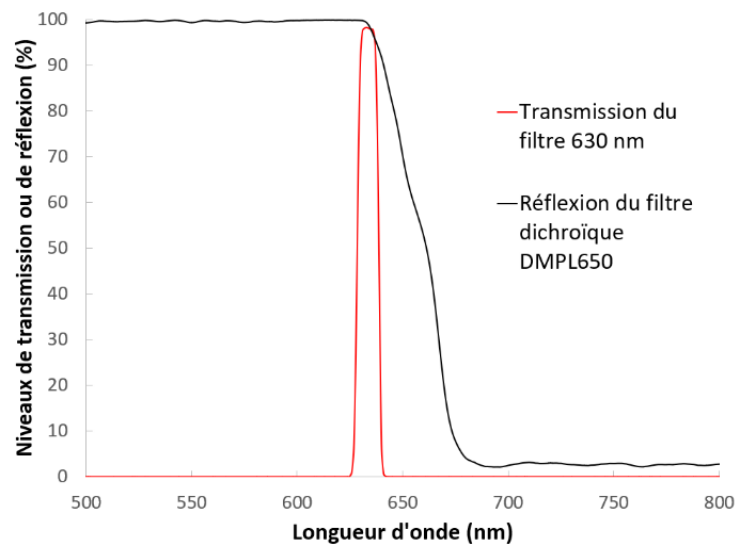


Figure III-24 — Superposition des courbes de transmission du filtre dichroïque DMPL650 et du filtre 630 nm

III.6.3.3. Calibrage du pyromètre

Il est nécessaire de réaliser un étalonnage de chaque photomultiplicateur pour corriger leur réponse individuelle. L'assemblage pour réaliser l'étalonnage des PM est présenté sur la Figure III-25. Le chemin optique de l'émission lumineuse est respecté au maximum en conservant les différents éléments optiques, tels que le hublot, ainsi que les distances entre ces derniers. Un trou calibré est utilisé pour limiter l'apport d'énergie au dispositif, mais aussi pour simuler l'ensemble flamme/goutte observé durant les combustions. Le principe de la méthode est de rassembler un grand nombre de mesures de tension de sortie pour des températures connues et de créer une table de température en fonction de la tension de sortie mesurée. Un corps noir, dont la température est connue avec exactitude, est utilisé comme source lumineuse pour calibrer le système pyrométrique.

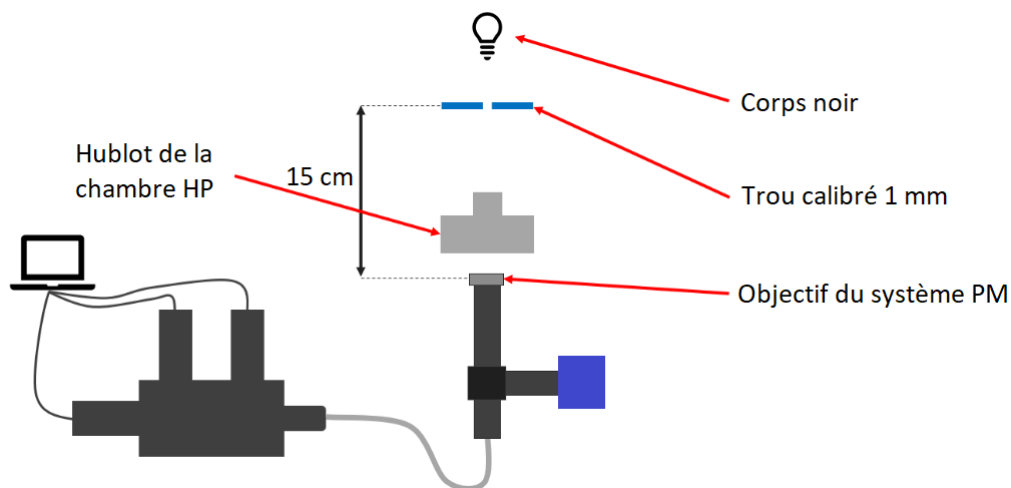


Figure III-25 — Schéma du dispositif d'étalonnage des photomultiplicateurs

Le facteur f_{cal} est déterminé par l'Équation III-13 comme étant la moyenne des rapports des signaux de sortie des PM pour plusieurs températures sur le rapport des luminances théoriques à ces différentes températures.

$$f_{cal,PM2/PM3} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n \frac{S_{2,i}/S_{3,i}}{L_{2,i}/L_{3,i}} \quad \text{Équation III-13}$$

où n est le nombre de mesures effectuées. Ce calcul est effectué avec les signaux des PM 2 et 3 dans l'exemple qui précède, mais la méthode est identique pour les deux autres combinaisons de PM ($PM1/PM2$ et $PM1/PM3$).

Après avoir déterminé les facteurs d'étalonnage et vu que la température du corps noir utilisé ne monte que jusqu'à 3250 K, il est donc nécessaire de réaliser une extrapolation de ces données pour mesurer des températures se trouvant au-delà de cette limite. Cette extrapolation se base sur la loi de Planck pour un corps noir dans cette gamme de température. Il est alors possible de créer, avec l'Équation III-12, une table de températures en fonction du rapport des différentes tensions de sortie des PM (Figure III-26).

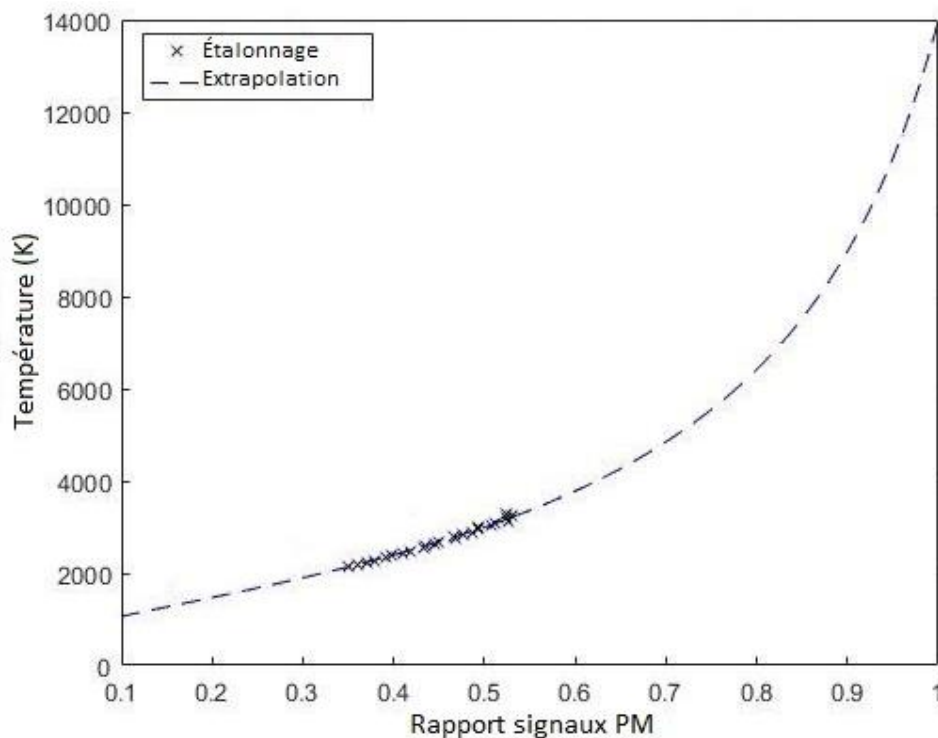


Figure III-26 — Courbe extrapolée de la température en fonction du rapport des signaux du PM2 et du PM3. Les données de l'étalonnage sont représentées par des croix et l'extrapolation par une ligne discontinue.

Les photomultiplicateurs ont tous une limite maximale de tension de sortie, fixée à 1,5 V, et un seuil de détection bas, dépendant de la luminance perçue par l'appareil et du gain choisi. Les signaux approchant 1,5 V vont commencer à saturer et ne seront plus représentatifs. Inversement, les émissions très faibles, à l'initiation de la combustion ou à l'extinction de celle-ci, par exemple, sont difficilement perceptibles. Ces phénomènes entraînent une imprécision dans l'évaluation du rapport des signaux de sortie des photomultiplicateurs aux extrémités de leur plage de mesure. Cela a pour conséquence de fausser la lecture de la table de température. Pour éviter ces perturbations, des seuils limites sont fixés expérimentalement à 0,1 V et 1,3 V, délimitant ainsi une plage de confiance pour la détermination de la température.

III.6.3.4. Résultats du pyromètre

Une fois les pyromètres calibrés, il est alors possible d'obtenir une mesure de température pour chaque couple de PM. Une routine Matlab permet de calculer les trois différents rapports en vérifiant que les tensions de sortie ne sont pas au-delà des seuils fixés. Enfin, la température est déterminée en utilisant la table réalisée précédemment par étalonnage. Alors si toutes les hypothèses faites pour le calcul sont correctes, la température devrait être identique pour tous les couples de PM considérés.

Un suivi temporel de la température moyenne est fait pour les trois couples possibles (PM1/PM2 ; PM1/PM3 ; PM2/PM3). Le constat est fait, sur la Figure III-27, que les températures obtenues sont toutes différentes. Cette différence peut venir de l'hypothèse faite sur l'invariance de l'émissivité avec la longueur d'onde. La particule étant considérée comme un corps gris, selon cette supposition, il est possible de s'affranchir de l'émissivité qui est présumée égale pour des longueurs d'onde proches les unes des autres. Pour que ce postulat soit valide, il faut disposer de filtres avec des longueurs d'onde encore plus proches pour les PM (écart inférieur à 50 nm). Toutefois, il est impossible avec le dispositif actuel d'obtenir ces conditions. Alors, si la loi d'émissivité du corps émetteur n'est pas connue, la précision de la mesure de température sera limitée. Pour les cas d'études complexes possédant plusieurs phases condensées, les écarts de température peuvent être conséquents entre les mesures obtenues avec les différents rapports. Dans cet exemple, la combustion étudiée a lieu dans de l'air à pression atmosphérique. Avec l'hypothèse de corps gris, les températures obtenues sont respectivement de $T_{PM1/PM2} = 3020\text{ K}$, $T_{PM1/PM3} = 3308\text{ K}$ et $T_{PM2/PM3} = 3760\text{ K}$. L'hypothèse du corps gris n'est visiblement pas correcte au vu de l'écart observé entre les trois mesures de température.

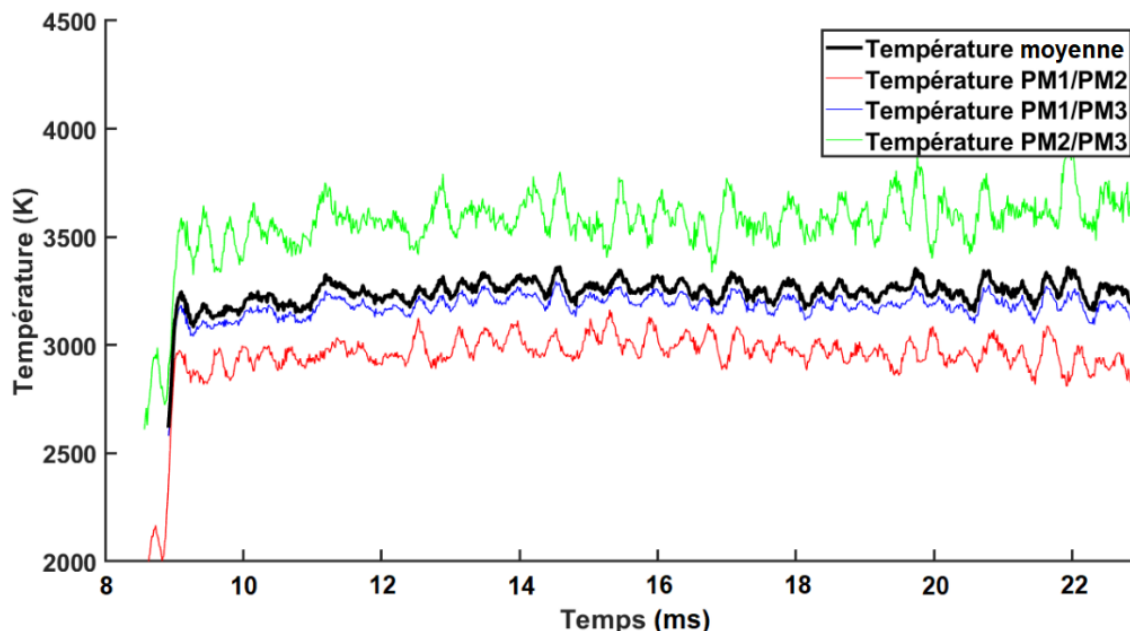


Figure III-27 — Exemple de mesure de température durant la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air avec les trois différents couples de PM possibles.

La Figure III-28 montre les différents points et courbes d'intérêt de cette combustion. Les points noirs représentent les luminances mesurées par chaque PM lors de la combustion. Les courbes bleue, orange et verte représentent respectivement les luminances en fonction de la longueur d'onde, calculées avec la loi de Planck (Équation III-8) pour une température de $T_{PM1/PM2}$, $T_{PM1/PM3}$ et $T_{PM2/PM3}$, en supposant que l'émissivité est égale 1. Il est alors clair que l'aluminium ne se comporte pas comme un corps gris durant sa combustion. La courbe rouge représente la loi de Planck d'un corps gris, donc en supposant que l'émissivité est constante, à la température moyenne obtenue à partir des trois couples de PM, mais elle ne passe pas par les trois points de mesure. Il est tout de même possible de faire passer une loi de Planck par les trois valeurs expérimentales. La courbe violette étant une de ces solutions avec une température à 2360 K et une loi d'émissivité arbitraire, spécifiquement déterminée pour faire passer la loi par les données. Cependant, il n'y a pas unicité de la solution.

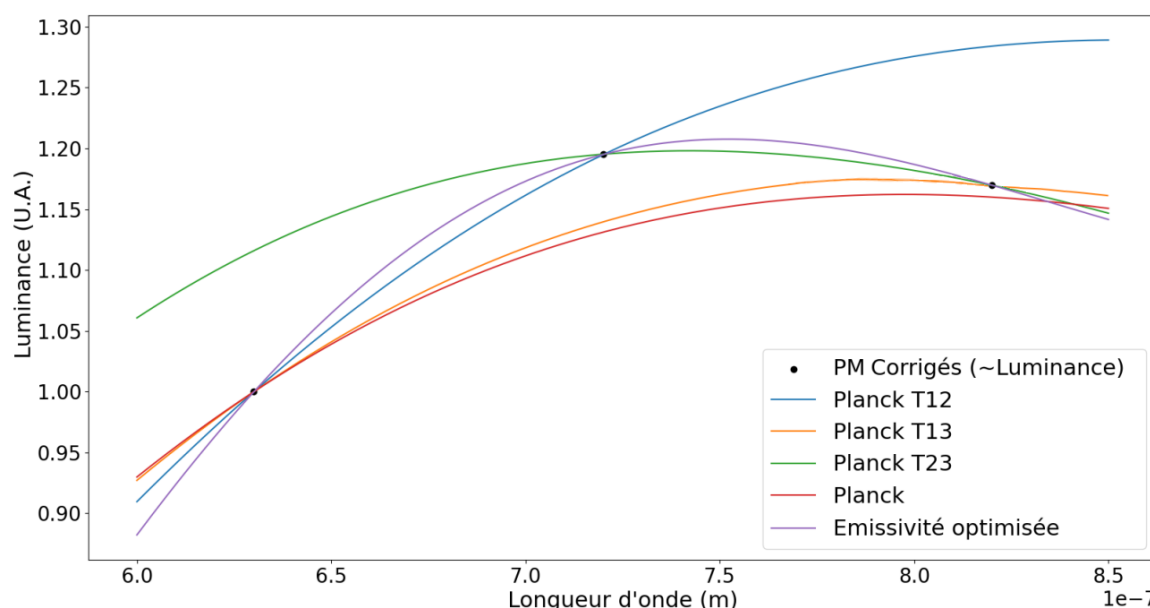


Figure III-28 — Optimisation d'une loi de Planck sur les données associées à la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à pression atmosphérique.

Durant la combustion d'une particule d'aluminium en régime de diffusion, plusieurs phases condensées rayonnent. La température mesurée est une moyenne prenant en compte le rayonnement de chacune d'elles. Elle cumule donc les émissions de l'alumine liquide dans le nuage et dans le lobe, mais aussi celle de l'aluminium liquide de la goutte. Ces différents éléments sont à des températures différentes durant la combustion. Pour le cas d'une particule brûlant dans de l'air à 1 bar, la goutte d'aluminium et le lobe d'alumine sont certainement tous deux à une température avoisinant les 2791 K (température de vaporisation de l'aluminium). Le lobe flottant sur la surface de la goutte est généralement de petite dimension. Il est possible de supposer qu'il est à la même température que la goutte, du fait du transport conductif. La température des nanoparticules d'alumine liquide, créées dans la zone de réaction, est supposée être proche de la température adiabatique de flamme. Les PM intègrent spatialement l'information ; il est peu probable que l'objet observé se comporte comme un corps gris. Il est possible de conclure que l'émission d'une particule d'aluminium en combustion est une somme, pondérée par les surfaces émettrices, de lois de Planck de plusieurs corps qui ont des lois d'émissivité différentes. Hugo Keck, doctorant également au sein du laboratoire

CNRS-ICARE sur une thèse CNRS – ArianeGroup, a développé un modèle détaillé pour rendre compte de ces différentes contributions. Un résultat obtenu avec son modèle est présenté sur la Figure III-29. Sur cette figure, il est possible de trouver les points expérimentaux ainsi que la loi d'émission de la particule pour les paramètres utilisés (cf. valeurs sous la courbe de la Figure III-29). Il est à noter que, selon la théorie de Mie, la taille des nanoparticules d'alumine dans le nuage influence grandement l'émissivité. Pour cet exemple, une optimisation manuelle a été réalisée. Les paramètres d'entrée au début de l'optimisation étaient les températures dans le nuage d'alumine, réglée à 3553 K, et à la surface de la goutte d'aluminium, fixée à 2792 K. À la suite de l'optimisation, le rayon des nanoparticules a été fixé à 165 nm et la pondération surfacique de l'alumine par rapport à l'aluminium est 3,75 fois supérieure. Ce dernier paramètre est lié à la densité volumique de l'alumine dans le nuage ainsi qu'à son émissivité supérieure à celle de l'aluminium. La loi de luminance obtenue est solution du système. Seulement, la solution n'est pas unique.

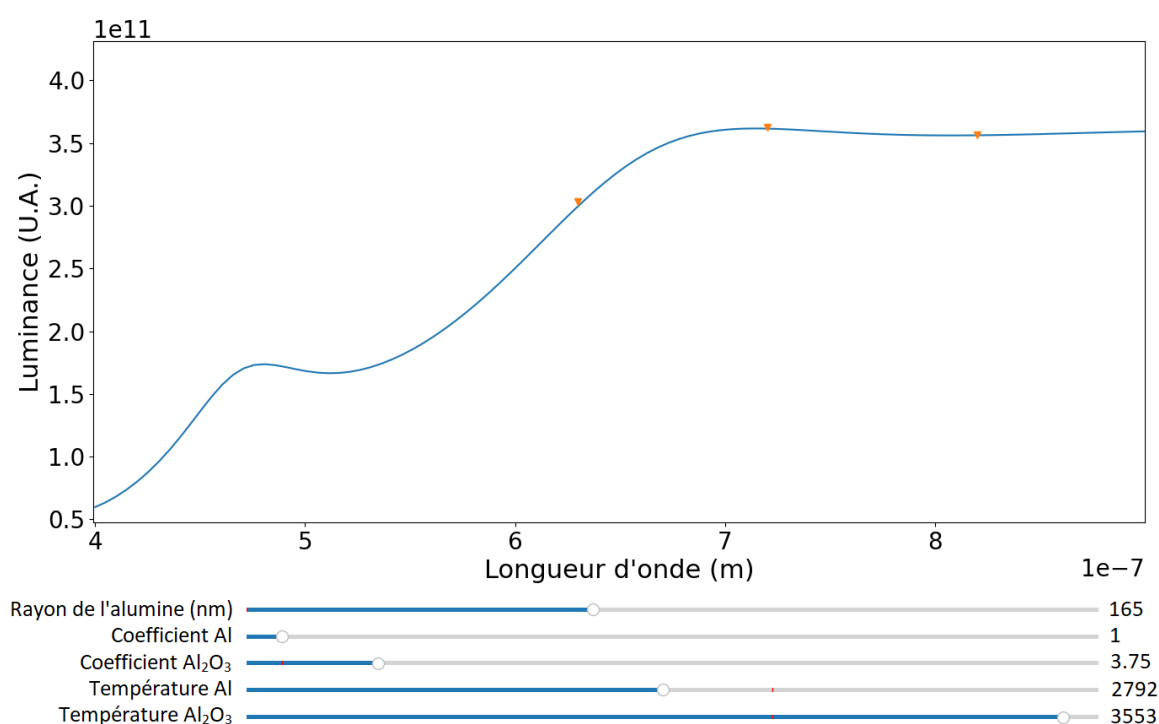


Figure III-29 — Exemple d'un modèle d'émission d'une particule d'aluminium en combustion, prenant en compte les différentes espèces condensées (Al, Al_2O_3) avec leurs températures et émissivités.

Il reste toutefois intéressant de fournir un ordre de grandeur de la température moyenne durant la combustion. L'étude de Madura et al. (2007)^[92] propose de réaliser une moyenne des températures mesurées avec trois couples de pyromètres pour déterminer cette valeur (Figure III-27). C'est la méthode de détermination de la température qui sera utilisée dans le reste de l'étude. Elle permettra d'apporter des éléments de réponse à certaines questions phénoménologiques.

En conclusion, la méthode de mesure de la température par pyrométrie multispectrale est non intrusive et efficace pour la mesure de la température d'un corps gris. Les différences de réponse des capteurs (angle solide, sensibilité spectrale, etc.) peuvent être corrigées via un étalonnage avec un corps noir. Une fois cette étape faite, la température d'un corps gris peut être mesurée en évaluant les quotients des signaux des différents photomultiplicateurs.

Toutefois, si le matériau étudié ne suit pas la loi d'émissivité d'un corps gris ou s'il s'agit d'un corps complexe alors l'évaluation précise de la température ne peut être faite que si la loi d'émissivité est connue. Si elle ne l'est pas, il est nécessaire de recourir à l'utilisation de modèles pour tenter de retrouver les paramètres d'émission (température et émissivité). Cependant, la validité des résultats reste dépendante de la légitimité des valeurs des paramètres utilisés. Il est important de retenir que, dans le reste de l'étude, une température moyenne utilisant les trois couples de PM sera donnée à titre indicatif.

Durant la thèse CNRS – Ariane Group d'Hugo Keck débutée en octobre 2022, il est envisagé de faire évoluer le système de pyrométrie multispectrale en utilisant une caméra couleur et un filtre tribande. Avec ce montage, la matrice RGB de la caméra est utilisée pour réaliser la mesure de la température. Cette méthode devrait permettre de remonter à une cartographie de la température de la particule durant la combustion. Cette partie est en cours de développement et des travaux préliminaires sur le calcul de la température d'un élément 3D avec une image 2D ont commencé à être entrepris. Ces travaux sont basés sur les recherches de Bucher et al. (1998)^[93].

III.6.4. Spectromètre (température de la phase condensée et gazeuse)

La combustion des particules métalliques génère différentes espèces gazeuses excitées qui rayonnent et émettent une lumière très intense. Cette émission lumineuse peut être décomposée pour être ensuite analysée. L'utilisation d'un spectromètre permet d'identifier ces différentes espèces. Il est aussi possible de remonter à la température des espèces gazeuses mises en jeu.

Le flux lumineux émis par la combustion des particules métalliques peut être décomposé en deux parties. Une partie est due à l'excitation thermique des produits de combustion condensés, ce qui génère une émission de fond continue. Elle peut être décrite par l'approximation de Wien (Équation III-9) qui est correcte pour les basses longueurs d'onde, ce qui correspond à cette étude. Toutefois, pour les plus hautes longueurs d'onde, la loi de Planck (Équation III-8) permet d'exprimer la luminance en fonction de l'émissivité, de la longueur d'onde et de la température. Une deuxième partie du signal provient des intermédiaires de réaction gazeux. Ces espèces gazeuses sont formées lors de la combustion (ce sont principalement des oxydes d'aluminium) et sont associées à des raies d'émission caractéristiques dues à des transitions rotationnelles et vibrationnelles. La méthode développée durant ce travail est basée sur les recherches de Lomba (2017)^[38] et Laboureur (2023)^[39] qui ont travaillé sur un brûleur à particules. Une comparaison entre leurs résultats et ceux du lévitateur semble difficile, car les effets de groupe induits sur leur dispositif participent à une augmentation de la température.

III.6.4.1. Montage du spectromètre

La spectroscopie optique d'émission a l'avantage d'être non intrusive. Elle utilise la collection de la lumière émise par le milieu pour l'analyser. Dans cet objectif, le flux lumineux récupéré par le téléobjectif est divisé en deux : une partie est transmise à la caméra rapide et formera l'image et l'autre portion est dirigée vers le spectromètre à l'aide d'une fibre optique

d'un diamètre de 1000 μm . Le spectromètre utilisé est l'Isoplan SCT320 qui est associé à la caméra PI-MAX 4 (Figure III-1). Il possède une plage spectrale de 200 à 900 nm ce qui permet d'observer les espèces d'intérêt comme le monoxyde d'aluminium (AlO) qui possède des pics d'émission entre 400 et 600 nm. Sa très bonne résolution de 0,8 nm permet de distinguer les raies d'émission dues aux transitions rotationnelles et vibrationnelles de l'espèce ciblée sur une plage spectrale de 458 nm à 521 nm (Figure III-30).

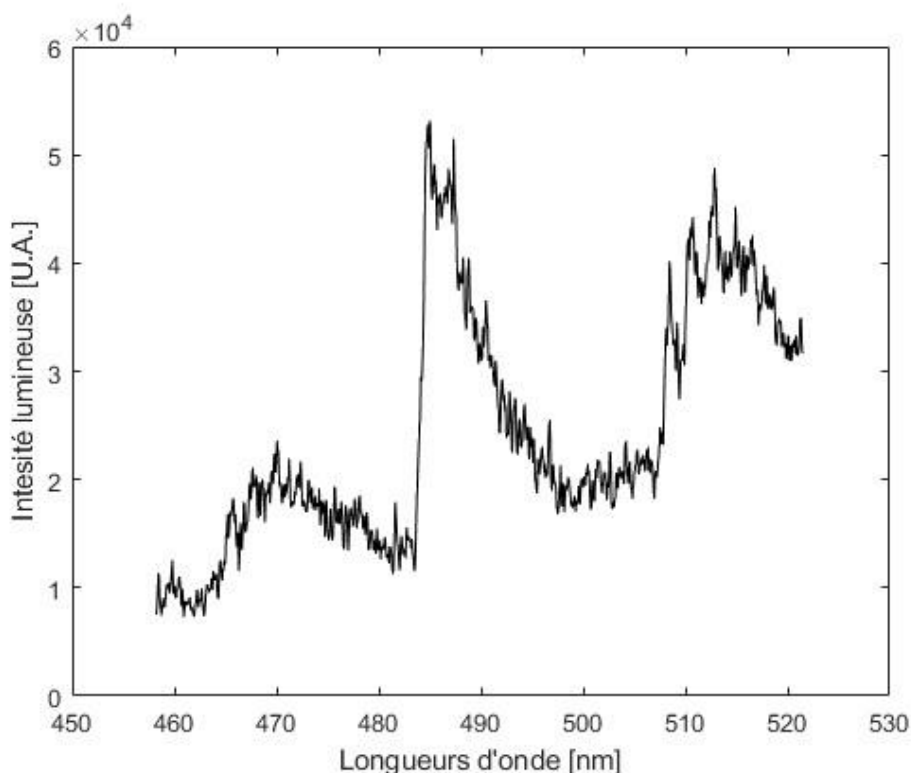


Figure III-30 — Spectre brut obtenu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à 1 bar. Les raies d'émission ciblées sont les transitions rotationnelles et vibrationnelles du AlO*.

III.6.4.2. Étalonnage du spectromètre

Les mesures brutes obtenues par le spectromètre résultent du produit de l'irradiance de la source lumineuse par la réponse spectrale du montage expérimental qui se traduit par une modification du fond continu. Afin de s'affranchir de cette réponse spectrale et de mesurer uniquement l'irradiance du phénomène observé, l'appareil de mesure doit être étalonné à l'aide d'une source lumineuse dont les propriétés d'émission sont connues. Un corps noir fut utilisé à différentes températures pour réaliser cet étalonnage. Cette correction permet de supprimer l'effet de la réponse spectrale du système, ce qui permet d'obtenir un spectre similaire à celui de la Figure III-31.

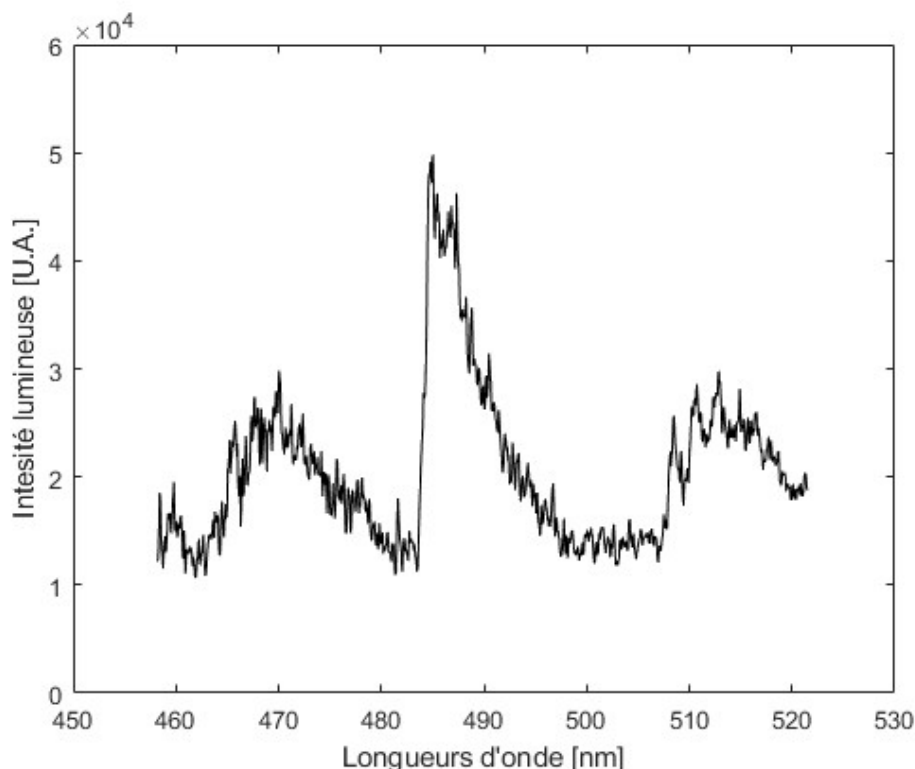


Figure III-31 — Spectre corrigé obtenu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à 1 bar.

III.6.4.1. Température de la phase condensée

Une ligne de base se dessine tout de même sur les spectres acquis lors de la combustion de l'aluminium. Il s'agit de l'émission de la phase condensée qui comprend la goutte d'aluminium, le lobe d'alumine et les particules nanométriques d'alumine liquides ou solides. Elle dépend de la loi de Planck (Équation III-8), et donc, comme pour la pyrométrie, sans une connaissance exacte de la loi d'émissivité des différentes espèces, la température mesurée ne sera pas exacte. Toutefois, les tendances peuvent être interprétées par la suite.

En première approche, il est admis que le fond continu, modélisé par la loi de Planck, dépend de la température, de la longueur d'onde et des propriétés d'émissivité de l'élément observé. La luminance théorique est alors calibrée avec cette loi, en supposant que l'émissivité est constante et égale à 1, ainsi qu'en faisant varier la température. Une optimisation de la température est réalisée pour déterminer la meilleure correspondance entre la loi et les données du spectre avec la méthode des moindres carrés. La méthode détermine la courbe qui correspond le mieux à l'émission du fond continu du spectre (Figure III-32). La température de la phase condensée pendant la combustion est supposée être celle obtenue par l'optimisation.

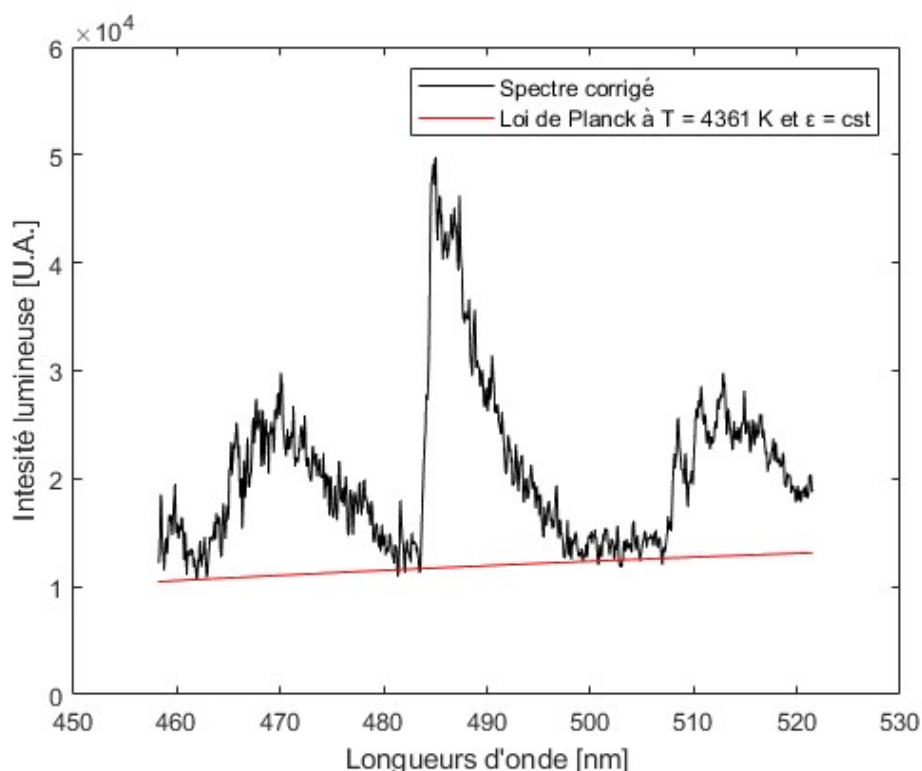


Figure III-32 — Détermination du fond continu d'un spectre obtenu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à 1 bar. Le fond continu est estimé à 4361 K en considérant l'émissivité constante.

Une température avoisinant les 4361 K est trouvée pour l'exemple de la Figure III-32 qui correspond au spectre résultant de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à pression atmosphérique. Cela est en contradiction avec la température mesurée par pyrométrie et avec la température attendue. Il faut mettre en parallèle ces résultats avec ceux de la partie III.6.3 où il a été montré que certaines hypothèses simplificatrices courantes concernant l'émissivité n'étaient pas valides dans le cas de la combustion d'une particule d'aluminium (Figure III-29). Il est alors difficile de déterminer une température de la phase condensée sans loi d'émissivité établie. Toutefois, les tendances associées à la variation de cette température peuvent être interprétées.

III.6.4.2. Température de la phase gazeuse

La principale technique permettant d'estimer la température de flamme pour un mélange contenant de l'aluminium utilise le spectre d'émission du AlO(g) . Les astrophysiciens sont les premiers à s'être intéressé au monoxyde d'aluminium pour déterminer une température. En effet, la présence du AlO dans les couches supérieures de l'atmosphère terrestre permet d'en déterminer la température en analysant les spectres d'absorption (Best (1967)^[94]). Cette méthode s'applique seulement si le régime d'oxydation est totalement ou partiellement contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire. Il est donc impossible de mesurer cette température en régime hétérogène de surface et à haute pression, car les produits de réaction gazeux sont quasiment inexistantes ou masqués. La température des intermédiaires de réaction gazeux est assimilée, dans la littérature, à celle de la température de la flamme. Le rayonnement de cet oxyde d'aluminium est induit par les transitions électroniques rotationnelles et vibrationnelles. Il se situe essentiellement dans le

domaine spectral du visible (environ 400 à 800 nm), plus précisément dans les bandes issues du système $B^2\Sigma^+ - X^2\Sigma^+$.

L'émission de lumière dépend de la fraction molaire du $AlO(g)$ en périphérie des particules métalliques, de la pression et de la température. Le spectre d'émission du $AlO(g)$ peut être calculé numériquement à travers les constantes spectroscopiques existantes pour des conditions standards de pression (Partridge (1983)^[95] et Coxon, (1985)^[96]). Il est alors possible de déterminer la température de la phase gazeuse via une méthode inverse. Le spectre théorique de l' $AlO(g)$ doit être calibré en température pour le faire correspondre au mieux avec le spectre réel issu de l'émission de la phase gazeuse. Pour cela, il est nécessaire de soustraire le fond continu du spectre mesuré par le spectromètre. La méthode de détermination du fond étant établie dans le paragraphe précédent, il est possible de le soustraire pour étudier uniquement les bandes d'émission caractéristiques de l' AlO (Figure III-33). La méthode des moindres carrés est alors utilisée pour déterminer la température qui permet de faire correspondre au mieux les deux spectres. Sur le cas étudié précédemment, la Figure III-34 est obtenue, où la température estimée de la phase gazeuse est de 3544 K. Cette valeur est proche de la valeur de la température adiabatique de flamme. En effet, pour une particule d'aluminium brûlant dans l'air à 1 bar, la température calculée est de 3540 K, d'après le code de calcul SIAME (Osmont et al. 2018^[97]).

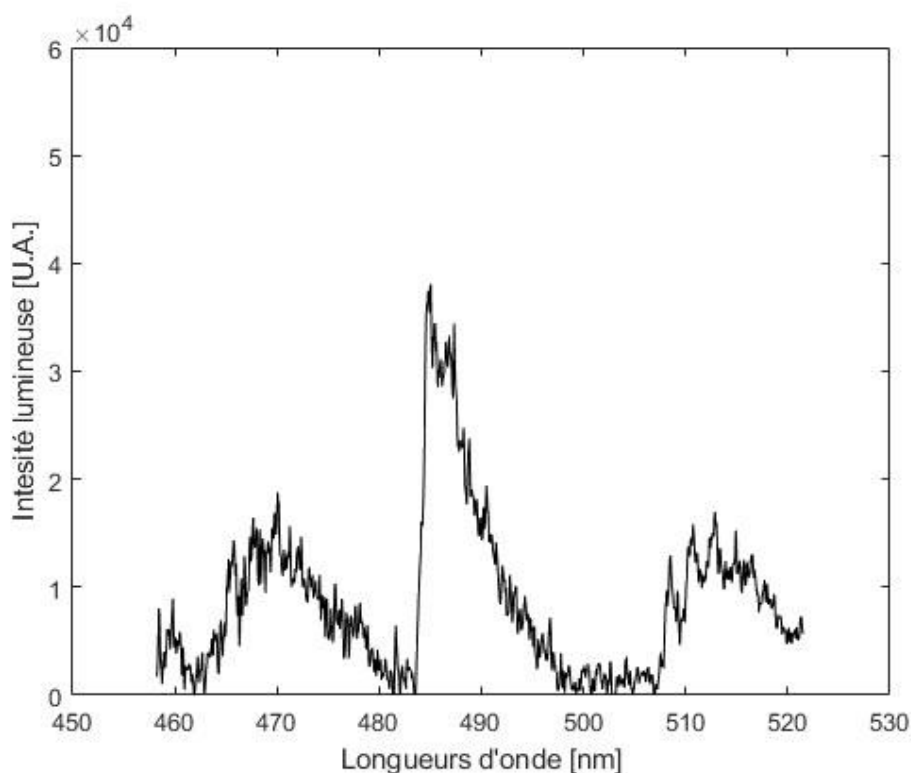


Figure III-33 — Spectre corrigé sans fond continu obtenu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à 1 bar.

En conclusion, de nombreuses méthodes d'analyse furent développées durant ces travaux. Elles permettent de mesurer les paramètres physiques caractéristiques de la combustion des particules durant les expériences conduites durant cette thèse.

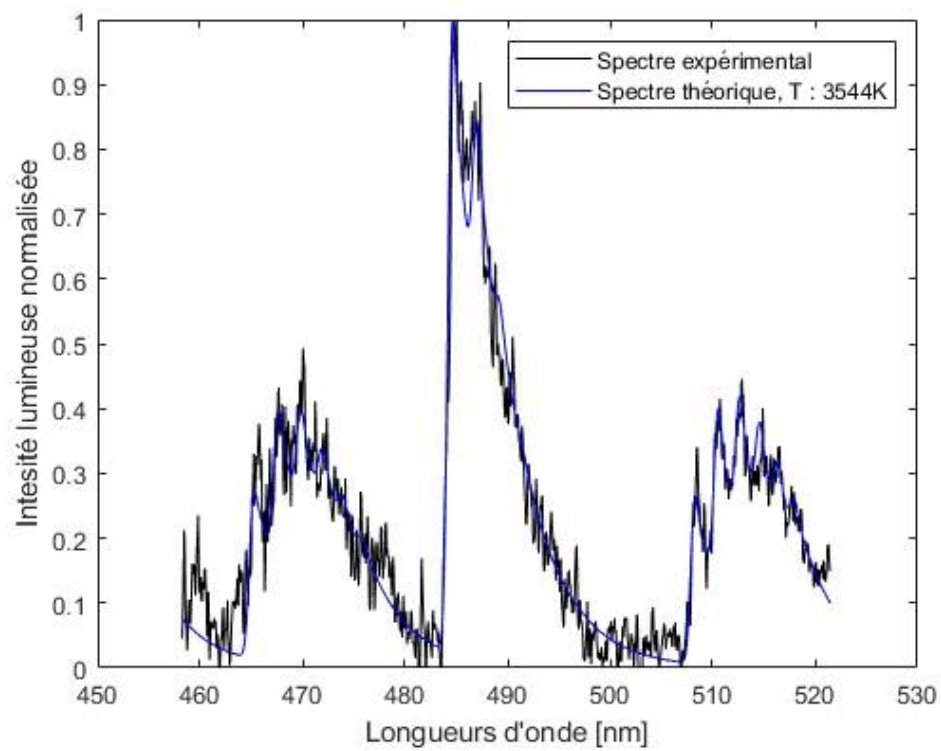


Figure III-34 — Méthode de comparaison entre les spectres d'émission d'AlO expérimental et théorique à 3544 K.

Chapitre IV : Résultats expérimentaux

Les méthodes décrites dans la partie précédente (cf. III.6) ont été appliquées au cours des campagnes de mesures menées durant cette thèse. Diverses ambiances gazeuses furent examinées dans cette étude sur la combustion des particules d'aluminium. L'ensemble des expériences menées est synthétisé dans le graphique de la Figure IV-1.

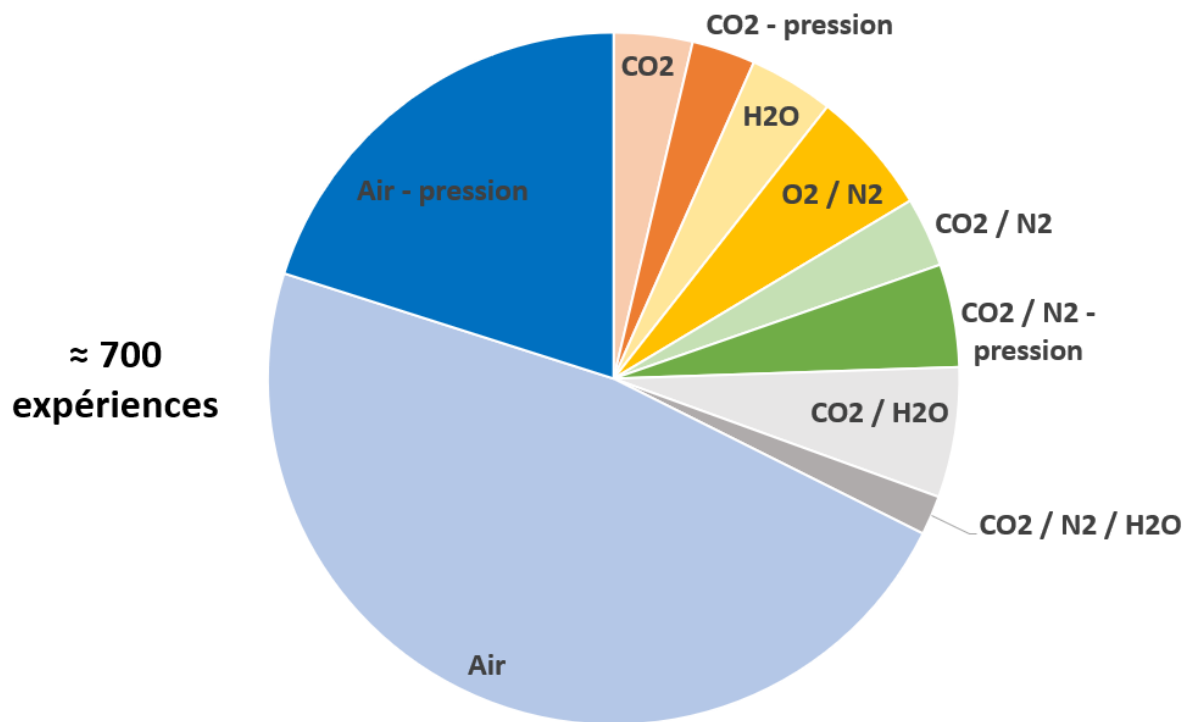


Figure IV-1 — Répartition de l'ensemble des expériences réalisées dans différentes ambiances gazeuses.

En premier lieu, il est nécessaire de caractériser la combustion de particules d'aluminium dans une ambiance connue et maîtrisée. Pour cela, une description fine de la combustion dans de l'air à pression atmosphérique (1 bar) et à température ambiante (environ 293 K) fut menée. Dans un second temps, l'effet de la variation de la pression dans une ambiance d'air à température ambiante a été étudié. Les observations faites ont permis de décrire précisément l'impact de la pression sur la combustion. Ces résultats sont directement comparables à ceux de Braconnier (2020)^[2].

Parmi les espèces pouvant être réduites par l'aluminium pendant la postcombustion, le dioxyde de carbone (CO₂) est celui présent en plus grande quantité. Il est important d'étudier

la réaction de particules d'aluminium dans un environnement contenant du CO_2 afin de répondre à l'objectif majeur de cette étude : étudier la combustion dans une ambiance proche de celle de la postcombustion. Dans une première partie de l'étude, l'effet de la composition de l'environnement gazeux sur la combustion sera détaillé. Pour cela, des expériences ont été réalisées dans une atmosphère composée à 100 % de CO_2 à pression atmosphérique ou à haute pression. Le rôle de cette espèce a également été caractérisé dans le cadre de la thèse de Braconnier (2020)^[2]. Ce travail propose de nouveaux résultats qui vont permettre de compléter cette étude.

Le développement d'un système permettant d'introduire de la vapeur d'eau (H_2O) dans le dispositif expérimental a permis l'étude de la combustion dans une atmosphère humide. Il s'agit d'une des autres principales espèces pouvant être réduites par l'aluminium pendant la phase de postcombustion d'un explosif. Afin de caractériser l'effet de cet élément, une ambiance de 100 % de vapeur d'eau fut expérimentée à 1 bar et une température d'environ 400 K. Ces conditions sont nécessaires pour maintenir l'eau à l'état de vapeur et ne pas dépasser la pression de vapeur saturante. Toutes les expériences menées avec de la vapeur d'eau ont été conduites dans des conditions de pression et température similaires. Cette campagne d'expériences permet de produire les premiers résultats de combustion dans cette ambiance encore très peu étudiée. Pour compléter cette investigation, la vapeur d'eau fut diluée avec du dioxyde de carbone dans différentes proportions, afin d'évaluer l'impact de l'ajout d'une autre espèce sur la combustion.

Enfin, d'autres expériences furent menées dans une atmosphère proche de celle pouvant être rencontrée lors de la postcombustion d'un explosif aluminisé, avec du CO_2 , de l' H_2O et du N_2 . Cette étude a pour objectif de référencer au mieux, dans cette atmosphère, les phénomènes survenant pendant la combustion, ainsi que les paramètres physiques associés (temps de combustion, température), qui sont encore très peu documentés. À terme, ces données permettront d'affiner les modèles de postcombustion des codes de simulation hydrodynamique de façon à mieux restituer le souffle produit par des charges aluminisées.

IV.1. Étude de la phénoménologie

Dans un premier temps, une description phénoménologique du processus de combustion est proposée pour l'ensemble des environnements cités précédemment.

IV.1.1. Étude de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air

L'étude des phénomènes mis en jeu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air sert de référence pour la plupart des conditions documentées. Le paragraphe ci-dessous décrit les phénomènes rencontrés à pression atmosphérique et discute les effets de la pression dans l'air.

IV.1.1.1. Pression atmosphérique

Plus de 340 expériences de combustion ont été réalisées dans cette configuration. Les phénomènes décrits dans cette partie sont ceux qui ont été rencontrés majoritairement et sont représentatifs du déroulement de la combustion, quelle que soit la taille de la particule. Celle-ci a un diamètre compris entre 20 et 110 μm . La Figure IV-2 illustre une séquence de combustion d'une particule d'aluminium brûlant dans de l'air atmosphérique à 1 bar. Les différentes phases de la combustion sont décrites dans les paragraphes suivants.

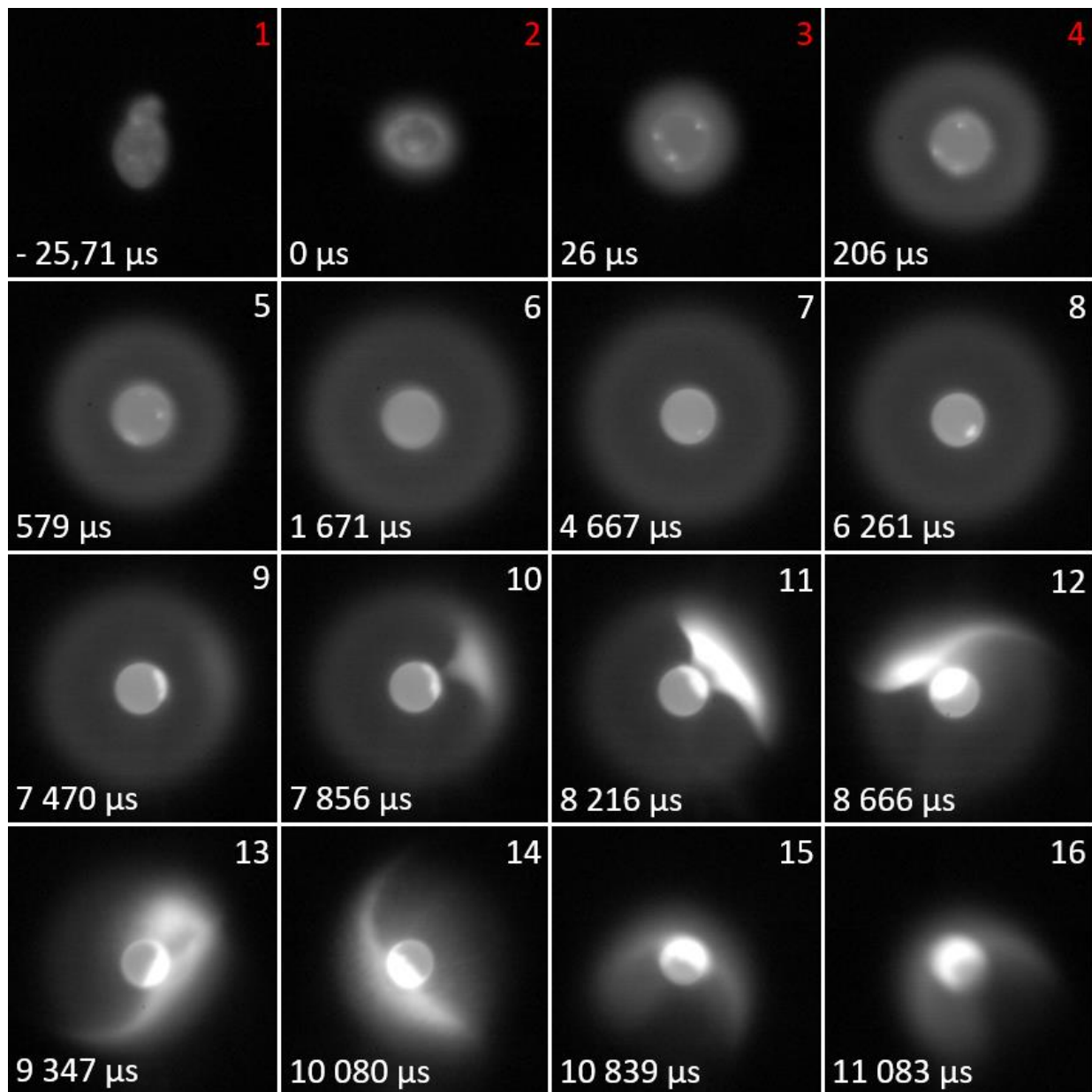


Figure IV-2 — Images extraites d'une séquence montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée d'air à pression atmosphérique (1 bar) et à température ambiante (295 K). ($D_0 = 82 \mu\text{m}$, séquence capturée à 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 12 μs). Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

- **Chauffage (Images 1 à 4 de la Figure IV-2)**

En premier lieu, la particule est chauffée par le laser CO₂ afin d'atteindre la température de vaporisation de l'aluminium (2800 K à 1 bar) qui correspond au point de départ des réactions gazeuses. Toutefois, avant cela, d'autres changements de phase se produisent. Il s'agit de la fusion de l'aluminium et de l'alumine. Le changement d'état de l'aluminium débute avant que la couche d'oxyde n'ait fondu. Puis, sous l'effet de la chaleur générée par le laser, qui n'est pas encore éteint, et du changement d'état de l'aluminium, la couche d'alumine se ramollit, se rompt et, sous l'effet de la tension de surface de l'aluminium liquide, la particule devient sphérique (Figure IV-2 [1/2]). La rupture de la couche d'alumine est rendue visible par la présence de zones d'intensités lumineuses différentes à la surface de la goutte (Figure IV-2 [2]). La zone la plus lumineuse correspond à l'alumine qui commence à se rassembler, la zone la plus sombre étant l'aluminium qui peut maintenant réagir avec l'environnement gazeux. Cela initie la combustion, car l'aluminium est exposé à l'oxydant présent dans l'environnement. La fusion de l'alumine se produit progressivement durant ces phénomènes, en partie sous l'effet du laser toujours en fonctionnement. Au même moment l'aluminium atteint sa température de vaporisation, ce qui conduit à la présence d'une flamme de diffusion entourant la goutte dès l'image 2 de la Figure IV-2. Sa mise en place et son expansion rapide sont visibles par l'augmentation du signal lumineux émis et capté par les PM (Figure IV-3 entre le point 2 et 5), mais aussi par le suivi du diamètre de la flamme (Figure IV-4).

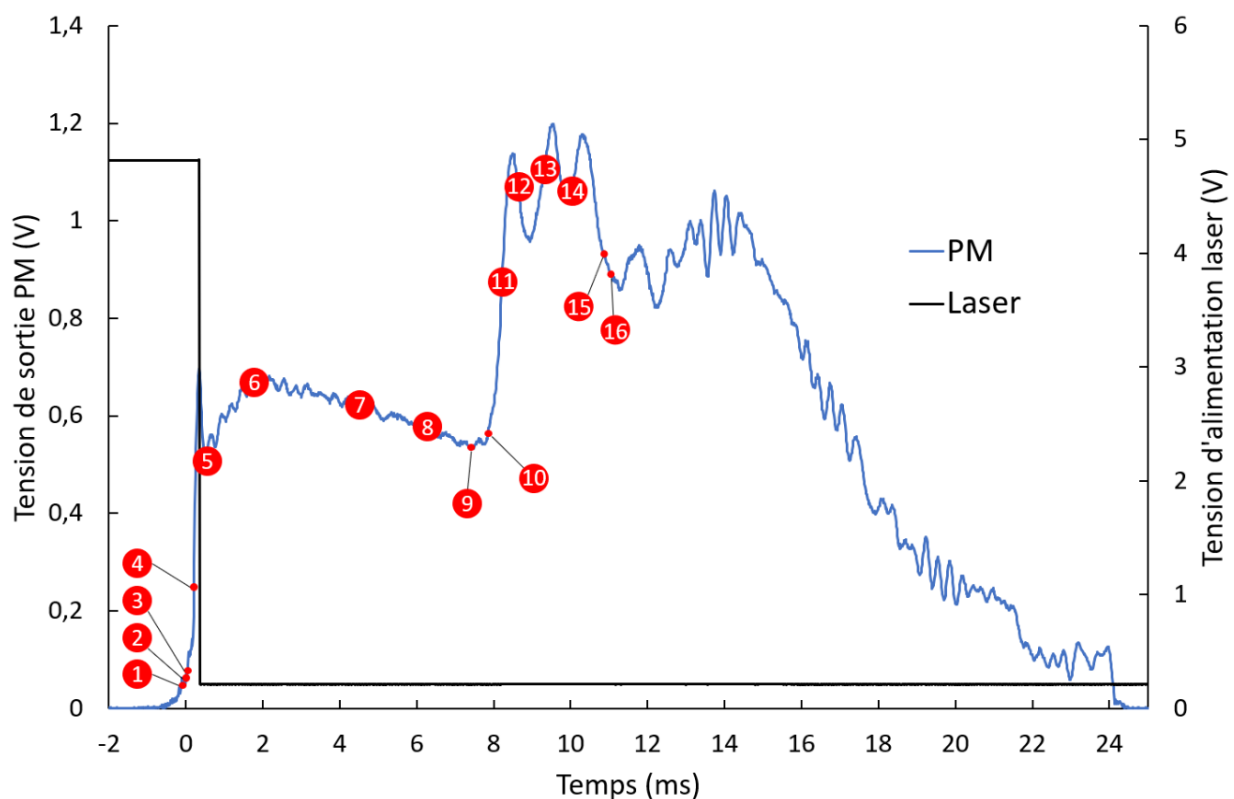


Figure IV-3 — Évolution temporelle du signal d'un PM au cours de la combustion de la particule représentée sur la Figure IV-2. La tension d'alimentation du laser est représentée en noir. Les numéros sur la figure correspondent aux numéros des images de la Figure IV-2.

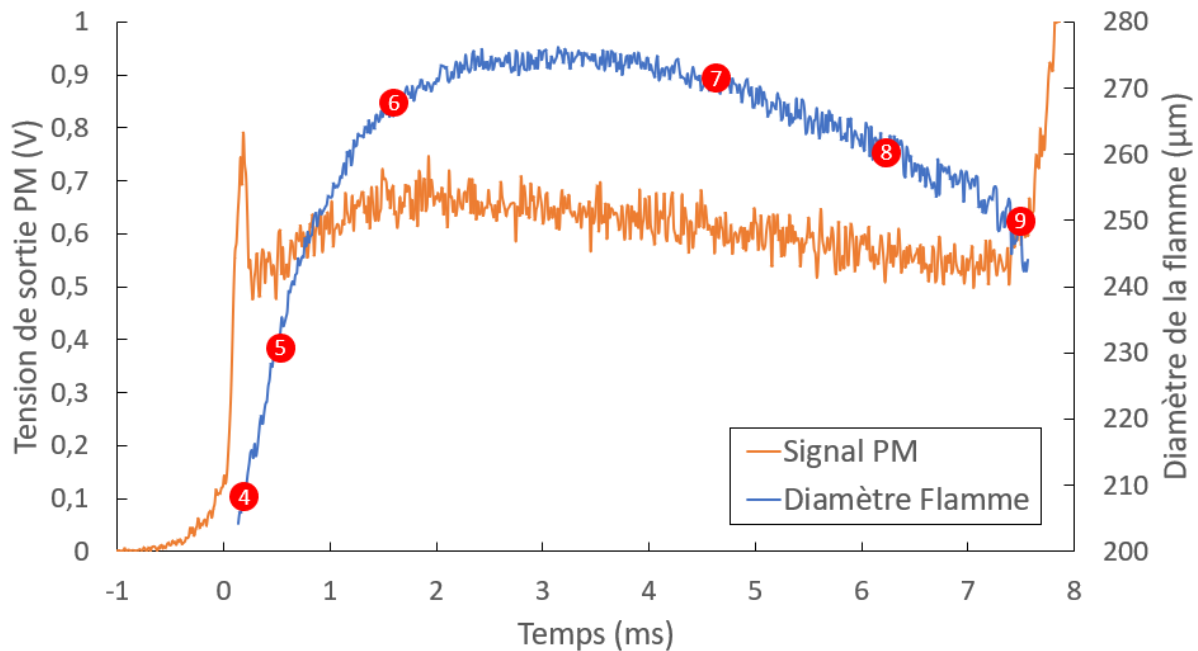


Figure IV-4 – Suivi de l'évolution du diamètre de la flamme en fonction du temps. Les numéros sur la figure correspondent aux numéros des images de la Figure IV-2.

- **Phase de combustion symétrique (Images 2 à 9 de la Figure IV-2)**

Dans le cas de l'aluminium, l'oxyde et son métal ne sont pas miscibles. Une fois la couche d'alumine rompue, celle-ci se rassemble en un ou plusieurs lobes à la surface de la goutte d'aluminium sous l'effet de la tension superficielle (Figure IV-2 [3]). Ces lobes sont identifiables par leur intensité lumineuse plus élevée. L'ensemble goutte/lobe peut être considéré comme thermiquement homogène avec une température uniforme et proche de la température de vaporisation de l'aluminium (2791 K à 1 bar). Cette différence d'intensité lumineuse est causée par la différence d'émissivité des deux espèces. Les différents lobes commencent à se rassembler en un seul lobe par effet de stabilité, en minimisant la tension superficielle (Figure IV-2 [3/4/5]).

À partir de l'image 2 de la Figure IV-2, il est possible d'apercevoir une flamme de diffusion se former autour de la goutte. Elle est identifiable par le gradient d'intensité lumineuse perçu autour de la goutte. Cette zone est composée des intermédiaires et des produits de réaction. La flamme est ainsi visible grâce à l'alumine produite durant la réaction et qui se condense sous forme de particules nanométriques. L'alumine nanométrique a une température proche de la température adiabatique de flamme (≈ 3550 K à 1 bar dans l'air) ce qui explique son rayonnement intense. La concentration de ces nanoparticules d'alumine permet de distinguer la flamme. La flamme progresse de façon centrifuge à partir de la goutte (Figure IV-2 [3/4/5]). Un équilibre est atteint une fois que le rayon de la flamme devient légèrement supérieur à trois rayons de goutte (Figure IV-2 [6]). Au-delà, la capacité à visualiser l'alumine est limitée par la chute simultanée de la concentration en nanoparticule d'alumine et de la température. La flamme de diffusion présente une symétrie sphérique (Figure IV-2 [6]).

La diminution progressive du signal du PM sur la Figure IV-3 entre les points 6 et 9 est la conséquence de la réduction progressive du diamètre de la goutte et donc du diamètre de

la flamme. Le diamètre de la goutte diminue de 82 à 71 μm , pendant que le diamètre de la flamme baisse de 273 à 247 μm . Durant cette phase, le rapport entre le diamètre de la flamme et celui de la goutte reste alors constant à environ 3,3. Ce même rapport de dimensions a été observé dans l'étude de Braconnier (2020)^[2].

À la fin de la phase symétrique, il est possible d'apercevoir le lobe grandir à la surface de la goutte (Figure IV-2 [7/8/9]). Ce phénomène n'a pas été observé durant les expériences menées par Sarou-Kanian et al. (2005)^[66], mais il a bien été identifié par Braconnier (2020)^[2]. Il empêche localement l'aluminium de réagir avec le dioxygène contenu dans l'air. Une fois que le recouvrement de la goutte est suffisamment important, une zone plus brillante apparaît sur la flamme du côté du lobe (Figure IV-2 [9]). Cette partie de flamme plus brillante est provoquée par la perturbation locale de l'évaporation de l'aluminium par le lobe d'alumine qui annule le flux de Stefan. Cela provoque une augmentation de la concentration locale en alumine, qui n'est plus entraînée par l'aluminium gazeux, ce qui est identifiable par la diminution de la transparence dans cette zone de la flamme. Cette dissymétrie d'écoulement autour de la goutte induit la mise en place d'une zone de convergence de l'alumine vers le lobe. Les gaz présents dans cette zone sont plus froids du fait de l'absence de réaction. Cette zone de convergence froide peut favoriser la condensation de l'alumine qui s'accumule, du fait de l'absence d'écoulement important. La conséquence est la formation d'une interface en forme d'entonnoir vers le lobe, où la concentration d'alumine est plus forte (Figure IV-2 [10]). Cette perturbation marque la transition vers le régime en phase asymétrique qui est identifiable par une augmentation brutale du signal lumineux, visible sur la Figure IV-3 après les points 9 et 10.

- **Phase asymétrique (Images 9 à 16 de la Figure IV-2)**

À la suite de cette transition, la vaporisation de la goutte d'aluminium se poursuit sur la partie de sa surface non recouverte par le lobe dont le diamètre continue à augmenter. Le flux d'aluminium n'étant plus homogène, la goutte est soumise à un déséquilibre de quantité de mouvement. Cela provoque donc un déplacement de la goutte avec des mouvements rotatifs, appelés « spinning » (Figure IV-2 [11/12/13]) et rectilignes appelés « jetting » (Figure IV-2 [14/15/16]). L'occurrence de ces deux phénomènes peut induire des variations brusques de trajectoire. Le spinning correspond, sur les signaux des PM, aux oscillations visibles sur la Figure IV-3 entre les points 11 et 15. Durant ces phases, le volume du lobe continue d'augmenter pour recouvrir presque intégralement la particule. Dans l'intégralité des cas, la particule sort du champ de vision de la caméra ce qui empêche de visualiser la fin de cette phase ainsi que l'extinction de la particule. L'analyse du signal des PM permet d'estimer le comportement de la particule une fois celle-ci sortie du champ de vision de la caméra, car celui des PM est plus large. La Figure IV-3 permet donc de déduire le déroulement de la fin de la combustion observée sur la Figure IV-2. Après la dernière image visible, la particule continue de tourner sur elle-même ce qui est identifiable par les oscillations du signal des PM. Les pics d'intensité correspondent aux moments où la zone la plus lumineuse de la flamme se trouve face aux PM, et inversement. Le jetting n'est pas distinguable sur les signaux PM, seule la caméra permet son observation. À la vue du signal de la Figure IV-3, il est raisonnable de supposer que la rotation de la particule ne s'arrête pas. La réaction a été probablement entretenue durant cette partie, jusqu'à la perte totale de signal à 24,5 ms après le début de la combustion.

- **Extinction**

La phase d'extinction n'est pas observée sur les séquences vidéo enregistrées dans l'air à 1 *bar*. Le spinning et le jetting présents durant la phase asymétrique font sortir la particule du champ de vision de la caméra avant qu'elle ne soit atteinte. Une hypothèse possible, au vu du signal du PM de la Figure IV-3, est que la particule perd progressivement en intensité lumineuse, du fait de sa régression jusqu'à la consommation totale de l'aluminium. Une autre hypothèse serait que la particule soit totalement encapsulée par le lobe d'alumine qui contiendrait alors l'aluminium non brûlé en son cœur. L'aluminium ne pouvant plus réagir, la combustion serait incomplète. Aucun moyen ne permet de récupérer les produits de réactions sur le dispositif expérimental, il est alors impossible de conclure avec certitude sur l'hypothèse la plus correcte.

IV.1.1.2. Effets de la pression

Une fois le cas de référence établi dans de l'air à 1 *bar*, il est possible d'étudier les phénomènes rencontrés durant la combustion dans de l'air à des pressions plus élevées. L'étude des interactions observées pour des valeurs plus élevées de la pression est importante dans le cadre de ces travaux de thèse, car celle-ci est très nettement supérieure à la pression atmosphérique pendant la phase de postcombustion d'un explosif. La pression au début de la phase de postcombustion est de l'ordre de la centaine de kilobars, mais ces conditions ne peuvent pas être reproduites avec le dispositif expérimental. Toutefois, la pression décroît rapidement au début de la postcombustion jusqu'à atteindre quelques dizaines à une centaine de bars. La montée en pression permise par le léviteur permet donc la construction d'une base de données de référence pour cette application.

En plus de celles faites à 1 *bar*, des expériences ont ainsi été menées à 2,5, 5, 10, 25 et 50 *bar*. Les images présentées sur la Figure IV-5 représentent les phénomènes observés pour les différentes valeurs de pression considérées, à l'exception de celle de 5 *bar* qui fait l'objet d'une description spécifique en raison de la variabilité des phénomènes associés. À part à 5 *bar*, les expériences ont une forte reproductibilité. Pour chacune des cinq pressions considérées sur la Figure IV-5, les séquences de combustion sont décomposées en cinq images. Les essais peuvent être séparés en trois catégories : ceux présentant une combustion en régime de diffusion, ceux en mode de transition et un cas particulier intermédiaire entre les deux régimes. Les expériences menées à 1 et 2,5 *bar*, correspondant respectivement aux images indicées (a) et (b) de la Figure IV-5, révèlent que l'aluminium brûle en régime de diffusion. Les combustions menées à 10, 25 et 50 *bar*, correspondant respectivement aux images indicées (c), (d) et (e) de la Figure IV-5, sont quant à elles en régime transitoire caractérisé principalement par l'absence de flamme de diffusion, mais avec toutefois la présence de dispersion d'alumine. Les réactions observées à 5 *bar* sont les cas particuliers, représentés par la Figure IV-8. Ils correspondent au régime intermédiaire entre les deux modes de combustion évoqué précédemment. Il est à noter que le temps d'exposition utilisé sur la caméra diffère entre les cas présentés. Un réglage de ce temps est indispensable pour éviter une saturation de la caméra. L'intensité lumineuse des images acquises pour deux configurations différentes ne peut donc pas être comparée.

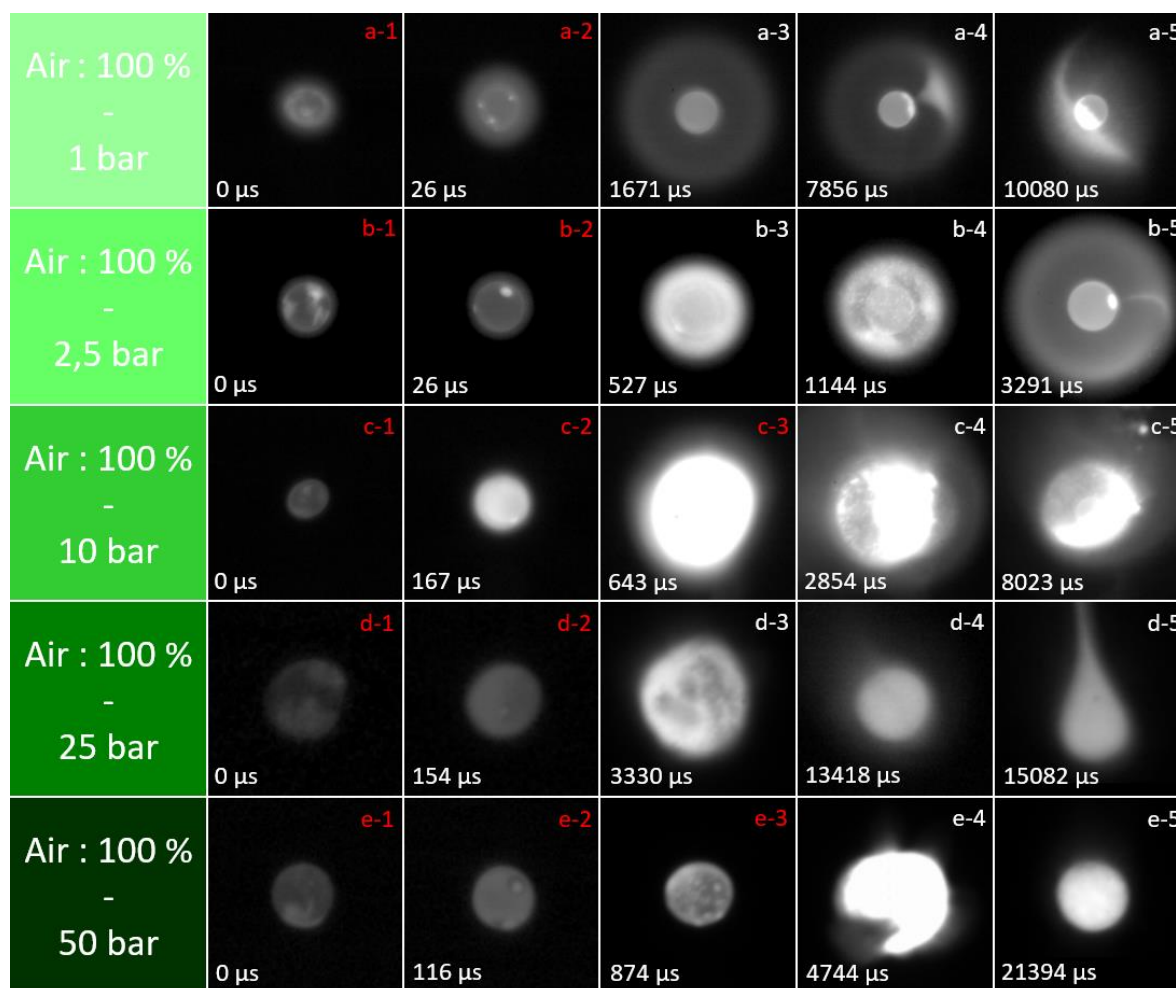


Figure IV-5 — Images extraites de plusieurs séquences montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée d'air à différentes pressions. (a) 1 bar, $D_0 = 82 \mu\text{m}$, 78 000 ips avec un temps d'exposition de 12 μs . (b) 2,5 bar, $D_0 = 111 \mu\text{m}$, 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 12 μs . (c) 10 bar, $D_0 = 73 \mu\text{m}$, 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 7 μs . (d) 25 bar, $D_0 = 66 \mu\text{m}$, 110 000 ips et avec un temps d'exposition de 1 μs . (e) 50 bar, $D_0 = 97 \mu\text{m}$, 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 2 μs . Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

• Résultats à « basse » pression

Le processus de combustion reste assez similaire entre les cas à 1 et à 2,5 bar, toutefois quelques différences sont présentes. Tout d'abord, l'allumage est similaire : la couche d'alumine recouvrant la particule d'aluminium se liquéfie dans les deux cas (Figure IV-5 [a-1] et [b-1]). À la suite de la rupture de l'oxyde, un lobe se forme à la surface de la goutte. Il est à noter qu'à 2,5 bar, le lobe est initialement plus gros que dans la plupart des cas traités à 1 bar (Figure IV-5 [a-2] et [b-2]). Une différence entre ces deux configurations est observée au moment de former la flamme de diffusion. Dans le cas à pression atmosphérique, la flamme permet de distinguer la goutte d'aluminium par transparence (Figure IV-5 [a-3]). À 2,5 bar, le nuage de nanoparticules d'alumine formé lors de la combustion est initialement très brillant, ce qui ne permet pas de distinguer la goutte (Figure IV-5 [b-3]). Le temps d'exposition pour les deux séquences est similaire (12 μs). L'hypothèse retenue pour expliquer l'augmentation de l'intensité de cette zone est que la quantité initiale de vapeur d'aluminium produite est plus importante à 2,5 bar ce qui induit ainsi une plus grande production d'alumine au début de la séquence. En effet, la température de fusion de l'alumine augmente avec la

pression. La particule initiale est donc chauffée à des températures plus élevées avant que la rupture de la couche d'alumine n'intervienne ce qui permet ainsi de libérer une plus grande quantité d'aluminium en phase vapeur. D'autre part, la densité de l'atmosphère gazeuse étant plus élevée, l'oxygène est davantage disponible à proximité de la goutte, favorisant ainsi la réaction. La diffusion des nanoparticules est certainement ralentie également par cette augmentation de densité, favorisant la création de zones à forte concentration en alumine. La densité importante de nanoparticules favorise l'agglomération et donc la formation de microparticules d'alumine qui ensuite suivent le flux d'écoulement d'aluminium (Figure IV-5 [b-4]). À la suite de ce phénomène, la flamme se forme autour de la goutte (Figure IV-5 [b-5]) avec un rapport entre les rayons de la flamme et de la goutte de 3,3 identique au cas à 1 bar (Figure IV-5 [a-3]). Il est intéressant de noter que la flamme est plus brillante dans le cas à 2,5 bar (Figure IV-5 [a-4] et [b-5]). L'hypothèse la plus vraisemblable pour expliquer cette différence est que les nanoparticules d'alumine produites durant la combustion à 2,5 bar sont plus chaudes (≈ 3675 K, étant la température de flamme adiabatique à 2,5 bar dans l'air), mais aussi plus concentrées dans la flamme. Toutefois, une autre particularité de la combustion à 2,5 bar est que, dès le début de la phase symétrique de combustion, il est possible d'apercevoir une libération d'alumine venant du lobe (Figure IV-5 [b-5]). Ce phénomène est plus important en début de combustion et s'estompe au fil de la réaction (Figure IV-6). Il n'est pas identique au phénomène « d'entonnoir » vu pour la combustion à 1 bar (Figure IV-5 [a-4]), car durant la combustion à 2,5 bar l'alumine produite est éjectée par le lobe, comme l'illustre la Figure IV-6. À la suite de cette phase, un spinning est constaté sur les signaux PM enregistré pour la séquence à 2,5 bar. Celui-ci est identique au phénomène observé durant la combustion à 1 bar (Figure IV-5 [a-5]). La phase d'extinction n'est pas non plus visible sur l'intégralité des vidéos réalisées à 2,5 bar.

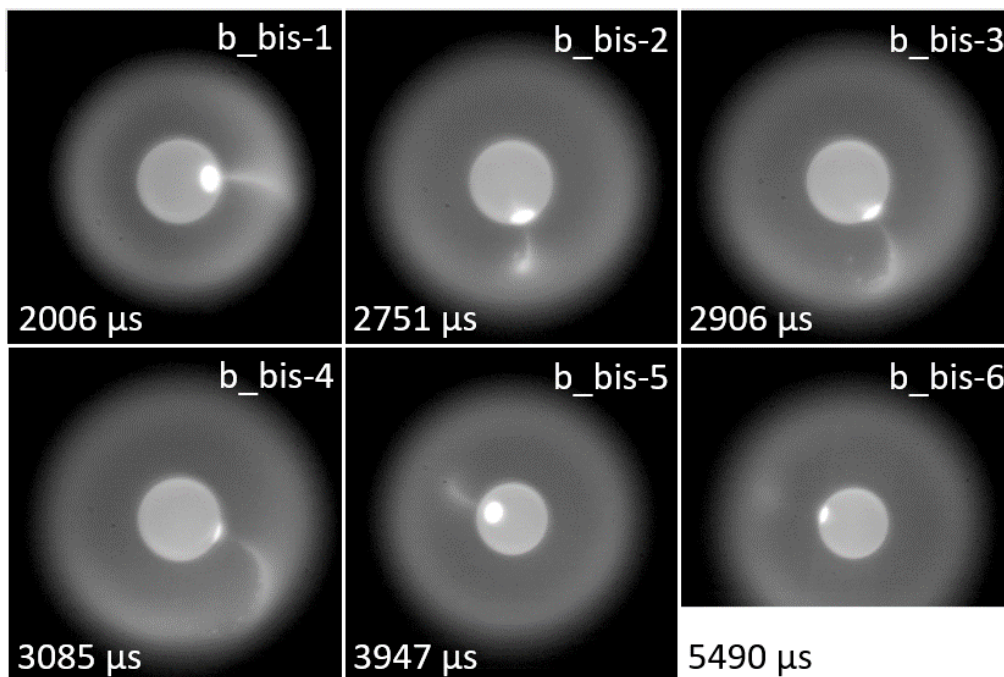


Figure IV-6 - Détail du phénomène d'éjection d'alumine provenant du lobe observé à 2,5 bar. Séquence capturée entre et après les images b-4 et b-5 de la Figure IV-5. La particule sortant du champ de vision de la caméra, la dernière image est tronquée.

• Résultats à « Haute » pression

Les séquences (c), (d) et (e) de la Figure IV-5 montrent les phénomènes rencontrés durant la combustion à plus haute pression ($> 10 \text{ bar}$). L'initiation de la combustion est semblable aux cas à basse pression. À la suite de la rupture de la couche d'alumine (Figure IV-5 [c-1], [d-1] et [e-1]), la goutte est presque instantanément recouverte d'une nouvelle couche d'oxyde (Figure IV-5 [c-2], [d-2] et [e-2]). Cette formation d'alumine localisée autour de la goutte est due à la mise en place de réactions à proximité de la goutte, voire vraisemblablement à des réactions hétérogènes de surface. Il est possible d'observer sur la goutte des lobes se former à partir de la couche externe initiale. Ces lobes sont entourés par un cercle de séparation entre celui-ci et la couche d'alumine nouvellement formée comme le montre l'image e-2 de la Figure IV-5 (également observable à 10 et 25 *bar*). Après cette phase initiale, la nouvelle couche d'alumine se rassemble en plusieurs lobes. Une fois l'aluminium de nouveau disponible, d'autres réactions ont lieu à proximité de la goutte en produisant une nouvelle fois une couche d'oxyde (Figure IV-5 [e-3]). Plus la pression augmente, plus les réactions hétérogènes de surface deviennent importantes.

Ensuite, il n'est pas possible d'observer de flamme de diffusion stable. Toutefois, de l'alumine condensée parvient à se disperser dans les gaz frais (Figure IV-5 [c-3], [d-3] et [e-4]). Dans la plupart des cas, la goutte ne peut plus être distinguée à travers le nuage d'alumine. Les flux de dispersion des produits de réactions (Figure IV-5 [c-4] et [c-5]) sont guidés par les mouvements de la goutte induits par la présence d'un lobe ou de réactions en surface. À la suite de cette phase instable, la goutte en réaction retrouve une forme sphérique pour former un ensemble où l'aluminium et l'alumine coexistent. La présence d'un lobe ou d'une couche d'alumine n'est pas clairement identifiable (Figure IV-5 [d-4] et [e-5]). S'en suivent des phénomènes dits « éruptifs » illustrés sur la Figure IV-7 pour lesquelles des éjections de matière sont observées depuis la surface de la goutte (Figure IV-7 [d_bis-1] [d_bis-2]). Ces phénomènes perturbent la géométrie de la goutte, ce qui donne un indicateur sur l'état liquide de cette dernière (Figure IV-7 [d_bis-3]). À la suite de ce phénomène, la goutte se stabilise (Figure IV-7 [d_bis-4]), puis grossit d'un diamètre initial de 70 μm jusqu'à près de 85 μm en moins de 100 μs (Figure IV-7 [d_bis-5]). Cette augmentation de volume peut être provoquée par l'adsorption de l'oxygène dans la goutte, qui réagit moins vite que l'oxygène n'arrive. Ensuite, la contrainte exercée sur la goutte provoque une éruption, qu'il est possible de supposer être gazeuse (Figure IV-7 [d_bis-6]). Malheureusement, le phénomène étant à l'extrémité du champ de vision de la caméra, il n'est pas clairement discernable. Le phénomène d'adsorption se répète encore une fois après la désorption éruptive, la particule cette fois voit son diamètre évoluer de 75 à 90 μm (Figure IV-7 [d_bis-7] [d_bis-8]), puis de nouveau un phénomène éruptif est observé (Figure IV-7 [d_bis-9]). Cette désorption permet de visualiser l'entraînement d'une partie de la goutte en filament (Figure IV-7 [d_bis-9]) qui se fragmente en plusieurs gouttelettes (Figure IV-7 [d_bis-10]). Ces phénomènes dits « éruptifs » (Figure IV-5 [d-5]) ont déjà été observés par Braconnier (2020)^[2]. Des observations semblables ont été réalisées par Wainwright et al. (2019)^[98] lors de la combustion de composites métalliques dans de l'air à pression atmosphérique. Ces travaux mettent en évidence une coquille qui se forme autour de la goutte, ainsi que sa rupture suivie d'une micro-explosion. D'après ces recherches, cette coquille résulte d'une nucléation hétérogène.

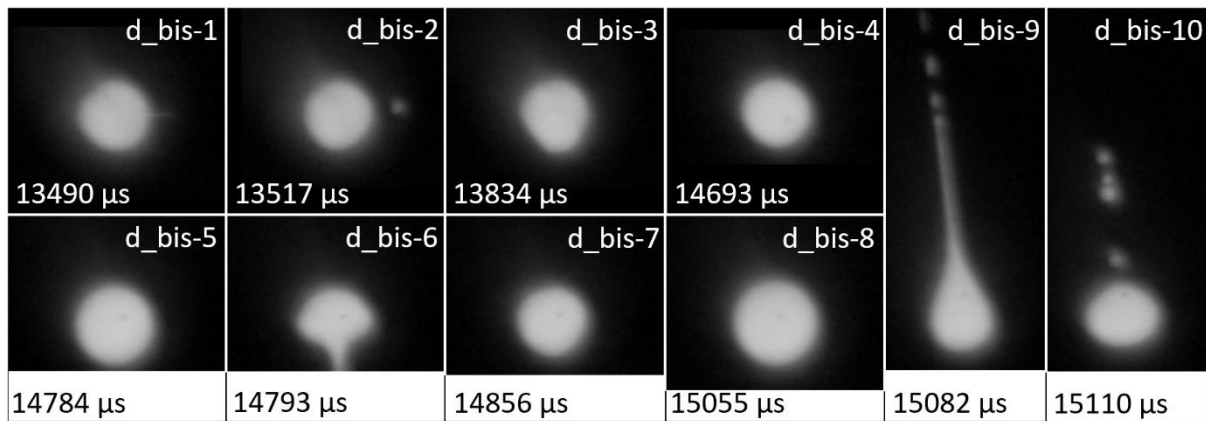


Figure IV-7 – Détail du phénomène d'extinction observé à plus de 25 bar. Séquence capturée après l'image d-4 de la Figure IV-4. La particule sortant du champ de vision de la caméra, les dernières images sont tronquées.

- **Régime intermédiaire : le cas particulier de 5 bar**

Les images de la Figure IV-8 illustrent le fait qu'il existe une condition de pression initiale pour laquelle la phénoménologie varie d'un essai à l'autre. Toutes ces images sont extraites de séquences montrant la combustion d'une particule d'aluminium dans de l'air à 5 bar. Il est possible d'observer trois catégories de réaction différentes : avec globule, instable et sans globule ni lobe. Sur 26 essais réalisés dans de l'air à 5 bar, 40 % sont des réactions avec globule, 40 % sont instables et 20 % sont sans globule ni lobe. Au vu des données collectées, la répartition des catégories n'est pas impactée par le diamètre initial de la particule.

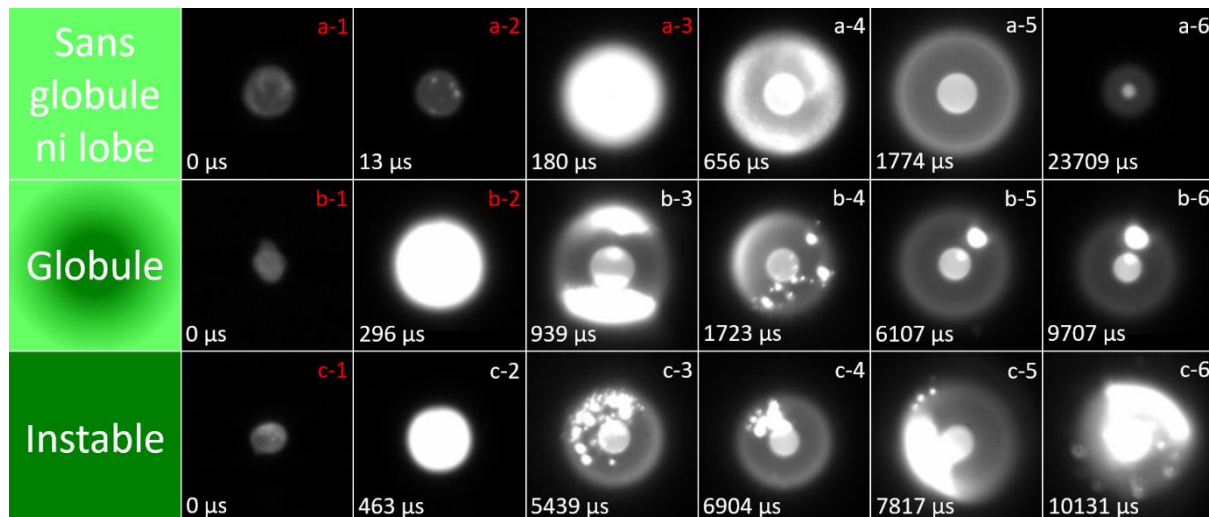


Figure IV-8 — Images extraites de plusieurs séquences montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée d'air à 5 bar. La fréquence d'acquisition ainsi que le temps d'exposition sont les mêmes pour toutes ces séquences. Ils sont respectivement de 78 000 ips et de 12 μ s. (a) Combustion sans globule ni lobe, $D_0 = 96 \mu$ m. (b) Combustion avec globule, $D_0 = 99 \mu$ m. (c) Combustion instable, $D_0 = 82 \mu$ m. Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

Le phénomène le moins fréquent est la combustion sans globule ni lobe. Il est illustré par la séquence (a) de la Figure IV-8. L'initiation est la même que pour toutes les autres combustions dans de l'air : la couche d'alumine se rompt (Figure IV-8 [a-1]), laissant l'aluminium au contact de l'oxydant, ce qui amorce ainsi la réaction. Comme pour les cas dans de l'air à « basse » pression, l'alumine devenue liquide se rassemble pour former plusieurs

lobes à la surface de la goutte (Figure IV-8 [a-2]). Une fois produite dans la flamme, l'alumine se condense en nanoparticules. La densité d'alumine étant très forte au début, il n'est pas possible d'observer la goutte d'aluminium au travers du nuage (Figure IV-8 [a-3]). La production d'alumine suit le flux généré par l'aluminium et continue jusqu'au moment où l'alumine est suffisamment peu concentrée pour entrevoir la goutte d'aluminium (Figure IV-8 [a-4]). La goutte étant visible, l'absence de lobe à la surface de celle-ci est alors constatée (Figure IV-8 [a-5]). Cette observation est répétable sur l'ensemble des essais présentant cette catégorie de réaction. Une flamme de diffusion est observée tout au long de la combustion sans qu'elle ne soit perturbée. La combustion se poursuit en consommant l'aluminium au point de fortement réduire la goutte (Figure IV-8 [a-6]), toujours sans observer la présence d'un lobe à sa surface. La goutte se rapproche d'un diamètre critique pour lequel la combustion va transiter d'un régime diffusif vers un mode de combustion hétérogène de surface. Une couche d'oxyde se forme rapidement (Figure IV-9 [1] à [5]), ce qui a pour conséquence d'éjecter (« jetting ») la particule (Figure IV-9 [6])). Pour rappel, la combustion de référence à 1 bar montre également que la phase symétrique se termine une fois que la croissance du lobe perturbe la réaction. La combustion passe alors en phase asymétrique sans que la goutte n'atteigne un diamètre critique. Les processus de fin de combustion sont donc similaires.

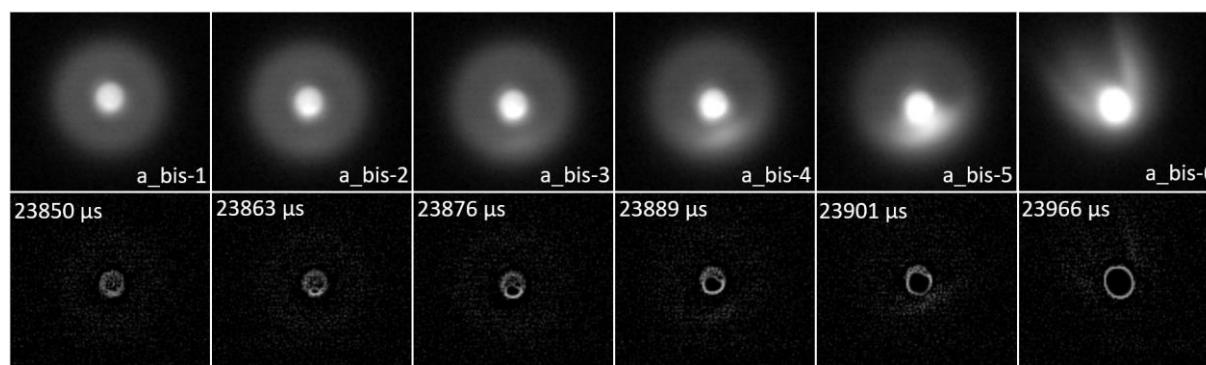


Figure IV-9 – Images illustrant le recouvrement rapide de la particule par le lobe, suivi du « jetting » induit par ce dernier, pendant la combustion [a] de la Figure IV-8. Les images du haut correspondent à l'image brute et celle du bas sont traitées avec un filtre Edge Hipass 3x3.

Les deux autres types de combustion observés présentent une phase initiale de combustion similaire (Figure IV-8 [b-1] et [c-1]). Par la suite, un nuage d'alumine se forme autour de la goutte ne laissant plus entrevoir cette dernière (Figure IV-8 [b-2] et [c-2]). Ensuite, les particules d'alumine produites s'agglomèrent pour former des globules d'une dizaine de micromètres (Figure IV-8 [b-3] et [b-4]). La formation des globules d'alumine a été modélisée par Storozhev et al. (2014)^[99]. Les auteurs l'expliquent par un équilibre entre le flux des produits de réaction et les flux thermophorétiques. Une fois que les globules sont en « orbite » autour de la goutte, ils suivent le mouvement de l'ensemble goutte/flamme et se rassemblent (Figure IV-8 [b-4]/[b-5] et [c-3]/[c-4]). La différence entre les deux modes de combustion se fait après l'agrégation des globules. Le phénomène décrit par les images b de la Figure IV-8, montre que le globule reste en « orbite » autour de la goutte sans interagir avec cette dernière. La goutte est alors progressivement consommée et le globule grandit jusqu'à être plus grand que la goutte d'aluminium (Figure IV-8 [b-6]). Par la suite, l'ensemble globule/goutte sort du champ de vision de la caméra sur l'intégralité des combustions enregistrées, il est alors impossible de conclure avec certitude sur la suite des phénomènes. L'analyse des tensions de sortie des PM révèle une évolution monotone jusqu'à l'arrêt brutal de la combustion (Figure

IV-10). Une hypothèse possible est que le globule absorbe la goutte pour l'encapsuler et stoppe la combustion. Les phénomènes décrits par les images c de la Figure IV-8 diffèrent puisque le globule ne reste pas en « orbite » autour de la goutte, mais l'impacte (Figure IV-8 [c-4]). Cette interaction va créer un lobe à la surface de la goutte et entraînera des réactions vives similaires à celles observées lors des phases asymétriques précédemment discutées. Il est possible de distinguer une forme en « entonnoir » ainsi qu'un fort spinning lié à l'obstruction d'une partie de la surface de la goutte l'aluminium durant ces phases de combustion (Figure IV-8 [c-5] et [c-6]). L'alumine créée dans le nuage migre vers le lobe.

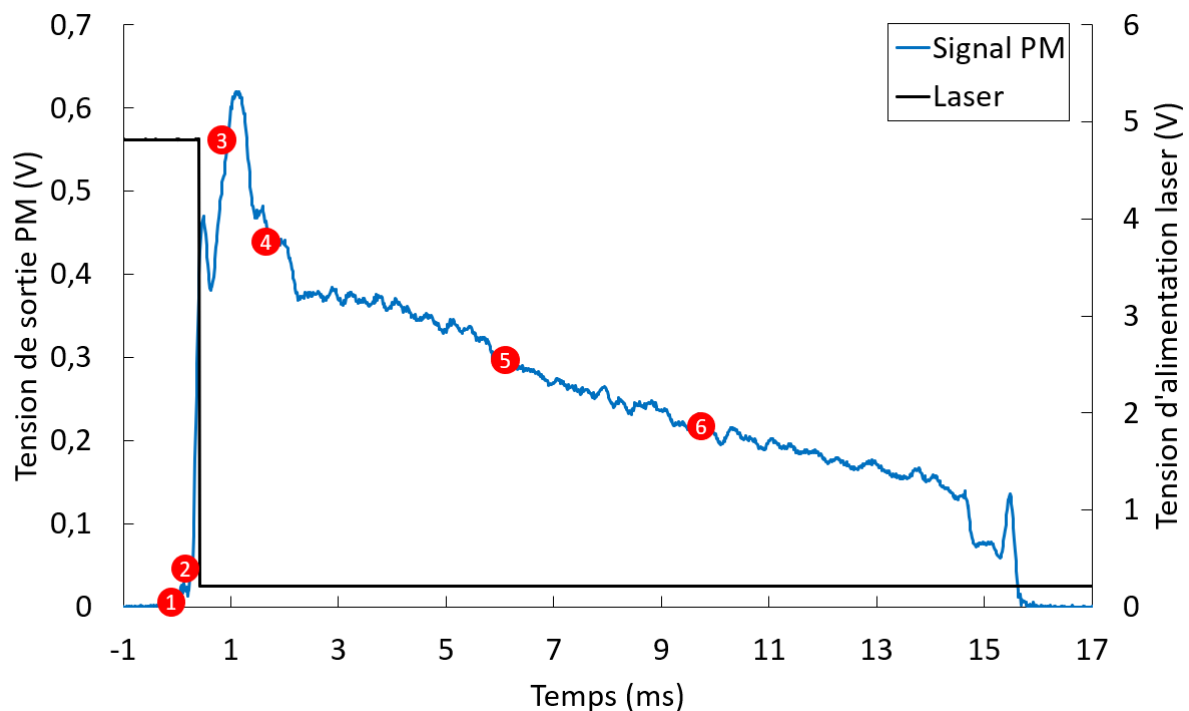


Figure IV-10 — Évolution temporelle du signal d'un PM au cours de la séquence de combustion [b] sur la Figure IV-8. La tension d'alimentation du laser est représentée en noir. Les numéros sur la figure correspondent aux numéros des images [b] de la Figure IV-8.

Ces différents phénomènes sont observables pour des pressions allant de 4 à 6 bar et furent déjà observés, mais non discutés, par Braconnier (2020)^[2]. Pour ces autres conditions de pression, l'occurrence de ces phénomènes est nettement moins fréquente qu'au cours des réactions à 5 bar. Des études sur le temps d'exposition de la particule au laser CO₂ ou une différence de potentiel marquée des électrodes ont été menées par Braconnier (2020)^[2] pour prouver qu'il ne s'agit pas d'une spécificité du lévitateur. Ces conclusions montrent qu'il n'y a pas de dépendance entre ces paramètres et ces phénomènes, ce qui est corroboré par cette étude. Les conditions pour obtenir ces phénomènes restent à déterminer dans de futures recherches.

IV.1.1.3. Synthèse

Cette étude phénoménologique de la combustion de particules d'aluminium dans de l'air à différentes pressions permet d'obtenir une description qualitative détaillée des processus en jeu. Elle a aussi permis de mettre en évidence plusieurs phases distinctes que l'on retrouvera dans d'autres ambiances gazeuses. Certaines observations confirment

l'importance du lobe d'alumine dans les régimes de combustion : sa croissance perturbe la combustion et peut prolonger la réaction. Le processus de production d'oxyde en surface est dirigé, selon les observations faites dans la littérature, par la cinétique des réactions hétérogènes. Il apparaît alors que la régression de la goutte d'aluminium ne peut être correctement décrite par une loi en D^2 qui suppose une évaporation constante et homogène.

La pression modifie notablement le mode de combustion du fait d'une modification des zones de production d'alumine et d'une variation de sa concentration. Un régime de transition apparaît vers 5 *bar*. Il pourrait être intéressant de mettre en place une analyse des produits de réaction en fonction de la pression. De plus, l'augmentation de la pression ambiante va également accroître l'intensité du rayonnement pendant la combustion, comme le montre la diminution progressive du temps d'exposition de la caméra (Figure IV-5) afin de ne pas saturer le capteur.

IV.1.2. Examen de l'impact d'une atmosphère carbonée sur la combustion de l'aluminium.

Le dioxyde de carbone étant le constituant principal des produits issus de la détonation d'un explosif, il est primordial de connaître son impact sur la combustion. En adaptant une approche similaire à celle de la partie précédente sur l'air, cette section a pour objectif l'étude phénoménologique de la combustion de l'aluminium dans le CO_2 pur et l'impact de la pression pour cette condition. La pression maximale étudiée est de 15 *bar* au vu des contraintes matérielles imposées par le dispositif expérimental. Les joints d'étanchéité se dilatent à cause de la sorption du CO_2 par les joints d'étanchéité. Ce phénomène, déjà observé dans les travaux de Dubois et al. (2018)^[100], rend la chambre perméable à haute pression. La sorption est un phénomène d'imprégnation d'un gaz dans et à la surface d'un solide induisant une dilatation des joints et une perte d'étanchéité.

IV.1.2.1. Étude phénoménologique dans une ambiance CO_2 pure

La Figure IV-11 illustre les phénomènes rencontrés durant la combustion d'une particule d'aluminium dans une ambiance de dioxyde de carbone pur à 1 *bar*. La phénoménologie présentée dans cette section est reproductible pour les 26 essais effectués dans les mêmes conditions et avec des particules d'aluminium de taille comprise entre 50 et 85 μm .

L'initiation de la combustion est différente des cas dans l'air : la particule prend une forme sphérique pendant son chauffage et avant même la rupture de la couche d'alumine (Figure IV-11 [1], [2] et [3]). Lorsque celle-ci commence, l'aluminium devient disponible, ce qui marque le début de la réaction de combustion. Ce phénomène est identifiable par le changement local d'intensité visible sur la partie inférieure de la particule (Figure IV-11 [4]). À la différence des essais réalisés dans l'air, la couche initiale d'oxyde, encore partiellement solide, se rétracte lentement et est suffisamment ductile pour suivre la forme de la goutte. Cela laisse apparaître, sur l'image 5 de la Figure IV-11, une zone où la réaction de combustion de l'aluminium en phase gazeuse a débuté. Une partie de la goutte, celle où la couche d'oxyde est encore présente, ne réagit pas. Ces observations corroborent celles faites par Yuasa et al. (1992)^[101] qui décrivent que la température est inférieure à celle de la fusion de

l'alumine au début de la réaction quand la couche d'oxyde se retire. Par la suite, la réaction gazeuse ayant débuté à l'opposé de la couche, l'oxyde va donc se rétracter pour former un lobe (Figure IV-11 [6]). Une flamme de diffusion est alors visible tout autour de la goutte d'aluminium. Cette réaction prouve que la combustion dégage suffisamment d'énergie pour dissocier la molécule de CO_2 et entretenir la réaction de combustion en évaporant l'aluminium. La taille du lobe formé par la couche initiale d'alumine est plus importante que pour les cas dans de l'air ce qui laisse apparaître une déformation de la flamme en forme d'« entonnoir » déjà observée durant les phases asymétriques pour des combustions dans l'air (Figure IV-11 [7]). Il apparaît alors qu'aucune phase symétrique ne peut être observée durant une réaction dans le CO_2 pur. Un mouvement de « spinning » est constaté durant toutes les combustions à 1 bar. Ce mouvement est également visible sur les signaux des PM, comme l'illustre la Figure IV-12 où il est possible d'observer une oscillation du signal après le point 6. Une fois, la flamme établie autour de la goutte, elle s'étend au maximum jusqu'à environ 2,3 fois le diamètre de la goutte (Figure IV-11 [8]) ce qui confirme l'étude de Braconnier (2020)^[2]. Toutefois, vu que la combustion est en phase asymétrique, le rapport n'est pas constant et il diminue lorsque le recouvrement de la goutte augmente. Cette variation est visible entre les images 9 et 10 de la Figure IV-11, où le diamètre de la goutte a proportionnellement moins diminué que celui de la flamme (le rapport D_f/D_g passe de 2,1 à 1,8 entre les deux images). Visuellement, il est possible de constater l'augmentation de la taille du lobe au cours de la combustion (Figure IV-11 [8] [9] [10]) ce qui provoque un « spinning » plus marqué de la particule. Ensuite, la particule sort du champ de vision de la caméra. Il est toutefois possible de suivre l'évolution de l'intensité lumineuse pendant la combustion avec les photomultiplicateurs (Figure IV-12). Les oscillations observées après le point 8 de la Figure IV-12 indiquent que la particule continue de tourner sur elle-même. Le « spinning » n'est plus visible sur les PM après 13 ms. Le rayonnement de la particule continue tout de même de chuter progressivement, signe de l'extinction de la réaction. Cependant, l'extinction n'étant pas visible sur la caméra, nous ne pouvons que supposer que la combustion s'arrête à la perte de signal, soit environ 18 ms après le début de la combustion.

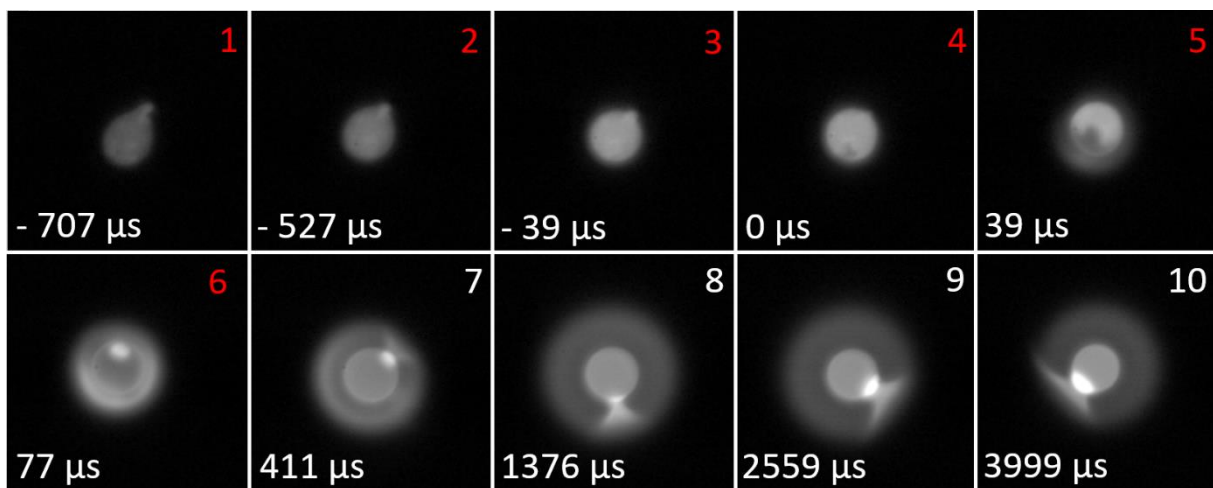


Figure IV-11 — Images extraites d'une séquence montrant la combustion d'une particule d'aluminium dans une atmosphère entièrement composée de dioxyde de carbone. ($D_0 = 65 \mu\text{m}$, séquence capturée à 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 12 μs). Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

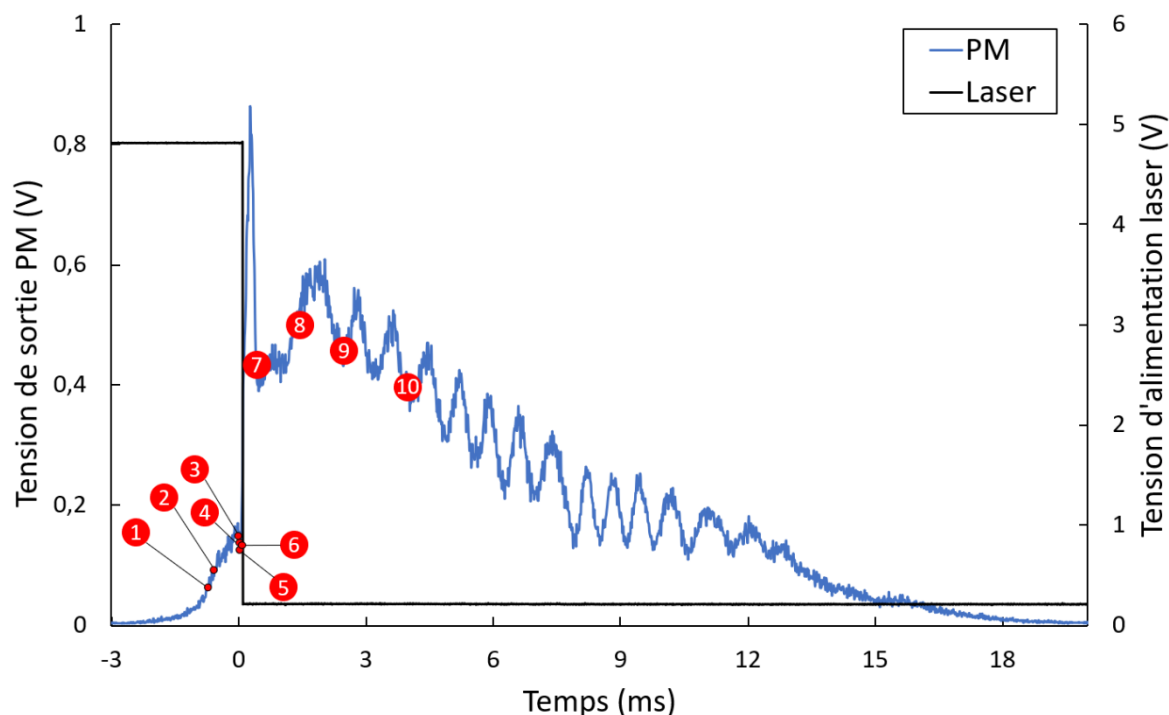


Figure IV-12 — Évolution de l'intensité lumineuse mesurée par les PM et de l'alimentation du laser en fonction du temps, lors de l'essai dont est extraite la séquence d'images de la Figure IV-11. Les numéros sur la figure correspondent aux numéros de la Figure IV-11.

IV.1.2.2. Impact de la pression dans une atmosphère carbonée

La Figure IV-13 illustre différentes séquences de combustion pour quatre conditions de pression différentes dans le dioxyde de carbone. La séquence (a) est le cas de référence à 1 *bar* traitée dans le paragraphe précédent. Les séquences (b), (c) et (d) correspondent respectivement à des pressions de 5, 10 et 15 *bar*. Il est important de noter que les séquences sélectionnées représentent la majorité des phénomènes rencontrés pour ces pressions, avec une très grande occurrence d'apparition.

Premièrement, des différences entre 1 et 5 *bar* sont à noter dès le début des essais. La couche initiale se rompt, mais aucune flamme n'est visible à 5 *bar* (Figure IV-13 [b-1]), contrairement à ce qui a lieu à 1 *bar* où elle apparaît immédiatement après la rupture de la couche d'oxyde (Figure IV-13 [a-1] et [a-2]). Lors de la suite, la couche d'alumine est entièrement rompue et aucune flamme n'apparaît. Toutefois, il est possible d'observer la formation de petits lobes à la surface de la goutte qui tend à prouver l'existence de réactions en régime hétérogène de surface (Figure IV-13 [b-2]). Il est important de noter que le laser alimente toujours la goutte durant cette phase et qu'il s'éteint juste après cette formation de multiples lobes. La flamme apparaît à la suite de ces événements. Cette même observation fut effectuée par Braconnier (2020)^[2] dans son étude sur la combustion dans le CO₂. Par rapport aux essais faits à 1 *bar*, l'élévation de la pression impacte notamment l'émission lumineuse qui s'intensifie. Pour un même temps d'exposition de 12 μ s, la flamme à 1 *bar* permet de distinguer la goutte à travers le nuage (Figure IV-13 [a-3]) alors que pour celle à 5 *bar*, la luminosité du nuage sature l'image ce qui empêche la visualisation de la goutte (Figure IV-13 [b-3]). Cette plus grande intensité lumineuse est provoquée par une élévation de la fraction volumique des nanoparticules d'alumine dans le nuage et par une augmentation de

la température de ces particules (passant d'une température de flamme adiabatique de 3430 à 3600 K entre 1 et 5 bar). L'alumine produite se condense près de la goutte ce qui forme un nuage dense dans la flamme (Figure IV-13 [b-4]), comme observé durant la combustion à 5 ou 10 bar dans l'air (Figure IV-5 [c] Figure IV-8 [c]). La suite du processus de combustion à 5 bar est proche de celle observée à 1 bar. La particule est mise en rotation et ce mouvement se perpétue jusqu'à son extinction (Figure IV-13 [b-5]).

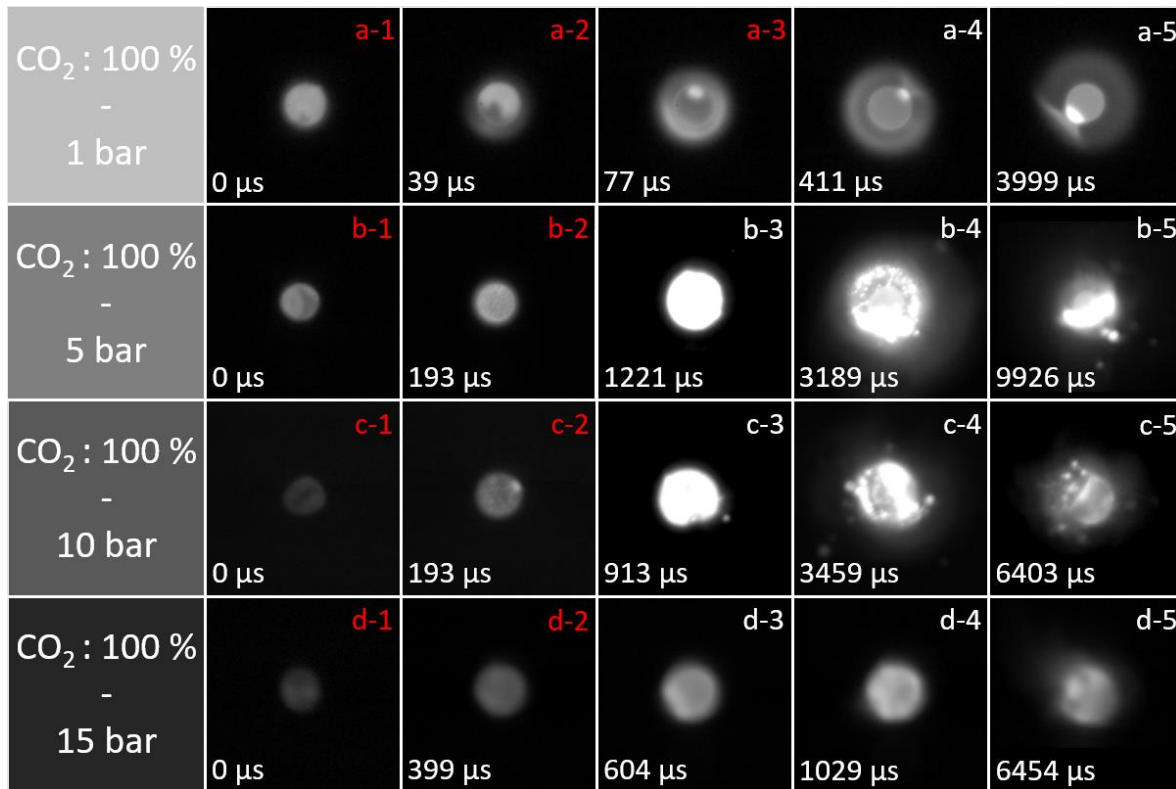


Figure IV-13 — Images extraites de plusieurs séquences montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée à 100 % de CO₂ à différentes pressions. Toutes les séquences ont été capturées à 78 000 ips. (a) 1 bar, D₀ = 65 μm, temps d'exposition de 12 μs. (b) 5 bar, D₀ = 89 μm, temps d'exposition de 12 μs. (c) 10 bar, D₀ = 89 μm, temps d'exposition de 2 μs. (d) 15 bar, D₀ = 97 μm, temps d'exposition de 1 μs. Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

Les essais à 10 et 15 bar sont relativement identiques. Tout d'abord, l'initiation est similaire à celle observée à 5 bar puisqu'aucune flamme de diffusion ne se forme autour de la goutte (Figure IV-13 [c-1] et [d-1]). La formation de plusieurs lobes à sa surface après la liquéfaction totale de la couche d'alumine est visible à 10 bar (Figure IV-13 [c-2]), mais pas à 15 bar sur cette séquence, à cause du temps d'exposition trop faible (Figure IV-13 [d-2]). Elle est plus facilement visible sur d'autres vidéos à 15 bar où le temps d'exposition est plus élevé, comme sur la Figure IV-14. Toutefois, l'utilisation de ces séquences à plus haut temps d'exposition est compliquée, car les phénomènes de fin de combustion satureront fortement les images. Après cela, l'emballlement thermique conduit à la production d'alumine près de la goutte. L'accumulation d'oxyde à proximité de celle-ci génère un nuage dense et lumineux qui empêche de la distinguer (Figure IV-13 [c-3] et [d-3]), comme pour la combustion précédente à 5 bar (Figure IV-13 [b-3]). Les phénomènes rencontrés par la suite se rapprochent de ceux observés durant les essais dans l'air à « haute » pression (Figure IV-5 [d] et [e]). De l'alumine condensée reste en périphérie de la goutte et interagit avec cette dernière ce qui induit les mouvements observés (Figure IV-13 [c-4], [d-4] et [d-5]). Pour la combustion à 10 bar, la goutte

s'enveloppe progressivement d'une couche d'oxyde (Figure IV-13 [c-5]) ce qui laisse supposer qu'à terme, les phénomènes d'enfermement gazeux observés à 25 *bar* dans l'air (Figure IV-5 [d-4] et [d-5]) se produisent aussi dans ce cas. Toutefois, la particule est alors hors champ sur l'intégralité des vidéos enregistrées. Il n'y a donc aucune preuve directe de son apparition.

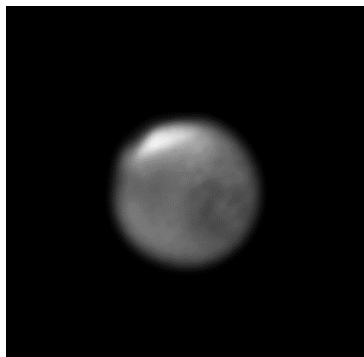


Figure IV-14 - Image extraite d'une séquence de combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée à 100 % de CO₂ à 15 *bar*. Le diamètre initial est de 75 µm et le temps d'exposition de 2 µs.

IV.1.2.3. Synthèse

Les phénomènes observés durant le chauffage et l'initiation de la combustion dans une atmosphère constituée de dioxyde de carbone pur diffèrent de ceux rencontrés dans l'air. Les transitions de phase de combustion sont en général plus lentes, ce qui induit que certains phénomènes qui étaient proches, mais bien distincts temporellement dans l'air se produisent simultanément pour les combustions dans le CO₂. Par exemple lors de l'initiation dans une atmosphère composée d'air, la flamme de diffusion apparaît autour de la goutte une fois la rupture de la couche d'alumine effectuée (Figure IV-2 [2] et [3]). En revanche, dans le dioxyde de carbone, la couche ne se rétracte pas instantanément et il est alors possible d'observer une flamme de diffusion se former à l'opposé de l'oxyde non encore liquéfié (Figure IV-11 [3]). L'hypothèse principale pour expliquer cette observation est que les phénomènes de combustion sont impactés par l'énergie nécessaire à la dissociation de la molécule de dioxyde de carbone. Cette dissociation nécessite une plus grande quantité d'énergie que pour le dioxygène de l'air. Il faut près de 1600 kJ/mol pour rompre les deux liaisons C=O dans le CO₂, contre environ 500 kJ/mol pour la liaison O=O, pour libérer le même nombre d'atomes d'oxygène (Darwent (1970)^[102]). L'analyse des phénomènes observés lors de la combustion de particules d'aluminium dans le CO₂ à pression plus élevée montre des réactions de surface durant les premières phases de la combustion. Cela soulève des questions générales sur les processus de développement des lobes d'oxyde à la surface de la goutte en réaction. Une des hypothèses qui permet d'expliquer ces phénomènes est que l'énergie nécessaire pour vaporiser la goutte est plus importante lorsque la pression est élevée. Une différence de 444 K est notée entre la température de vaporisation à 1 *bar* et celle à 5 *bar*. En revanche, la température de flamme n'a évolué que de 172 K entre 1 et 5 *bar* ce qui implique qu'un déficit d'énergie est alors constaté entre 1 et 5 *bar*. L'emballement thermique est alors plus lent et donc un régime intermédiaire intervient au début de la combustion. Toutefois, après l'allumage, les réactions observées sont en régime diffusif. Il est alors probable que les réactions de surface soient inhibées lorsque le nuage d'alumine est établi : les espèces oxydantes sont consommées en phase gazeuse avant de pouvoir diffuser jusqu'à la surface. L'extinction intervient sûrement à la suite d'un recouvrement de la goutte. Les réactions en

phase gazeuse sont donc limitées à partir d'un certain point, permettant aux oxydes de diffuser pour réagir en surface. Cette hypothèse conforte les résultats de Rossi et al. (2001)^[103] sur la fin de la réaction de combustion. Dans leur étude, l'examen des résidus de combustion de l'Al dans le CO₂ indique la formation d'espèces carbonées complexes (Al₄C₃, Al₄O₄C, Al₂OC...). Un point commun entre la combustion d'une particule dans l'air et dans le dioxyde de carbone est la perturbation due à la présence des lobes. Ils constituent une enveloppe protectrice qui limite la production d'aluminium gazeux. Cette perturbation entraîne l'accumulation des produits de réaction à la surface de la goutte sur le lobe, ce qui déstabilise la particule. L'impact du lobe est encore présent lors de la seconde phase de combustion à pression élevée, et l'interaction entre celui-ci et le nuage d'alumine crée des perturbations importantes. Ces phénomènes ont déjà été observés pour la combustion dans de l'air à « haute » pression. Une étude plus approfondie de l'écoulement autour du lobe ainsi que de son impact serait une des perspectives de ces travaux de thèse.

IV.1.3. Combustion de l'aluminium dans une atmosphère humide

L'étude de la combustion d'une particule d'aluminium dans une atmosphère composée de vapeur d'eau est complexe. Il s'agit, en effet, de l'un des principaux produits de la détonation d'un explosif (cf. Tableau I-2). La combustion de particules d'aluminium dans cette ambiance de vapeur d'eau est nouvelle par rapport aux études menées sur le dispositif expérimental par Marion (1996)^[40], Legrand (2000)^[41] et Braconnier (2020)^[2]. Le dispositif d'injection de vapeur d'eau a été développé par ce dernier, mais n'a pas pu être exploité durant ses travaux de thèse. Ce dispositif est présenté comme une perspective dans son manuscrit (Braconnier (2020)^[2]).

Un article (Halter et al. (2022)^[60]) et une présentation lors du Symposium International de Combustion de 2022 ont été réalisés suite aux travaux sur la combustion dans cette ambiance gazeuse. La première partie sur la vapeur d'eau pure se basera essentiellement sur cette étude. Une étude sur l'impact de l'oxydant sur la phénoménologie sera développée dans une seconde section. L'objectif est ici de comparer les phénomènes mis en jeu avec ces 2 oxydants, CO₂ et H₂O, majoritairement présents dans les ambiances de postcombustion. La détermination de leur efficacité oxydante sera alors faite.

Pour conserver l'eau sous phase vapeur dans la chambre, la température est maintenue proche ou au-delà de 400 K à pression atmosphérique (1 bar). Cette limite de température permet d'éviter toute condensation qui pourrait provoquer un court-circuit dans le système électrique du lévitateur. De nombreux changements ont été réalisés sur ce dernier afin d'isoler au maximum le dispositif électrique et d'obtenir des conditions favorables à l'introduction de vapeur d'eau. En pratique, la pression était constante à 1 bar et la température ciblée était de 410 K, avec une différence pouvant aller jusqu'à 5 K pour certaines expériences.

IV.1.3.1. Étude phénoménologique dans une atmosphère composée de vapeur d'eau pure

Dans cette partie, une séquence vidéo de la combustion d'une particule d'aluminium dans une ambiance de vapeur d'eau pure sera étudiée. Elle est présentée sur la Figure IV-15.

Les particules utilisées ici ont une taille comprise entre 30 et 80 μm . Une description de l'ensemble des images est faite dans cette partie. Les phénomènes décrits ici sont reproductibles pour la trentaine d'essais réalisés dans ces conditions. Pour cet exemple, la température était de 405 K.

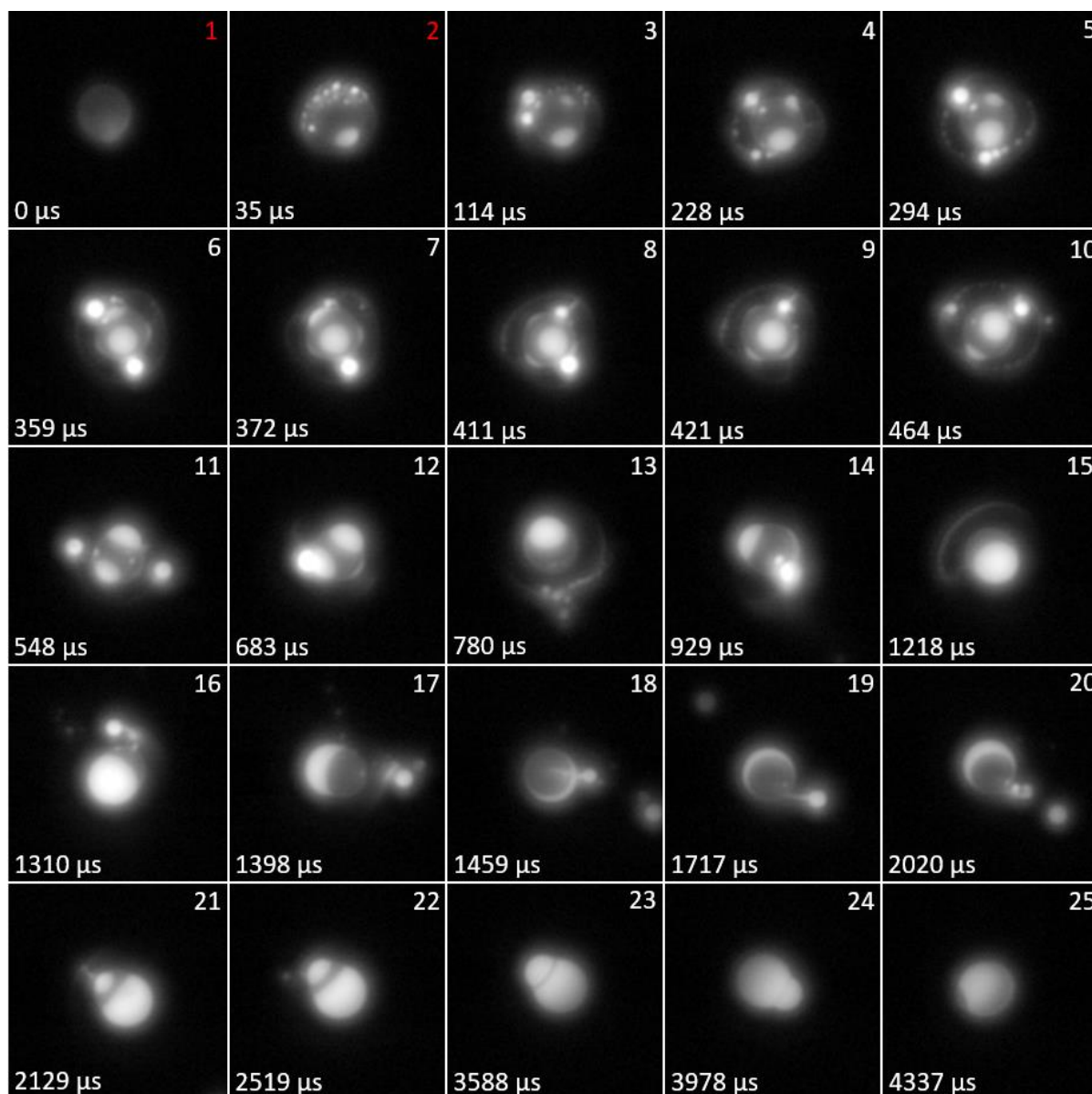


Figure IV-15— Images extraites d'une séquence montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée de 100 % de vapeur d'eau, à 1 bar et 405 K. ($D_0 = 52 \mu\text{m}$, séquence capturée à 230 000 ips et avec un temps d'exposition de 4 μs). Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

- **Initiation de la combustion et formation des globules (Images 1 à 3 de la Figure IV-15)**

La première étape observable est la fusion de la particule qui devient alors sphérique (Figure IV-15 [1]). Suite à cette transformation, la couche d'alumine forme plusieurs lobes. Par la suite, ces lobes migrent et convergent pour n'en former qu'un seul qui flotte à la surface de la goutte d'aluminium. Après cela, il est possible d'observer une flamme de diffusion près de la goutte. L'une des particularités dans cette atmosphère est que la flamme est très proche de

la surface de la goutte, encore plus que pour le cas de la combustion dans le CO_2 (cf. IV.1.2). Dans les autres ambiances gazeuses vues précédemment, la flamme de diffusion est visible et est relativement éloignée de la surface de la goutte. L'alumine produite s'y condense alors sous forme de particules nanométriques qui sont uniformément réparties et forment un front lumineux homogène. Dans une atmosphère composée de vapeur d'eau, la phénoménologie observée diffère fortement. L'alumine formée se rassemble en plusieurs sites différents autour de la goutte et forme des agglomérats, nommés ici globules (Figure IV-15 [2]), qui grandissent et coalescent (Figure IV-15 [3]). La position préférentielle de ces globules, qui « orbitent » autour de la goutte, est à l'opposé du lobe présent à la surface de la goutte d'aluminium (Figure IV-15 [17]). Une configuration de flamme asymétrique est alors observée durant la combustion de la Figure IV-15.

Ces phénomènes semblent également avoir été observés par Bucher et al. (1999)^[31] qui décrivent une réactivité réduite en phase gazeuse, en raison probablement du lobe encapsulant partiellement ou intégralement la goutte. Les modèles proposés par Storozhev et al. (2014)^[99] pour les processus de nucléation homogène et de croissance des globules d'alumine sont cohérents avec les données expérimentales collectées lors de cette étude. Il est intéressant de noter que la multiplication des lobes et des globules fait augmenter le rayonnement global enregistré par les PM (entre le point 3 et 17 de la Figure IV-16).

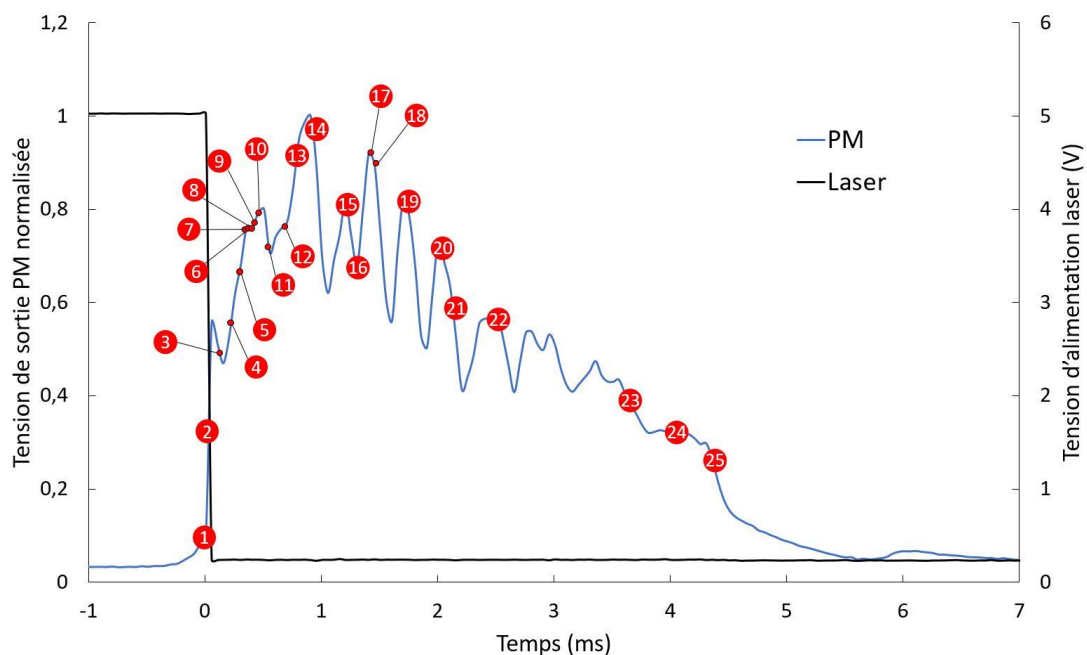


Figure IV-16 — Suivi de l'intensité lumineuse des PM ainsi que de l'alimentation du laser en fonction du temps, lors de la combustion illustrée par la Figure IV-15, dont les points rouges font référence aux images de cette figure. Les numéros sur la figure correspondent aux numéros de la Figure IV-15.

- **Collision du globule avec la goutte : multilobes et couronne (Images 4 à 15 de la Figure IV-15)**

Suite à la formation de ce globule, deux phénomènes spécifiques sont observés : la collision entre le globule et la goutte puis la formation de multiples lobes. Au fil de la réaction, le globule grossit, alimenté par les nanoparticules formées dans la zone de réaction. Le globule

parvient alors à une taille critique et vient percuter la goutte d'aluminium. De cette collision s'ensuit la formation d'un ou plusieurs nouveaux lobes à la surface de la goutte (Figure IV-15 [4/5], [6/7] et [8/9]). Une partie du globule rebondit sur la surface de la goutte pour former un chapelet circulaire de gouttes micrométriques (Figure IV-15 [10]).

Il est assez inhabituel que les lobes secondaires d'alumine ne se regroupent pas rapidement avec le lobe déjà présent. Cependant, la goutte d'aluminium se retrouve avec plusieurs lobes d'alumine à sa surface (quatre visibles dans ce cas, Figure IV-15 [7]). La température des lobes nouvellement formés est supérieure à celle des lobes déjà présents en surface, ce qui pourrait expliquer qu'ils ne coalescent pas immédiatement. Par la suite, les lobes peuvent fusionner progressivement ou se placer dans des positions stables, par exemple à deux positions diamétralement opposées (Figure IV-15 [21]).

L'autre phénomène inhabituel observé à la suite de la collision entre le globule et la goutte est la formation d'un chapelet circulaire de petites gouttes qui se positionne dans un plan perpendiculaire à l'axe formé par le centre de la goutte et le nouveau lobe (Figure IV-15 [5], [10], [13] et [15]). Ce phénomène est similaire à l'impact d'une goutte liquide sur une surface plane qui est très largement décrit dans la littérature (Josserand et al. (2016)^[104], Yuan et al. (2020)^[105]). Ce groupe de nouveaux globules suit ensuite le même processus que les premiers : ils migrent et coalescent pour former un unique globule (Figure IV-15 [11/12] et [13/14]) qui à son tour entre en collision avec la goutte et forme une nouvelle couronne. La répétition de ce mécanisme est visible sur la Figure IV-15 de l'image 2 à 15.

- **Rotation de la particule et éjection des globules (Images 15 à 20 de la Figure IV-15)**

À la suite de ce cycle, où le globule entre en collision avec la goutte et forme de nouveaux lobes et globules, la particule initie un mouvement de rotation (à partir de l'image 15 de la Figure IV-15). Cette rotation modifie la position d'équilibre des globules qui suivent la rotation de la goutte tout en continuant leur coalescence (Figure IV-15 [16], [18] et [19]). Une fois qu'une taille critique est obtenue, les globules, devenus trop lourds, ne parviennent plus à suivre ce mouvement et sont éjectés de l'orbite de la goutte. Ils se refroidissent alors rapidement (Figure IV-15 [18], [19] et [20]). La rotation est visible sur les signaux des PM et se traduit par l'oscillation du signal entre les points 16 et 20 de la Figure IV-16.

- **Combustion incomplète (Images 20 à 21 de la Figure IV-15)**

Durant la rotation, l'alumine formée dans la zone de réaction ne s'agglomère plus en globule, mais migre vers la particule pour alimenter un lobe dont la taille augmente progressivement (Figure IV-15 [20], [21] et [22]). Cette configuration avec les deux lobes est dite « dipolaire ». Elle est quasi stable et la suite de la combustion est relativement stationnaire. La dernière partie visible de la goutte d'aluminium exposée à l'oxydant a la forme d'un anneau et est située entre les deux lobes. Cette zone se réduit à mesure que les lobes d'alumine se développent (Figure IV-15 [22], [23] et [24]). Ces lobes grandissent progressivement, alimentés par la combustion, et tendent à recouvrir complètement la particule. Enfin, lorsque la zone interstitielle devient très petite, les lobes finissent par entrer en contact (Figure IV-15 [24]) puis par fusionner pour recouvrir presque complètement la goutte d'aluminium (Figure IV-15 [25]). Une dernière zone où l'aluminium est encore exposé à l'oxydant reste

visible. Après cela, l'alumine empêche presque totalement la vaporisation de l'aluminium, ce qui conduit à une extinction complète de la particule. Une augmentation tardive de l'intensité lumineuse est toujours observée durant l'extinction (Figure IV-16 vers 6 ms). Elle est attribuée au caractère exothermique de la transition de l'alumine de l'état liquide à l'état solide. Il s'agit plus précisément du phénomène de surfusion, qui est un phénomène particulier du passage de l'état liquide à solide (cf. II.2.1.3). Cet instant particulier a été sélectionné pour identifier la fin de la combustion. La particule d'aluminium est donc encapsulée avant d'avoir intégralement brûlé, d'où le terme utilisé ici de combustion incomplète.

IV.1.3.2. Impact de l'oxydant : mélange H₂O/CO₂

Dans cette section, la combustion est réalisée dans un mélange de dioxyde de carbone et de vapeur d'eau. La Figure IV-17 illustre trois séquences avec différentes proportions volumiques de CO₂ et d'eau : la première (a) avec un ratio CO₂/H₂O de 25/75, la seconde (b) avec un ratio de 50/50 et la dernière (c) avec un ratio de 75/25. Les phénomènes présentés sur la Figure IV-17 sont représentatifs de ceux intervenant dans la grande majorité des cas pour chaque mélange, sur la dizaine d'essais réalisés par mélanges. Des contraintes sur la température admissible par le dispositif expérimental nous obligent à restreindre ces études à la seule pression atmosphérique. Les particules utilisées durant cette étude ont un diamètre compris entre 22 à 73 µm. La température dans l'enceinte varie entre 396 et 414 K selon les expériences. Les étapes de la phénoménologie seront identifiées, puis comparées aux cas de combustion déjà présentés pour insister sur les similitudes ou les différences. Il sera ensuite possible d'estimer, de manière relative, la participation respective des deux oxydants durant le processus global (Figure IV-17).

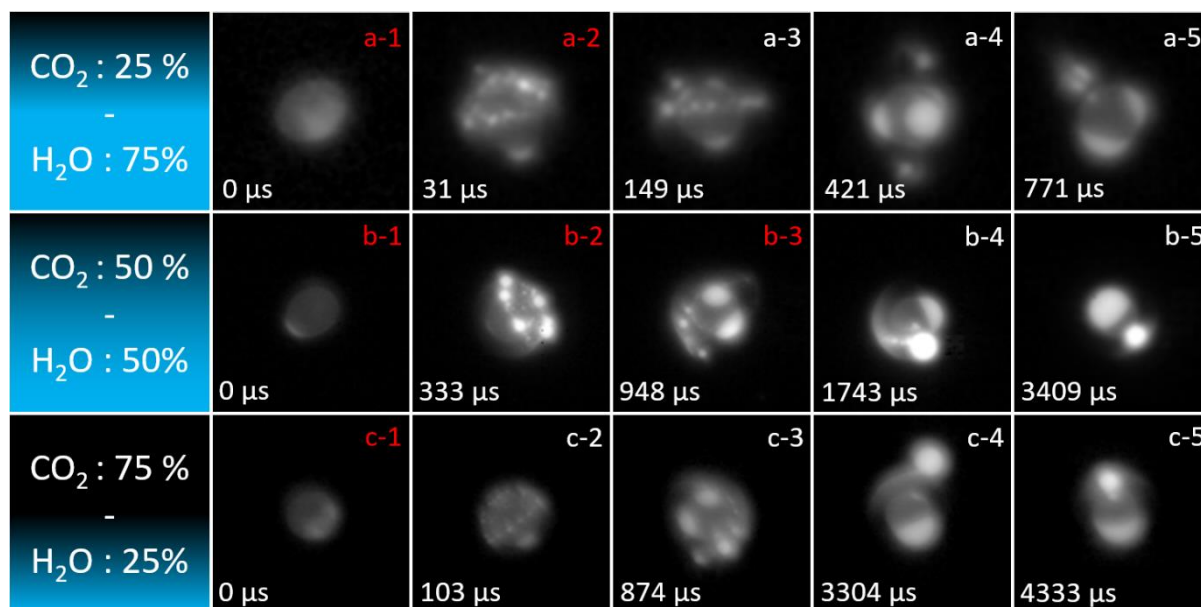


Figure IV-17— Images extraites de plusieurs séquences montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée d'un mélange de vapeur d'eau et de CO₂. Toutes les séquences ont été réalisées à 1 bar. (a) 25/75 en proportion CO₂/H₂O, D₀ = 44 µm, température ambiante de 414 K, séquence enregistrée à 230 000 ips avec un temps d'exposition de 2 µs. (b) 50/50 en proportion CO₂/H₂O, D₀ = 64 µm, température ambiante de 397 K, séquence enregistrée à 39 000 ips avec un temps d'exposition de 5 µs. (c) 75/25 en proportion CO₂/H₂O, D₀ = 73 µm, température ambiante de 406 K, séquence enregistrée à 78 000 ips avec un temps d'exposition de 2 µs. Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

Le processus de chauffage et d'initiation est identique pour les trois mélanges : la couche d'oxyde se rétracte pour former un lobe à la surface de la goutte (Figure IV-17 [a-1], [b-1] et [c-1]). La rétractation de l'alumine est rapide, comme dans la vapeur d'eau pure (Figure IV-15 [1]). Pour rappel, la rétractation est plus lente dans le dioxyde de carbone (Figure IV-11 [2/3]). Ensuite, une condensation d'oxyde est visible près de la goutte. Ces nanoparticules se rassemblent pour former des globules à l'opposé du lobe. Ce phénomène est identifiable dans l'ensemble des configurations étudiées dans cette section (Figure IV-17 [a-2], [b-2] et [c-2]). Il apparaît plus fréquemment dans la vapeur d'eau (Figure IV-15 [2]) que dans le CO_2 .

Les interactions entre le globule et la goutte sont identiques à celles observées dans une atmosphère de vapeur d'eau pure. Il est possible de retrouver les deux phénomènes principaux que sont la collision puis la formation d'une couronne d'alumine (Figure IV-17 [a-3], [b-3] et [c-3]). La présence de plusieurs lobes est également remarquée pour les trois mélanges différents (Figure IV-17 [a-4], [b-3] et [c-3]). Les lobes à la surface de la goutte se rassemblent pour être plus stables, ce qui oriente la production d'alumine à l'opposé du lobe créé.

Une différence est identifiable pour le mélange contenant le moins de dioxyde de carbone : la production d'alumine est réduite et les lobes commencent à encapsuler la goutte (Figure IV-17 [a-5]), comme durant les essais dans la vapeur d'eau. Pour les deux autres atmosphères, l'alumine produite se condense à l'opposé du lobe pour former un nuage (Figure IV-17 [b-4] et [c-4]). Celui-ci n'a pas été observé durant les réactions dans la vapeur d'eau. Le globule est alimenté par cette zone de condensation et a tendance à venir se stabiliser au centre du nuage (Figure IV-17 [b-5] et [c-5]). La particule étant perturbée par l'asymétrie provoquée par le lobe, elle sort du champ de vision de la caméra. Les signaux des PM nous permettent d'observer que la fin de la combustion est similaire à celle décrite dans la vapeur d'eau. Toutefois, il est également possible qu'aient lieu des réactions surfaciques similaires à celles observées à la fin des essais dans une atmosphère composée uniquement de CO_2 . Les diagnostics actuels ne permettent pas de vérifier si ces réactions ont lieu. Une étude des résidus de combustion pourrait potentiellement confirmer ou réfuter ce postulat.

Suite à l'analyse des séquences d'images, une conclusion sur la contribution des oxydants peut être faite. Premièrement, la phénoménologie mise en jeu pour les mélanges se rapproche de celle observée pour la vapeur d'eau, tant que le pourcentage volumique d'eau dans le mélange est d'au moins 25 %. Une étude complémentaire pourrait être menée pour déterminer plus précisément la limite à partir de laquelle l'effet de l'eau devient prépondérant. La vitesse de rétractation de la couche d'alumine diminue lorsque le pourcentage de CO_2 augmente. Cette observation rappelle les travaux de thèse de Sarou-Kanian (2003)^[32] qui note une augmentation de 50 % du temps de liquéfaction de l'enveloppe d'alumine pour une augmentation de 20 à 90 % de CO_2 dans le mélange. La présence d'un nuage d'alumine condensée montre aussi l'influence du CO_2 sur la réaction, car il n'est pas observé durant les expériences de combustion dans de la vapeur d'eau. Une potentielle explication de ce phénomène est l'augmentation de la température de la flamme avec le taux de CO_2 dans le mélange, et donc une moindre propension à favoriser la condensation. D'après le code de calcul CEA-NASA (McBride (2002)^[106]), la température de flamme adiabatique est respectivement de 3484, 3510 et 3547 K pour des mélanges $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ de proportions volumiques respectives 25/75, 50/50 et 75/25. De plus, la présence d'hydrogène près de la

goutte lors de la combustion avec de la vapeur d'eau modifie notablement la diffusivité massique du mélange gazeux. Les nanoparticules d'alumine produites peuvent donc être évacuées rapidement de cette zone, évitant ainsi la formation d'une zone dense.

En conclusion, la vapeur d'eau semble piloter les phénomènes rencontrés durant la combustion dans des mélanges contenant du CO_2 et de l' H_2O . Dans la section suivante, il va être démontré que le temps de combustion est également impacté par la composition de l'atmosphère gazeuse, comme le montre Sarou-Kanian (2005)^[66].

IV.1.4. Réaction de l'aluminium dans une atmosphère humide représentative de produits de détonation

Dans cette partie, un mélange type, dont la composition se rapproche de celle de produits de détonation d'un explosif, va être étudié. Les proportions ciblées pour cette étude sont basées sur le résultat d'un calcul de la détente isentropique de produits de détonation d'un explosif à partir de l'état d'explosion à volume constant réalisé avec le code de thermochimie SIAME (Osmont (2018)^[97]). L'explosif considéré est le HMX (High Melting point eXplosive). Seules les espèces majoritaires, qui sont CO_2 , N_2 et H_2O , seront considérées pour les essais. Les calculs fournissent des résultats en fractions volumiques qui sont compilés dans le Tableau IV-1. La composition volumique retenue pour l'essai est de 27 % de CO_2 , 48 % de N_2 et 25 % d' H_2O (Tableau IV-1). Pour conserver l'état gazeux de la vapeur d'eau, une quinzaine d'essais a été réalisée entre 409 et 417 K et à une pression de 1 bar. La Figure IV-18 illustre une séquence montrant la combustion dans cette ambiance gazeuse. Cette section a pour objectif de mettre en exergue les particularités de la combustion dans cette ambiance gazeuse pour identifier les espèces influentes.

N_2	0,484
CO_2	0,265
H_2O	0,231
CH_4	0,020

Tableau IV-1 — Composition de la zone de postcombustion d'une explosion, en ne considérant que les éléments dont la fraction volumique est supérieure à 10^{-3} .

Premièrement, la phase d'initiation est identique à celle observée dans la vapeur d'eau. La couche d'alumine se trouvant sur la particule d'aluminium se liquéfie pour se rassembler en un lobe à la surface de la goutte d'aluminium (Figure IV-18 [1]). Toutefois, il est possible d'observer une différence entre la combustion dans la vapeur d'eau pure et celle-ci. Une partie de la couche initiale d'alumine est éjectée de la surface de la goutte d'aluminium pour ensuite se disperser en nuage autour de celle-ci (Figure IV-18 [1/2]). Juste après, le nuage d'alumine prend la forme d'un halo sphérique autour de la goutte (Figure IV-18 [2]). Ensuite, la flamme de diffusion s'installe autour de la goutte (Figure IV-18 [3]), comme dans les autres ambiances gazeuses. Cependant, deux structures en forme d'entonnoir sont identifiables dans le nuage (Figure IV-18 [3]) : des échanges entre le nuage et la surface de la goutte sont probables. Il est important de noter que le laser est éteint avant la formation de ce nuage, comme en atteste le suivi temporel de l'alimentation du laser sur la Figure IV-19.

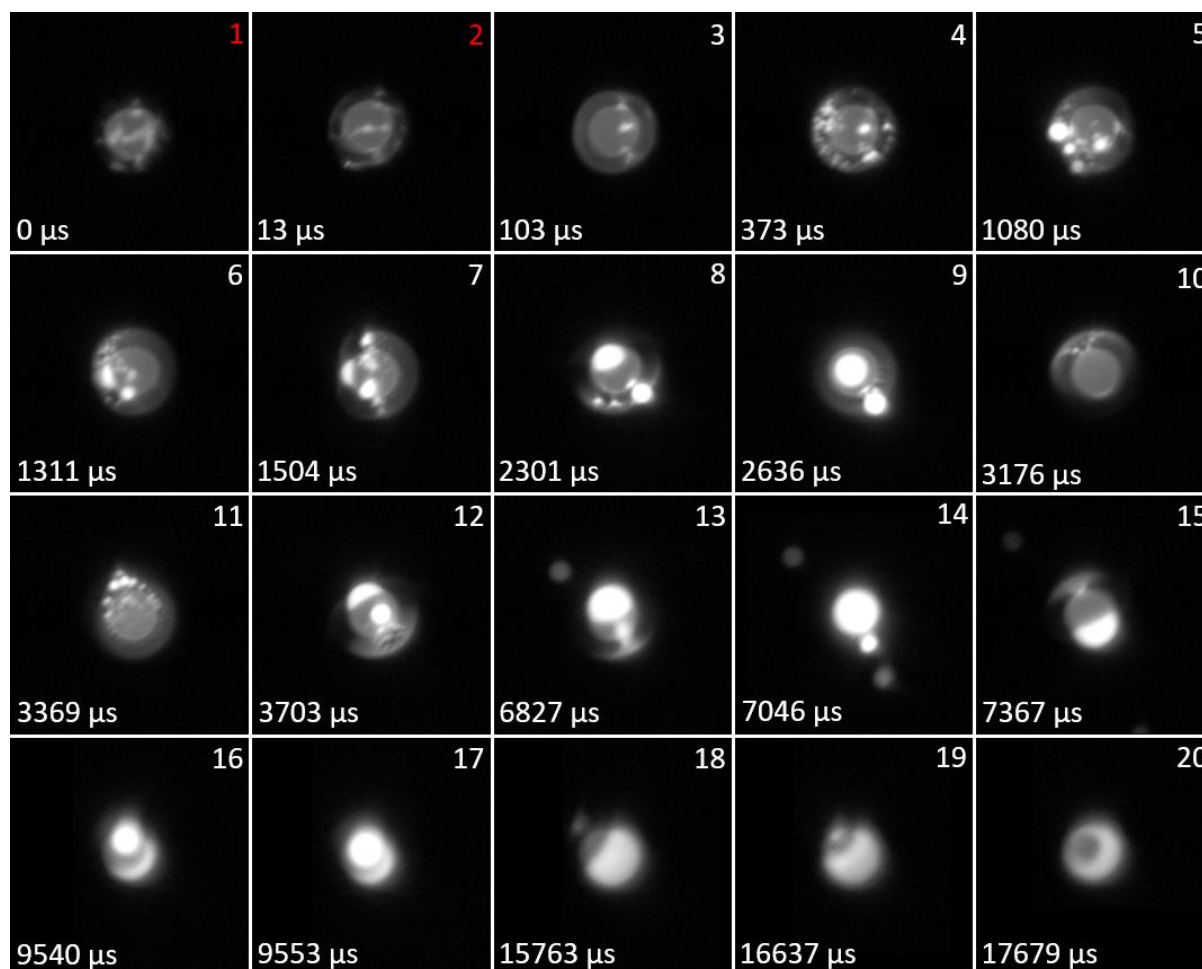


Figure IV-18 — Images extraites d'une séquence montrant la combustion d'une particule d'Al dans une atmosphère composée de 27 % de dioxyde de carbone, 48 % de diazote et 25 % de vapeur d'eau, à 1 bar et 409 K. ($D_0 = 82 \mu\text{m}$, séquence capturée à 78 000 ips et avec un temps d'exposition de 12 μs). Les numéros en rouge correspondent aux instants où le laser est encore alimenté.

Comme pour la combustion dans la vapeur d'eau, la flamme est très proche de la goutte (rapport D_f/D_g inférieur à 2) et l'alumine se concentre en globules qui restent en « orbite » autour de la goutte (Figure IV-18 [4]). L'alumine ainsi formée se concentre en un minimum de globules qui migrent à l'opposé du lobe, car la production d'alumine y est la plus importante (Figure IV-18 [5]). L'augmentation de la taille du globule induit une collision avec la goutte (Figure IV-18 [5/6/7]) comme cela a déjà été identifié dans la vapeur d'eau (Figure IV-15). Les résidus de l'impact se dispersent autour de la goutte en formant une « couronne » pour trouver une position préférentielle dans un plan perpendiculaire à l'axe défini par le centre de la goutte et le nouveau lobe (Figure IV-18 [7]).

À la suite des différents phénomènes, la goutte tourne sur elle-même induisant les oscillations observées sur la Figure IV-19 entre les points 8 et 17. Les creux d'intensité lumineuse (Figure IV-19 [9]) correspondent aux instants où le lobe est caché par la goutte et donc visible du côté de la caméra (Figure IV-18 [10]) et inversement (Figure IV-19 [11]). Cette rotation est initiée par le rassemblement des lobes à la surface de la goutte. Ils se déplacent pour ne former qu'un unique lobe ce qui permet de minimiser l'énergie de tension superficielle globale du système. À la suite de ces mouvements de lobes, le nuage d'alumine se déplace

et se positionne à l'opposé de la goutte, entraînant le globule en rotation (Figure IV-18 [9/10/11/12]). Ce phénomène est observable durant les combustions dans les mélanges $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ avec une concentration en dioxyde de carbone supérieure à 50 % (Figure IV-17 [b] et [c]).

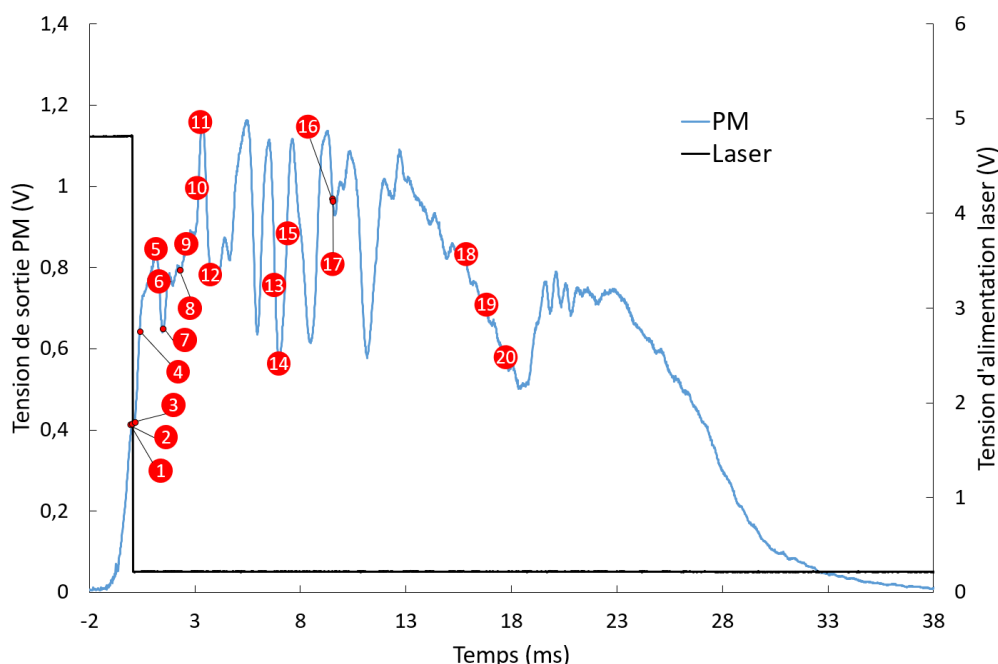


Figure IV-19— Suivi de l'intensité lumineuse des PM ainsi que de l'alimentation du laser en fonction du temps pour la combustion illustrée par la Figure IV-18. Les numéros correspondent aux indices des images de la Figure IV-18.

Certains globules peuvent être éjectés de « l'orbite » de la goutte, entraînés par la force centrifuge. Les globules éjectés s'éloignent progressivement en refroidissant du fait de leur éloignement de la goutte, et donc de la zone de réaction. Ceci est visible par la diminution de leur intensité lumineuse (Figure IV-18 [13/14/15]). Après plusieurs cycles, la rotation de la goutte, et donc du globule, est ralentie, provoquant une nouvelle interaction entre ces deux éléments. Le globule devient alors un nouveau lobe à la surface de la goutte (Figure IV-18 [16/17]). Tout de suite après, les deux lobes se rassemblent, et un nouveau globule se forme à l'opposé de la couche d'oxyde qui grandit progressivement. La réaction continue, avec la formation de plus petits globules dont l'interaction avec la goutte forme de nouveaux lobes qui par la suite, coalescent avec le plus grand (Figure IV-18 [18/19]).

La goutte se retrouve progressivement entourée d'oxyde (Figure IV-18 [20]), comme dans la vapeur d'eau (Figure IV-15 [25]). Toutefois, au vu du suivi de l'intensité lumineuse des PM (Figure IV-19), la réaction n'est pas terminée : on constate une augmentation du signal des PM suite au recouvrement par le lobe. Il pourrait s'agir de réactions surfaciques avec le CO_2 . Ces réactions sont identifiées par Rossi et al. (2001)^[103] en fin de combustion dans le CO_2 pur. Elles peuvent être provoquées par la transition de phase dans un système Al-O-C, en conséquence de la diminution de la température induite par le recouvrement de la particule. Il est alors probable qu'une grande partie de l'aluminium reste imbrûlé à la fin de la réaction.

En conclusion, les similitudes observées attestent que la vapeur d'eau joue un rôle prépondérant lors de la combustion. Seule la condensation de l'alumine à l'opposé du lobe

diffère. Ce nuage d'alumine est visible uniquement durant les combustions dans les mélanges contenant plus de 50 % de CO_2 . La composition étudiée ici étant de 27 % de CO_2 et 25 % de H_2O et le reste en N_2 , cela correspond à une proportion de 52 % de dioxyde de carbone contre 48 % de vapeur d'eau (en mettant de côté l'azote inerte). Les phénomènes observés sont donc très proches de ceux identifiés dans le mélange $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ avec une proportion de 50/50, et il sera intéressant de comparer les temps de combustion ainsi que les températures de ces différentes réactions. L'impact du CO_2 sur la combustion est aussi visible durant la fin de la réaction, avec la présence de plusieurs réactions surfaciques. Ces dernières n'ont pas été observées durant la combustion dans la vapeur d'eau pure.

IV.2. Mesure de la température

Dans cette partie, nous nous intéressons aux températures mises en jeu durant la réaction pour les différents environnements gazeux sélectionnés. L'ensemble des ambiances étudiées dans la section IV.1 n'est pas traité dans cette partie : seule la combustion dans l'air est détaillée. Les ambiances carbonées et humides ne sont pas étudiées par manque de données.

IV.2.1. Température moyenne de la phase condensée

Cette section présente les résultats obtenus avec la méthode de pyrométrie multispectrale utilisant les photomultiplicateurs. Cette méthode est décrite dans la partie III.6.3 et permet un suivi temporel de la température de la phase condensée. Les températures indiquées dans cette section correspondent à une moyenne de trois températures, chacune étant obtenue en considérant 2 photomultiplicateurs distincts. Les barres d'erreur indiquées dans la suite correspondent à la dispersion entre ces 3 températures. De plus, chaque température correspond à la moyenne des températures des différentes phases condensées (goutte d'aluminium, lobe/globule d'alumine, nanoparticules d'alumine), toutes étant à des températures différentes. À noter que la taille des nanoparticules d'alumine produites dans la zone de réaction influe notablement sur la détermination de la température, du fait de l'évolution de l'émissivité avec la longueur d'onde.

IV.2.1.1. Combustion de l'aluminium dans l'air à basse pression

La Figure IV-20 présente un cas typique de suivi de la température durant la combustion d'une particule d'aluminium dans l'air. Il est possible d'observer sur cette figure l'évolution de la tension de sortie de l'un des photomultiplicateurs. Cela permet de relier les températures mesurées avec certains phénomènes déjà identifiés dans la section IV.1.

La température augmente brusquement en début de réaction du fait de l'emballement thermique. Elle atteint un plateau qui correspond à la phase symétrique de la combustion. La température mesurée est alors d'environ 3250 K. La phase de combustion symétrique est identifiable par la diminution progressive de la tension de sortie des PM entre 5 et 20 ms, ce qui est commun aux combustions dans l'air à 1 bar (cf. IV.1.1.1). La baisse progressive de rayonnement observée est liée à la diminution du diamètre de la goutte conjointement à celle du diamètre de flamme. Durant cette phase symétrique, la température baisse

progressivement jusqu'à 3125 K. Cette diminution peut être expliquée par celle de la température de la goutte d'aluminium avec son diamètre. En effet, la réduction du diamètre de la goutte favorise les transferts diffusifs des espèces gazeuses vers la surface de la goutte. Une conséquence est la baisse de la pression partielle d'aluminium gazeux en surface qui s'accompagne d'une diminution de la température de la goutte liquide. Il en résulte une diminution du flux de Stefan, ce qui devrait avoir pour conséquence un rapprochement de la zone de flamme. Le rapport entre le diamètre de flamme et de goutte n'est pas facile à évaluer. Nous avons cependant pu montrer que ce rapport était plutôt constant. Le rayonnement des nanoparticules est utilisé comme traceur pour identifier le diamètre de flamme. C'est cependant encore trop imprécis, et ce dernier point serait à améliorer pour de nouveaux travaux sur le sujet. La contribution de la goutte, plus froide que les autres phases condensées, au rayonnement total perçu par les PM augmente, ce qui a pour effet de baisser la température moyenne du système {goutte + lobe + nanoparticules}. Cette baisse est accentuée par celle de la température de la goutte expliquée précédemment.

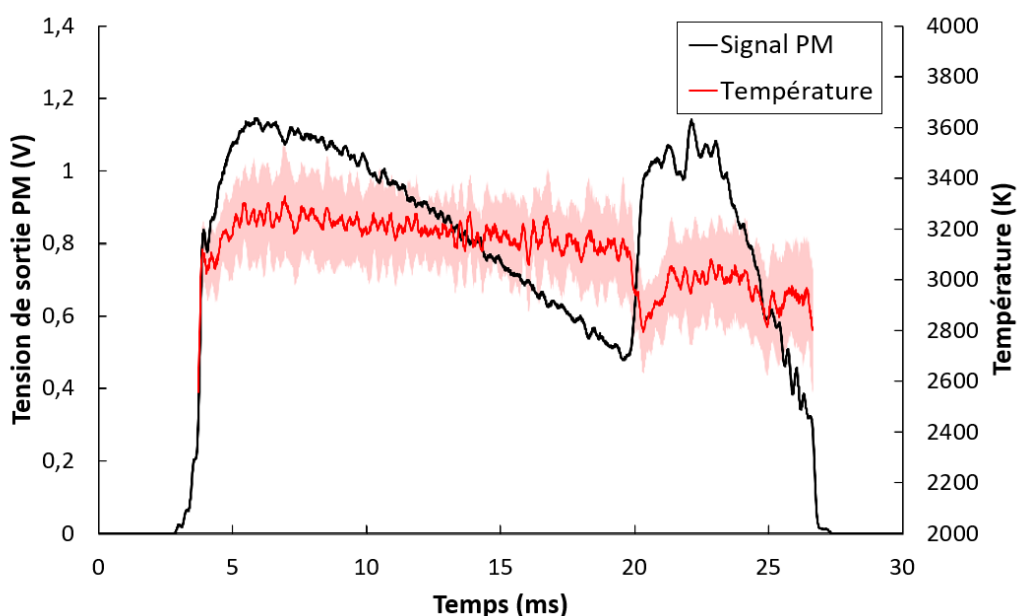


Figure IV-20 — Suivi temporel de la température mesurée par la méthode de pyrométrie multispectrale lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans une atmosphère d'air à pression atmosphérique. La courbe noire correspond à l'intensité lumineuse du signal enregistré par un photomultiplicateur. La courbe rouge représente l'évolution de la température moyenne et le fond rouge indique l'enveloppe d'incertitude.

La fin de la phase symétrique est marquée par une forte augmentation du rayonnement (après 20 ms). Le début de la phase asymétrique s'accompagne d'une chute de la température. À cet instant, la surface de la goutte est rapidement recouverte par l'alumine en équilibre thermique avec la goutte. En effet, cet ensemble peut être considéré comme thermiquement mince. Seule une fraction de la surface de la goutte reste exposée à l'oxydant gazeux, ce qui diminue fortement le débit global d'aluminium vapeur produit et donc la réaction. La contribution de la goutte au rayonnement total perçu par les PM augmente fortement, expliquant la baisse brutale de température. La température se stabilise ensuite autour de 3025 K pendant une période comprise entre 21 et 24 ms (Figure IV-20). Ensuite, la tension de sortie des PM baisse sous la valeur seuil nécessaire à une évaluation fiable de la température. L'étude de Dreizin (1996)^[84] indique des températures plus faibles que celles que nous obtenons : environ 3000 K durant la phase de combustion symétrique et des températures

variant entre 2800 à 2700 K pour la phase asymétrique. Toutefois, cette étude identifie également les 2 paliers caractéristiques des deux phases, symétrique et asymétrique, visibles sur la Figure IV-20. Dans une autre étude, Dreizin (1999)^[67] identifie une nouvelle fois les 2 paliers de température durant la combustion de l'aluminium. Dans cette étude, les températures obtenues sont plus élevées et se rapprochent des nôtres : environ 3500 K et 3000 K pour les deux phases respectives.

L'étude de l'effet de pression est limitée, dans un premier temps, aux conditions qui permettent d'observer une phase de combustion symétrique. Cela permet de comparer des températures pour des expériences présentant des phénoménologies relativement identiques. Le phénomène 'instable' observé à 5 bar (décrit dans la partie IV.1.1.2) et les combustions à plus haute pression sont considérés en régime 'transitoire' : aucune phase symétrique n'est identifiable. La Figure IV-21 compare les températures mesurées lors des phases symétriques pour différentes pressions (1, 2,5 et 5 bar). Les températures adiabatiques correspondantes sont également indiquées. Elles ont été calculées avec deux codes différents, le code SIAME développé par le CEA (Osmont et al. (2018)^[97]) et le code CEA développé par la NASA (McBride (2002)^[106]). Les différences observées entre ces codes proviennent du nombre de produits de réaction considérés. Ils sont plus nombreux dans le code SIAME ce qui modifie sensiblement la composition à l'équilibre (au travers de réactions de dissociation) et a pour effet d'abaisser la température calculée par rapport au code CEA de la NASA. Il est important de noter que les calculs thermodynamiques supposent une richesse stœchiométrique. Ce choix semble cohérent pour représenter l'ensemble des conditions observées dans la zone de réaction, même si les variations de richesse locales peuvent notablement modifier les températures mises en jeu. En d'autres termes, les températures calculées auraient été différentes en considérant une autre richesse globale et les comparaisons faites avec les mesures expérimentales doivent toujours être nuancées. Une évolution de la température de vaporisation de l'aluminium en fonction de la pression est aussi représentée sur la figure. Elle est extraite des travaux de Sundaram et al. (2015)^[107].

La température mesurée expérimentalement est inférieure à la température adiabatique calculée, ce qui paraît relativement intuitif du fait des pertes thermiques radiatives possibles. La température de vaporisation de l'aluminium correspond, en première approche, à la température de la goutte d'aluminium qui participe au rayonnement total du système {goutte + lobe/globule + nanoparticules}. La température mesurée est légitimement bornée entre cette dernière et la température adiabatique de flamme, ce qui est le cas à 1 et 2,5 bar. Les températures mesurées à 2,5 bar sont en moyenne plus proches de la température de flamme adiabatique. La concentration en nanoparticules autour de la goutte augmente avec la pression, limitant la contribution de la goutte d'aluminium (cf. Figure IV-5). Cela implique donc une plus forte contribution de l'alumine dans la température moyenne mesurée. Toutefois, sur la Figure IV-21, la température mesurée durant la phase symétrique de la combustion à 5 bar est plus grande que la température adiabatique de flamme à cette pression. Pour rappel, les phénomènes à 5 bar sont divisés en 3 groupes. Celui présenté sur la figure correspond à la présence d'un globule qui orbite au cours de la phase symétrique. Ce globule est supposé être à une température proche de celle de la flamme puisqu'il se situe dans la zone de réaction. Comme indiqué précédemment, l'émissivité de l'alumine dépend de la température et du diamètre des particules. La présence de ce globule de diamètre micrométrique modifie nettement le rayonnement du système, ce à quoi nous attribuons la surestimation observée. Les autres phénomènes à 5 bar étant instables, ils ne sont pas

représentés sur la Figure IV-21. Les combustions ne présentant ni globule ni lobe ne sont pas exploitables. Il pourrait être intéressant dans une prochaine étude de compléter ces données en apportant des valeurs durant cette phénoménologie particulière.

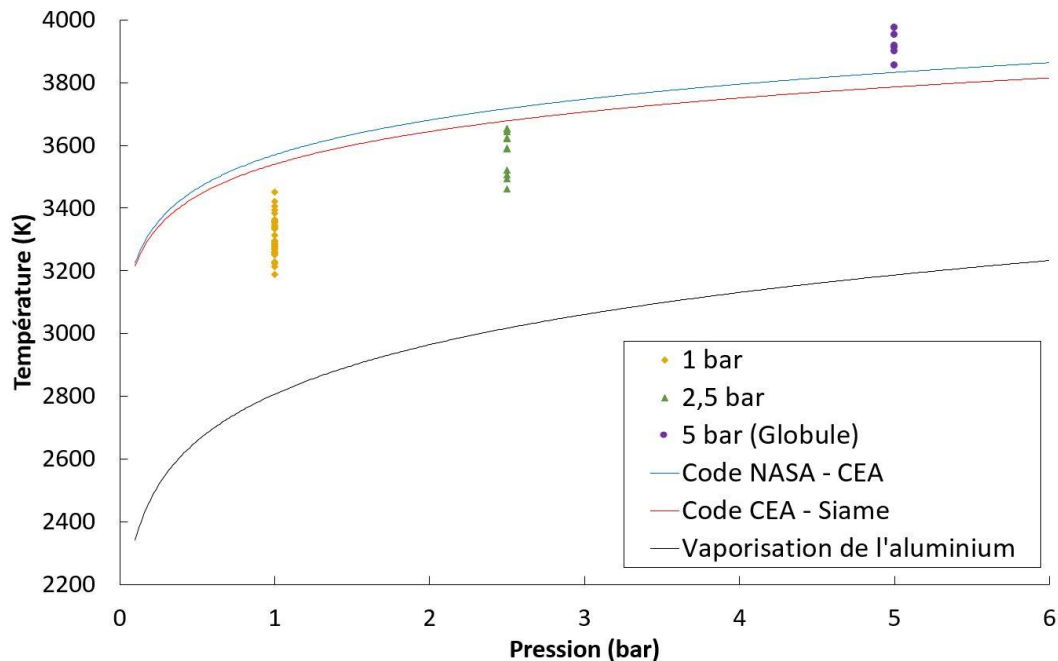


Figure IV-21 — Influence de la pression sur la température moyenne lors de la phase symétrique d'une combustion dans l'air. Les courbes bleue et rouge représentent l'évolution de la température de flamme adiabatique en fonction de la pression. Elles sont respectivement calculées avec les codes NASA-CEA (McBride (2002)^[106]) et CEA-SIAME (Osmont et al. (2018)^[97]). La courbe noire représente l'évolution de la température de vaporisation de l'aluminium en fonction de la pression (Sundaram et al. (2015)^[107]). Calculs réalisés pour des mélanges stœchiométriques.

La température moyenne est de 3300 K à 1 bar (moyenne sur 35 essais), 3580 K à 2,5 bar (moyenne sur 20 essais) et de 3930 K à 5 bar (moyenne sur 7 essais). Il est intéressant de noter que la taille initiale de la particule n'influence pas la température, quelle que soit la pression (Figure IV-22). On constate que le rapport entre le diamètre de la flamme et celui de la goutte augmente linéairement avec la température mesurée (Figure IV-23), ce qui est tout à fait cohérent. Plus la température est élevée, plus le débit d'aluminium vapeur augmente, avec comme conséquence une position d'équilibre de la zone de réaction plus éloignée de la goutte.

IV.2.1.2. Combustion de l'aluminium dans l'air à haute pression

La température mesurée pour la haute pression est celle de la phase instable de la combustion. Si nous revenons au cas à 1 bar, la Figure IV-20 montre que durant cette phase un deuxième palier de température est identifiable. Il est toujours plus bas que celui mesuré lors du premier palier de la phase symétrique, si la combustion en comporte une. Pour les combustions dans l'air à pression atmosphérique, la différence est de $162,9 \pm 36,9$ K entre les deux paliers. Dreizin décrit lui aussi, dans ses études (Dreizin (1996)^[84] Dreizin (1999)^[67]), un second palier de température durant la seconde phase où des instabilités se créent. Dans ses études, il mesure une température entre 2800 et 3100 K, qui est proche de la moyenne de 3130 K obtenue dans notre étude.

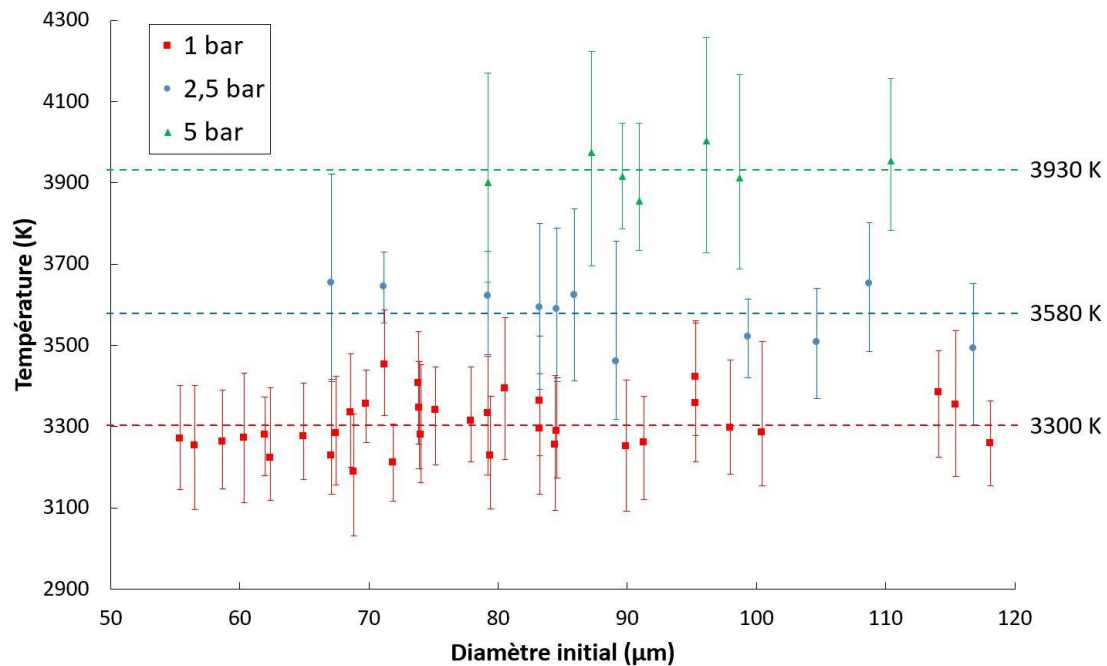


Figure IV-22 — Compilation des températures moyennes obtenue lors de la phase symétrique de la combustion de particules d'aluminium dans l'air. Les droites rouge, bleu et verte en pointillé représentent respectivement la moyenne de tous les points à 1, 2,5 et 5 bar. Les barres d'erreurs correspondent aux températures maximales et minimales atteintes au cours de la phase symétrique.

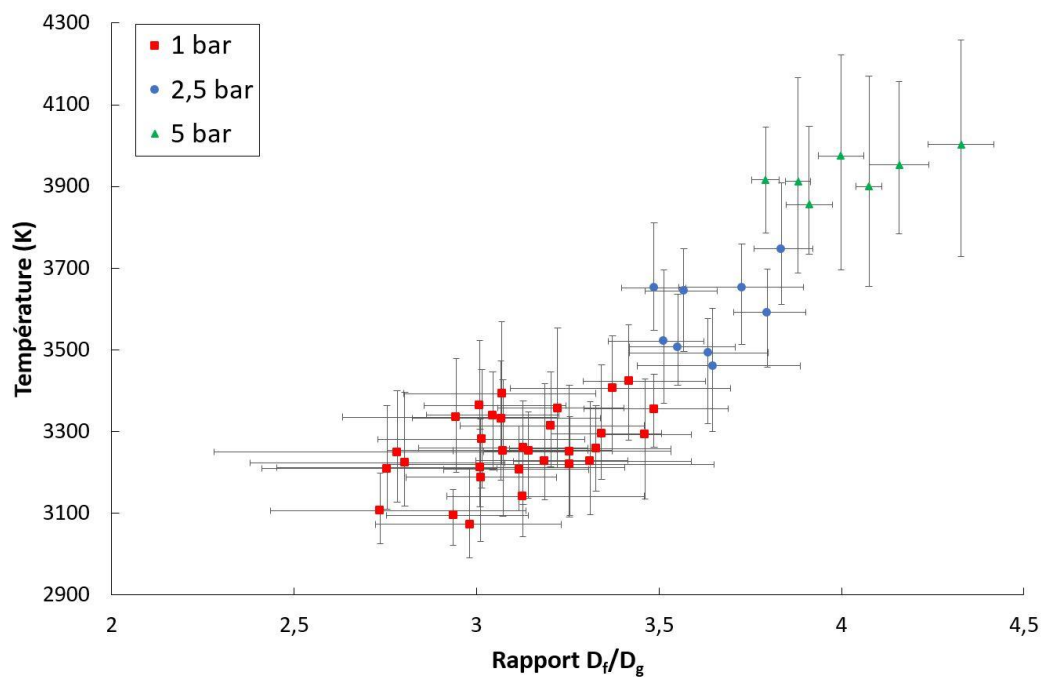


Figure IV-23 — Corrélation entre la moyenne du rapport des diamètres flamme/goutte et la moyenne de la température durant la phase symétrique. Les barres d'erreurs verticales et horizontales sont respectivement les températures et les rapports D_f/D_g maximums et minimums relevés au cours de la phase symétrique.

Les températures mesurées durant les combustions réalisées à 25 et 50 bar peuvent alors être comparées entre elles ainsi qu'à celle de la phase asymétrique à 1 bar. Les températures à 25 et 50 bar sont mesurées lors de palier de température identifié sur le suivi de température, lorsque cela est possible. Par exemple, la Figure IV-24 représente des

évolutions typiques d'une combustion d'aluminium dans ces conditions. Le suivi de l'intensité lumineuse illustre qu'aucune phase symétrique n'est présente et donc que la température est mesurée durant une phase d'instabilité. La Figure IV-25 permet de comparer les températures mesurées durant la phase asymétrique à 1 bar et les périodes d'instabilités à 25 et 50 bar. Les températures adiabatiques de flamme calculées avec le code NASA-CEA (McBride (2002)^[106]) et le code CEA-SIAME (Osmont et al. (2018)^[97]) sont également indiquées tout comme l'évolution de la température de vaporisation de l'aluminium en fonction de la pression (Sundaram et al. (2015)^[107]). On rappelle que les calculs effectués supposent une richesse stœchiométrique et que la comparaison avec les résultats expérimentaux est à nuancer.

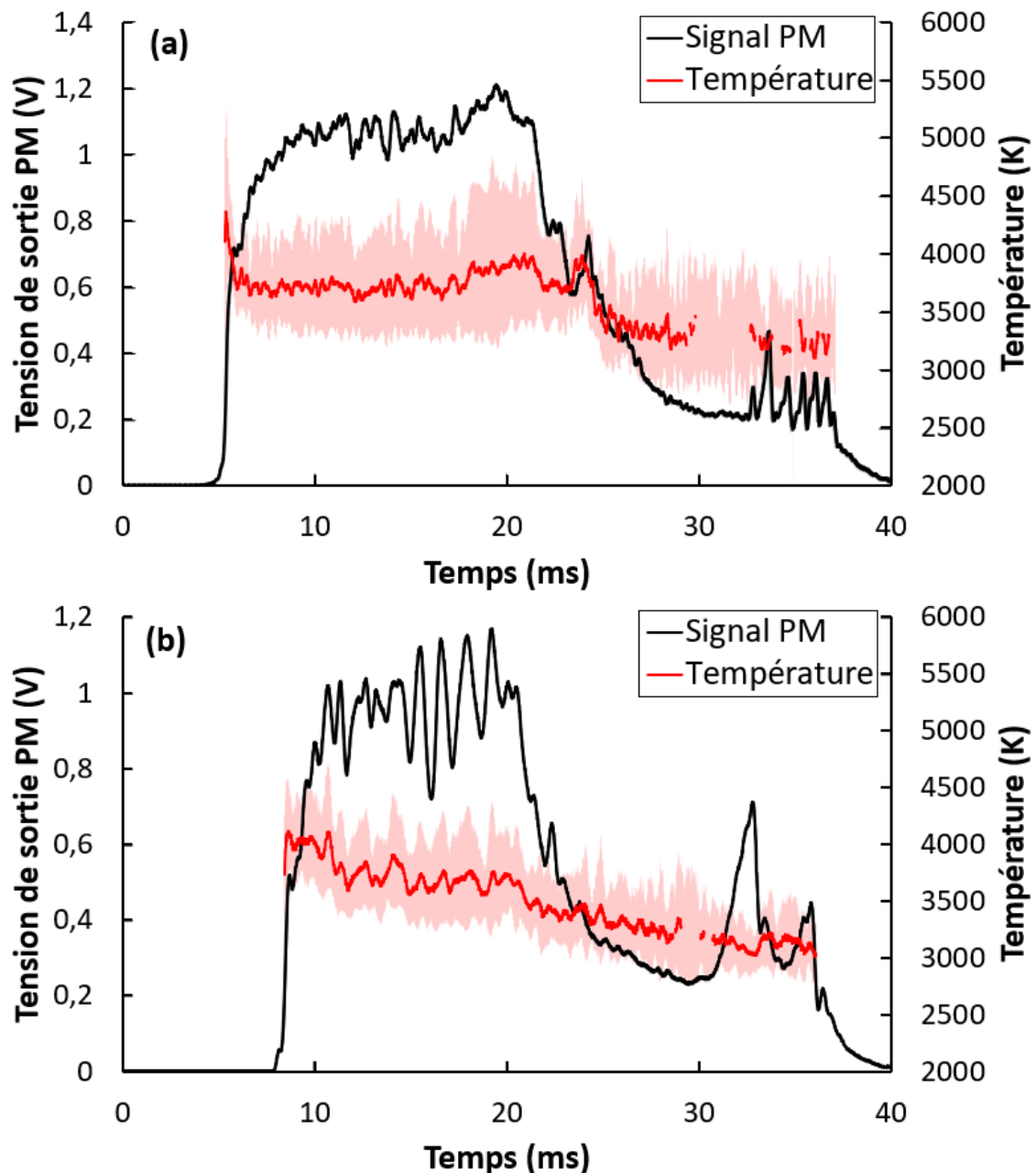


Figure IV-24 - Suivi temporel de la température mesurée par la méthode de pyrométrie multispectrale lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans une atmosphère d'air à 25 bar (a) et 50 bar (b). La courbe noire correspond à l'intensité lumineuse du signal enregistré par un photomultiplicateur. La courbe rouge représente l'évolution de la température moyenne et le fond rouge indique l'enveloppe d'incertitude.

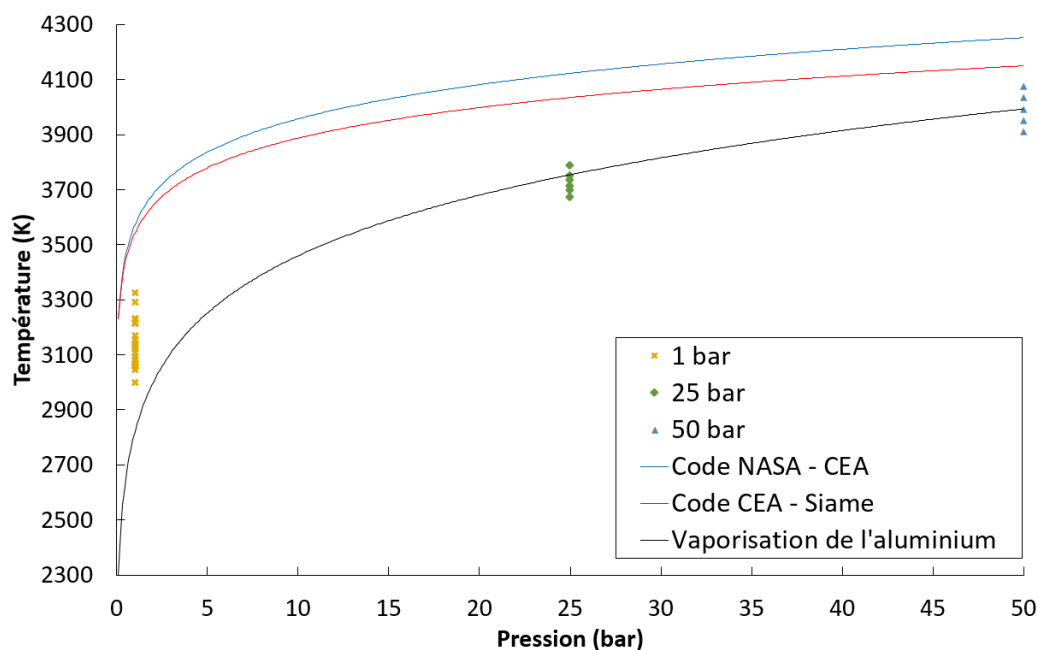


Figure IV-25 — Influence de la haute pression sur la température moyenne mise en jeu lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans l'air. Les courbes bleue et rouge représentent l'évolution de la température de flamme adiabatique en fonction de la pression (respectivement calculées avec le code NASA-CEA (McBride (2002)^[106]) et avec le code CEA-SIAME (Osmont et al. (2018)^[97])), dont les calculs sont réalisés à une richesse stœchiométrique. La courbe continue noire représente l'évolution de la température de vaporisation de l'aluminium en fonction de la pression (Sundaram et al. (2015)^[107]).

Toutes les températures mesurées durant les phases instables sont proches de la température de vaporisation de l'aluminium à la différence de celles mesurées durant la phase symétrique. La différence la plus importante entre ces deux phases est la présence d'alumine en quantité importante à la surface de la goutte. Ce lobe en contact avec l'aluminium est, par équilibre thermique, à la même température, proche de la température de vaporisation de l'aluminium. On observe également que la température chute progressivement après la phase d'instabilité pour les réactions à 25 bar, puis atteint un nouveau palier de température à environ 3250 K, lequel est inférieur à la température de vaporisation de l'aluminium à cette pression (3740 K). La réaction est pourtant maintenue durant la phase d'instabilité et il est même possible d'observer des flux gazeux émanant de la goutte lors des phénomènes de fin de combustion. Le phénomène de désorption éruptive, comme celle représentée sur la Figure IV-5, est également observable lors d'autres séquences à 25 bar. Les phénomènes d'absorption et de désorption présentés sur la Figure IV-7 sont détectables sur le suivi temporel de l'intensité lumineuse de la Figure IV-24 (a) par les fluctuations observées après 32 ms. Cette observation est également transposable aux combustions à 50 bar. Cependant, on observe que la température décroît lentement même durant la première partie de la réaction (Figure IV-24 (b)). Puis durant les phénomènes de fin de réaction vers 30 ms sur la Figure IV-24 pour les deux conditions, la température se stabilise entre 3500 et 3000 K en dessous de la température de vaporisation de l'aluminium (entre 3770 et 4070 K). Nous pouvons avancer une hypothèse pour expliquer cette particularité qui consisterait à envisager que les réactions à haute pression deviennent surfaciques au cours de la réaction. Cette dernière hypothèse paraît être la plus plausible au vu des observations faites sur la Figure IV-7 avec les phénomènes d'absorption et désorptions. En augmentant la pression, la particule transite, à partir d'un certain diamètre, d'un régime de combustion en phase gazeuse vers un régime de combustion surfacique.

IV.2.1.3. Synthèse

La température mesurée par la méthode de pyrométrie multispectrale est une approche intéressante pour suivre l'évolution de la température durant la réaction. Les résultats permettent de confirmer que le suivi de la température est représentatif des phénomènes observés, par exemple la température qui est proportionnelle au rapport entre les diamètres de flamme et de goutte. Toutefois, la valeur absolue de ces températures est à considérer avec une certaine prudence. Des différences de température notables entre les valeurs attendues par calcul, et celles obtenues dans l'expérience sont ainsi observées, par exemple, pour les combustions à 5 bar. L'information conjointe de température et de visualisation permet de fournir des éléments d'analyse de ces différences. Par exemple, le changement de taille des particules d'alumine produites lors de la réaction interfère avec la mesure de la température, comme cela fut démontré lors de la partie III.6.3. Toutefois, l'augmentation du diamètre du globule, durant la combustion à 5 bar, ne peut plus expliquer les écarts de température moyenne observés, car le diamètre du globule est de l'ordre du micromètre. Les variations d'émissivité induites par la théorie de Mie ne peuvent plus expliquer ces variations.

Dans les études futures, la mesure de la taille des particules d'alumine contenues dans le nuage pourra être une piste d'amélioration de la méthode. Avec ce paramètre supplémentaire, il sera possible de différencier les différentes contributions radiatives et de mesurer plus précisément la température.

IV.2.2. Température du monoxyde d'aluminium (AlO)

La méthode, utilisée pour mesurer la température de la phase gazeuse, est expliquée dans la partie III.6.4. Elle se base sur l'analyse, grâce à un spectromètre, de l'émission lumineuse de la particule lors de sa combustion. L'analyse des émissions des espèces condensées (goutte d'aluminium, lobe alumine, nuage de nanoparticules d'alumine) est soumise aux mêmes problématiques que la mesure de la température par pyrométrie, et ne permet pas la détermination de la température du fond continu avec exactitude. Toutefois, les émissions des espèces gazeuses produites durant la combustion sont identifiables et vont nous permettre de mesurer une température de la phase gazeuse. L'espèce observée dans ces travaux est le monoxyde d'aluminium (AlO), qui est un produit de la réaction de combustion de l'aluminium avec l'oxygène. Nous avons choisi d'étudier l'émission de l'AlO pour les longueurs d'onde d'émission comprises entre 460 et 520 nm.

Cette méthode nécessite cependant que l'AlO soit formé en quantité suffisante pour que le rayonnement de celui-ci soit détectable par le spectromètre. Les combustions n'ayant pas ou peu de flamme de diffusion ne permettront pas d'obtenir suffisamment d'émission d'AlO, et par conséquent de mesurer la température de la phase gazeuse. Ainsi, un certain nombre de conditions ne sont pas propices à cette mesure de température de phase gazeuse. Les réactions de combustion au-delà de 5 bar dans l'air étant fortement impactées par l'intensité radiative du nuage de nanoparticules d'alumine, qui englobe l'ensemble, l'émission d'AlO est absorbée par le nuage et ne peut pas être mesurée. Les combustions dans une ambiance de CO₂ pur à 1 bar (cf. IV.1.2.1), ainsi que dans les ambiances humides (cf. IV.1.3 & IV.1.4), génèrent moins d'émissions lumineuses durant leurs réactions, ce qui rend la méthode inadaptée. Les réactions dans le dioxyde de carbone en pression génèrent une émission lumineuse qui serait adaptée, par contre le caractère instationnaire de la combustion

nuit à la mesure. C'est également le cas des expériences conduites à pression élevée dans l'air.

La Figure IV-26 représente la température de la phase gazeuse mesurée en fonction du diamètre initial de la particule pour des réactions de combustion de l'aluminium dans l'air à 1 bar. Cette température est mesurée en faisant coïncider le spectre obtenu expérimentalement avec le spectre théorique calculé à la température attendue (Figure IV-27), comme expliqué dans la partie III.6.4.2. La température moyenne mesurée durant ces 6 expériences de combustion est de 3540 K avec une variation de plus ou moins 180 K. Cette température moyenne est très proche de la température de flamme adiabatique comprise entre 3540 K et 3570 K selon le code de calcul utilisé. Le monoxyde d'aluminium étant produit dans la zone de réaction, sa température est proche de celle de la température adiabatique de flamme, car il ne subit aucune perte de chaleur. On peut également constater que la température de flamme n'est pas significativement impactée par la taille initiale de la particule d'aluminium, comme cela avait été déjà observé lors des mesures utilisant la méthode de pyrométrie multispectrale.

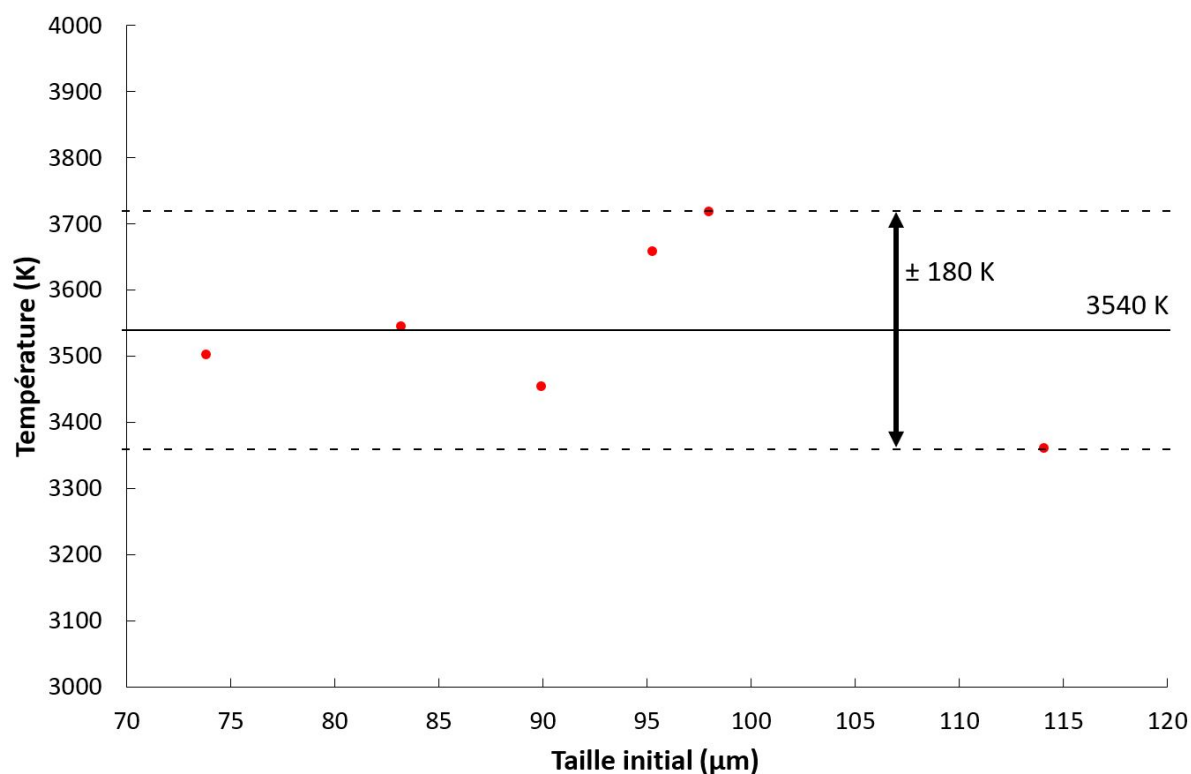


Figure IV-26 — Température de l'oxyde d'aluminium lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans l'air à 1 bar. La température moyenne, représentée par la ligne continue noire, est de 3540 ± 180 K.

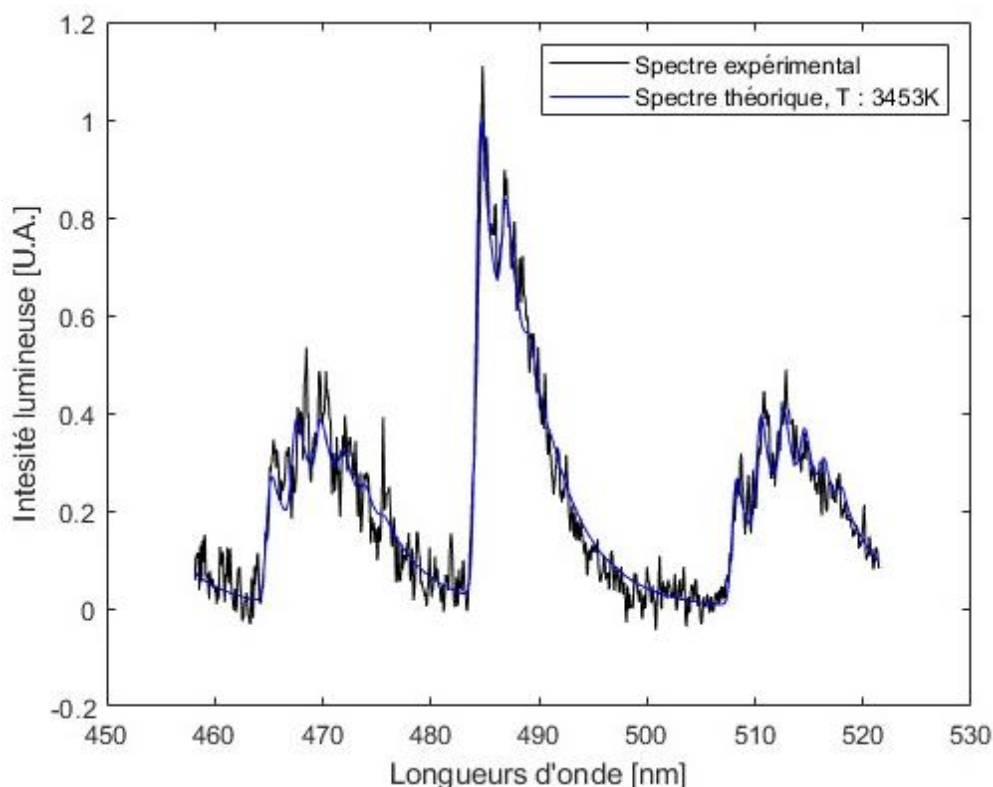


Figure IV-27 - Méthode de comparaison entre les spectres d'émission d'AIO expérimental et théorique à 3453 K. Mesure correspondant au diamètre de 90 μm de la Figure IV-26.

La Figure IV-28 compile les résultats obtenus en utilisant la même méthode pour mesurer la température de la phase gazeuse pour les essais dans l'air à 2,5 et 5 bar. Sur l'ensemble des expériences conduites dans ces conditions, il a été possible de mesurer la température de la phase gazeuse pour 3 expériences à 2,5 bar et pour 8 à 5 bar. Les moyennes de température calculées pour ces conditions sont de $3670 \pm 50 \text{ K}$ dans l'air à 2,5 bar et de $3920 \pm 210 \text{ K}$ pour les expériences à 5 bar, alors que les températures de flamme adiabatique sont comprises entre 3680 K et 3720 K pour une condition de 2,5 bar dans l'air, et 3790 K et 3830 K pour 5 bar dans l'air. Les températures mesurées à 2,5 bar sont donc très proches des températures adiabatiques. Cependant, celles mesurées à 5 bar sont légèrement supérieures à la valeur théorique. Il est intéressant de rapprocher cette observation de celle faite durant la mesure de température avec la méthode de pyrométrie pour les phénomènes de globules à 5 bar (Figure IV-21). La condition à 5 bar dans l'air étant particulière (se référer à la phénoménologie à cette pression (cf. IV.1.1.2)), nous avons été en mesure de mesurer des températures d'AIO différentes selon la phénoménologie mise en jeu (Figure IV-29). Les températures moyennes mesurées pour les trois différents phénomènes identifiés (instable, globule et sans lobe et globules) sont respectivement de 4050, 3860 et 3755 K. Les températures des deux premiers phénomènes sont surestimées par rapport à la température de la flamme adiabatique, qui est calculée entre 3790 et 3830 K. Par ailleurs, la température mesurée pour le dernier phénomène n'a pu être faite que sur une seule combustion. Il serait intéressant de réaliser d'autres mesures de ce phénomène particulier. Une des explications possibles pour la surestimation de la température (présence de globules et instable) est la présence d'alumine condensée dans la flamme (sous forme de globule ou de nuage dense). L'alumine rayonne fortement de façon isotrope et peut donc induire une augmentation de la température de la phase condensée et gazeuse dans la zone de réaction. Ce fort rayonnement

est visible lors de différentes séquences de combustion avec un globule, en particulier par la présence de la réflexion de l'émission lumineuse du globule d'alumine à la surface de la goutte d'aluminium (Figure IV-8 [b-5] et [b-6]).

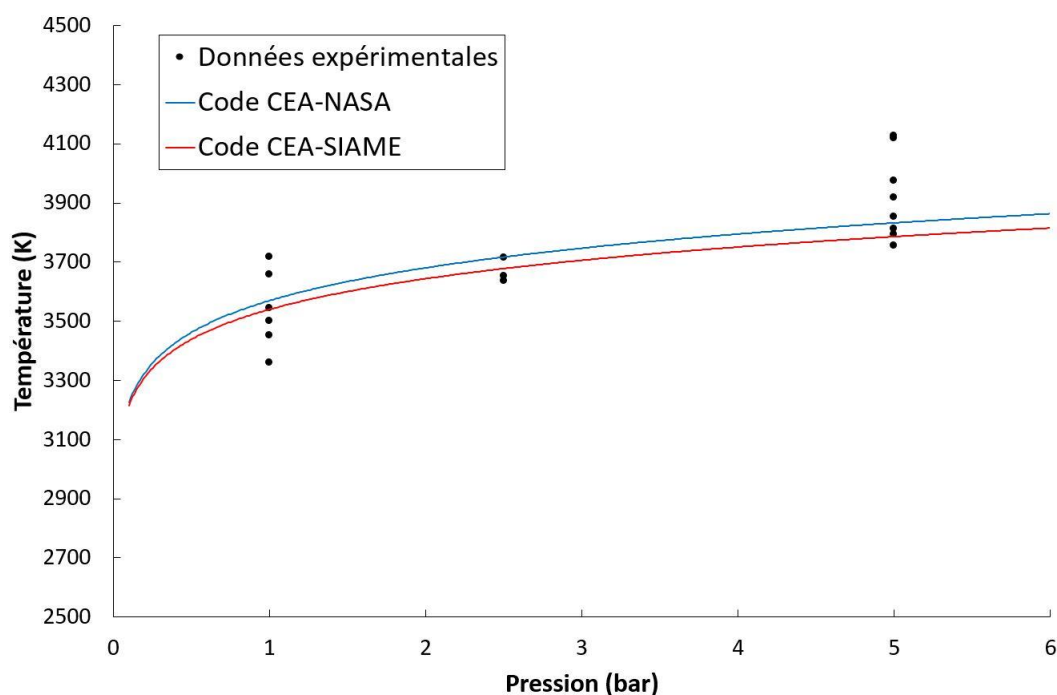


Figure IV-28 — Évolution de la température de la phase gazeuse en fonction de la pression. Les courbes bleue et rouge représentent l'évolution de la température de flamme adiabatique en fonction de la pression. Elles sont respectivement calculées avec le code NASA-CEA (McBride (2002)^[106]) et avec le code CEA-SIAME (Osmont et al. (2018)^[97]). Calculs réalisés à la stœchiométrie.

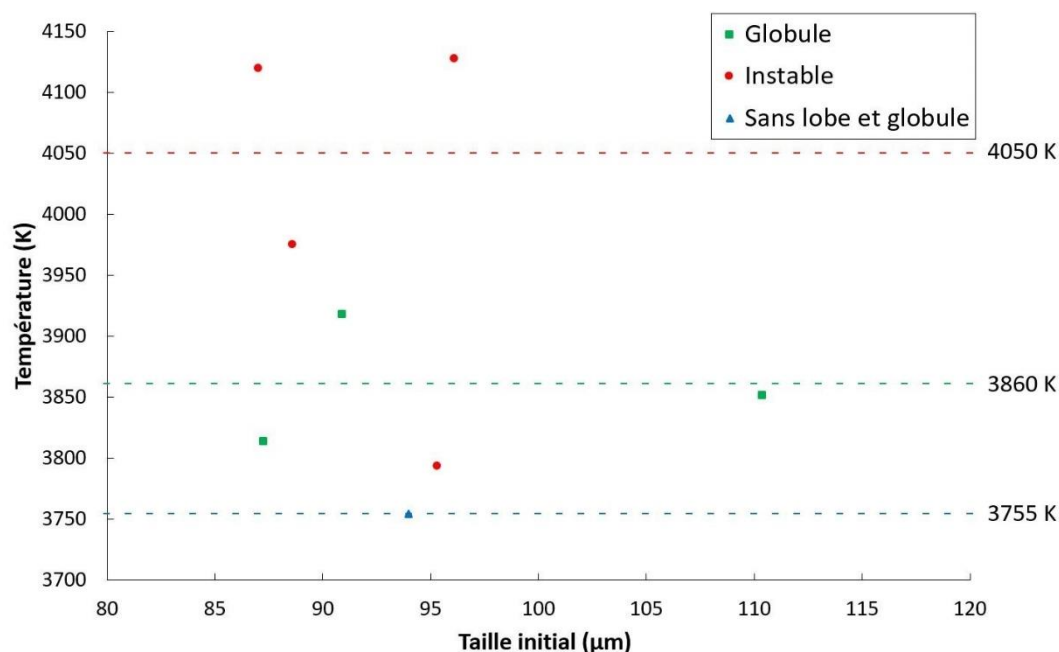


Figure IV-29 — Température de la phase gazeuse lors de la combustion d'une particule d'aluminium dans l'air à 5 bar. Les différents phénomènes observés durant ces combustions sont distingués par les couleurs vert, rouge et bleu qui correspondent respectivement aux phénomènes avec globule, instable, et sans lobe ni globule. La température moyenne est représentée par la ligne pointillée de même couleur (respectivement de 4050, 3860 et 3755 K).

IV.2.2.1. Synthèse

La méthode de mesure de la température de l'oxyde d'aluminium est efficace en présence d'une flamme de diffusion bien établie. Les expériences présentant un régime transitoire, telles que les combustions à haute pression dans l'air ou avec le CO_2 comme oxydant principal, ne peuvent donc pas être étudiées avec cette technique. Cette méthode nécessite une grande émission lumineuse, ce qui la rend inapplicable pour les combustions dans les ambiances humides, trop peu lumineuses. Peut-être qu'une amélioration des paramètres d'acquisition du spectromètre permettrait d'obtenir des mesures dans ces conditions. La comparaison avec les températures adiabatiques de flamme est tout de même à nuancer, car les calculs ont été réalisés à une richesse stœchiométrique. Ce paramètre peut provoquer une variation qui n'est pas négligeable sur la température.

La température de la phase condensée n'a pas été déterminée par cette méthode spectrométrique, car les erreurs d'estimation étaient plus importantes que celles déterminées en utilisant la méthode de pyrométrie multispectrale (cf. III.6.3).

IV.2.3. Conclusion sur la mesure de la température

Cette section a permis de présenter l'application des méthodes développées au cours de cette thèse pour étudier les réactions de combustion dans le lévitateur électrodynamique. La mesure des différentes températures de la réaction est un enjeu important pour mieux comprendre la combustion des particules d'aluminium. Elles permettront à terme d'améliorer les modèles de combustion, qui pour le moment se basent sur des hypothèses fortes. Par exemple, l'homogénéité de la température sur l'ensemble de la réaction, ou encore la considération de la température de la flamme adiabatique comme étant la valeur absolue de la chaleur au cours de la réaction.

Les résultats sur les températures, déterminés par la méthode de pyrométrie multispectrale et présentés dans la partie IV.2.1, nécessitent encore des améliorations afin de mesurer plus précisément les températures des différentes phases condensées. Toutefois, il a pu être démontré que le suivi temporel de la température est correct avec cette méthode, comme en atteste l'évolution conjointe du rapport du diamètre de la flamme sur celui de la goutte (Figure IV-23). Cette méthode est très encourageante. Afin de faire progresser cette méthode, il serait nécessaire de mieux connaître les paramètres de taille des nanoparticules d'alumine.

Dans la section IV.2.2, il est possible de constater que la mesure de température de l'oxyde d'aluminium (utilisant la méthode décrite dans la partie III.6.4) fournit des résultats cohérents. La température dans l'air à basse pression suit l'évolution de la température adiabatique de flamme. Toutefois, cette méthode est extrêmement liée aux différents régimes de combustion mis en jeu. Par exemple à 5 bar, où la limite entre les modes de combustion diffusif et transitoire est floue, les températures mesurées pour la phase gazeuse sont relativement dispersées.

IV.3. Analyse du temps de combustion

L'examen du temps de combustion, déterminé lors des expériences, est crucial pour établir une corrélation qui pourrait simplifier la modélisation de la combustion des particules d'aluminium. Cette corrélation pourrait servir à prédire le temps de combustion des particules, en se basant sur leur diamètre initial. La formule élaborée par Beckstead (2004)^[108] basée sur une analyse d'un jeu de données expérimentales de temps de combustion est décrite par :

$$t_c = \frac{a \cdot D_0^n}{X_{eff} \cdot P^\alpha \cdot T^\gamma} \quad \text{Équation IV-1}$$

où, a , n , α et γ sont les paramètres à optimiser, D_0 étant le diamètre initial de la particule, P et T étant respectivement la pression et la température de l'environnement gazeux. L'efficacité oxydante des molécules qui compose cet environnement gazeux est rassemblée sous le terme X_{eff} . Ce paramètre est calculé par la formule suivante :

$$X_{eff} = e_{O_2} \cdot \phi_{O_2} + e_{CO_2} \cdot \phi_{CO_2} + e_{H_2O} \cdot \phi_{H_2O} \quad \text{Équation IV-2}$$

avec, ϕ_i la fraction volumique et e_i l'efficacité oxydante des espèces i . L'efficacité oxydante de référence est celle de O_2 . Le dioxygène présente l'efficacité la plus importante parmi l'ensemble des oxydants présentés dans l'Équation IV-2, alors $e_{O_2} = 1$. Des améliorations de cette loi furent proposées par Braconnier (2020)^[2] puis par Halter (2022)^[60]. Une partie des points de mesures obtenus au cours de l'étude actuelle sera compilée avec les résultats de Braconnier (2020)^[2] pour établir de nouveaux paramètres afin d'améliorer la corrélation empirique proposée. Cet ajustement offrira la possibilité de prédire la durée de combustion des particules d'aluminium, en tenant compte de leur dimension initiale et d'un éventail plus large d'environnements. Dans un premier temps, une comparaison des diverses méthodes de mesure du temps de combustion sera effectuée. Par la suite, une analyse de l'effet de la pression sera réalisée, compte tenu de son rôle crucial lors de la postcombustion pendant laquelle elle peut atteindre des valeurs élevées. Après cette étape, l'influence de la nature de l'espèce oxydante et de sa fraction molaire dans le mélange sera examinée. Finalement, la compilation des différentes données recueillies permettra d'affiner la loi empirique de combustion.

IV.3.1. Différences entre les méthodes de mesure du temps de combustion

Les différentes méthodes proposées durant la partie III.6.2 sont la mesure manuelle par l'opérateur, celle par l'extrapolation du régime symétrique et celle proposée par Olsen (1996)^[86].

Le temps de combustion Opérateur est pris comme la référence de cette étude, car il permet une détermination plus précise du début de la combustion. Il est possible de mettre en évidence, avec la vidéo, le changement de phase caractéristique de l'initiation du processus. Les autres méthodes proposent que le début de la combustion coïncide avec l'arrêt du laser.

Cependant, le laser ne s'arrête qu'au cours de l'augmentation du signal lumineux, un phénomène observé sur les PM, donc après le véritable début. La fin de la réaction est également plus précisément déterminée lorsque la vidéo capture les phénomènes de surfusion (phénomène expliqué en partie II.2.1.3) ou alors l'extinction de la particule. Sans la vidéo, ce phénomène est aussi identifiable sur certains enregistrements des PM (Figure IV-16 à 6 ms). Par conséquent, la méthode Opérateur est estimée plus précise que celle proposée par Olsen, puisque les périodes d'initiation et d'extinction de la particule sont plus facilement identifiables. Toutefois, quel que soit l'environnement de la particule lors de la combustion, les écarts relatifs entre les temps calculés par les méthodes Opérateur et d'Olsen sont relativement constants entre 0 et 5 % (Figure IV-30). La méthode d'Olsen (1996)^[86] permet d'évaluer trois pourcentages de l'intégrale du signal d'intensité lumineuse relative. Les temps de combustion utilisés pour évaluer ces 3 valeurs sont mesurés à des instants correspondant respectivement à 95 %, 99 % et à 99,5 % de cette intégrale. Ces temps sont proches du temps de combustion opérateur qui est notre référence. Dans la suite des analyses, le temps privilégié entre les deux méthodes sera celui du procédé Opérateur.

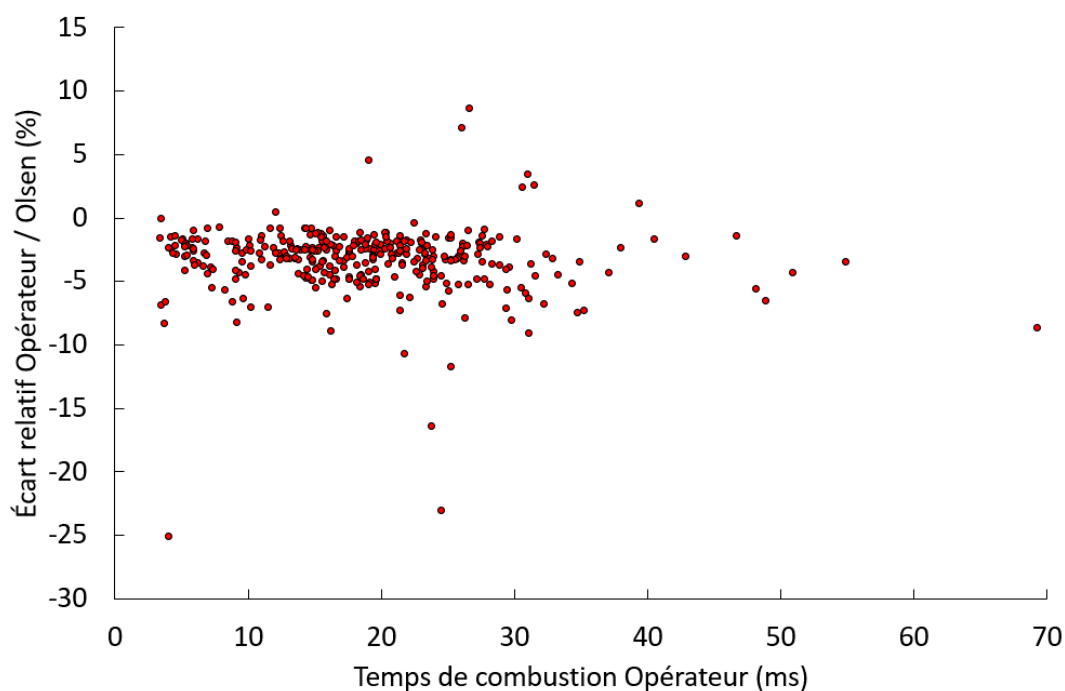


Figure IV-30 — Écart relatif entre le temps de combustion estimé par les méthodes d'Olsen et Opérateur. Toutes les expériences sont compilées, quelles que soient les conditions ambiantes de l'expérience.

La méthode d'extrapolation donne une information différente des deux autres, car elle suppose que la combustion n'est pas perturbée par la phase asymétrique, prise en compte par les autres méthodes. Pour déterminer ce temps, il est nécessaire d'observer, sur les signaux des PM, une phase de combustion symétrique, comme cela est expliqué dans la partie III.6.2.2 (Figure III-20). Les temps proposés dans cette section sont issus de combustions dans l'air à 1 ou 2,5 bar, car le régime diffusif est clairement défini lors des réactions dans cette ambiance.

L'écart relatif entre le temps de combustion mesuré par les méthodes Opérateur et Extrapolation en fonction de $t_{c,opérateur}$ est plus important pour les petits temps de combustion (Figure IV-31). Le $t_{c,extrapolation}$ est généralement supérieur aux $t_{c,opérateur}$ et aux $t_{c,olsen}$ car dans la majorité des cas, la phase asymétrique perturbe la réaction au point de l'arrêter brusquement. Ce phénomène est expliqué par la réduction de la quantité d'aluminium disponible pour la combustion, car l'alumine empêche son évaporation et provoque ainsi l'arrêt brutal de la réaction. Normalement, un parallèle peut être tracé entre les temps de combustion et la taille des particules, car ils sont liés par une loi de puissance. L'écart basé sur la taille initiale des particules devrait confirmer cette tendance : il devrait être plus grand lorsque le diamètre initial de la particule est plus petit, et vice versa. Cependant, en observant la Figure IV-32, la taille initiale ne semble pas avoir d'impact sur l'écart. Si seul le temps de combustion affecte l'écart, il est possible de considérer qu'un autre facteur provoque ces différences significatives.

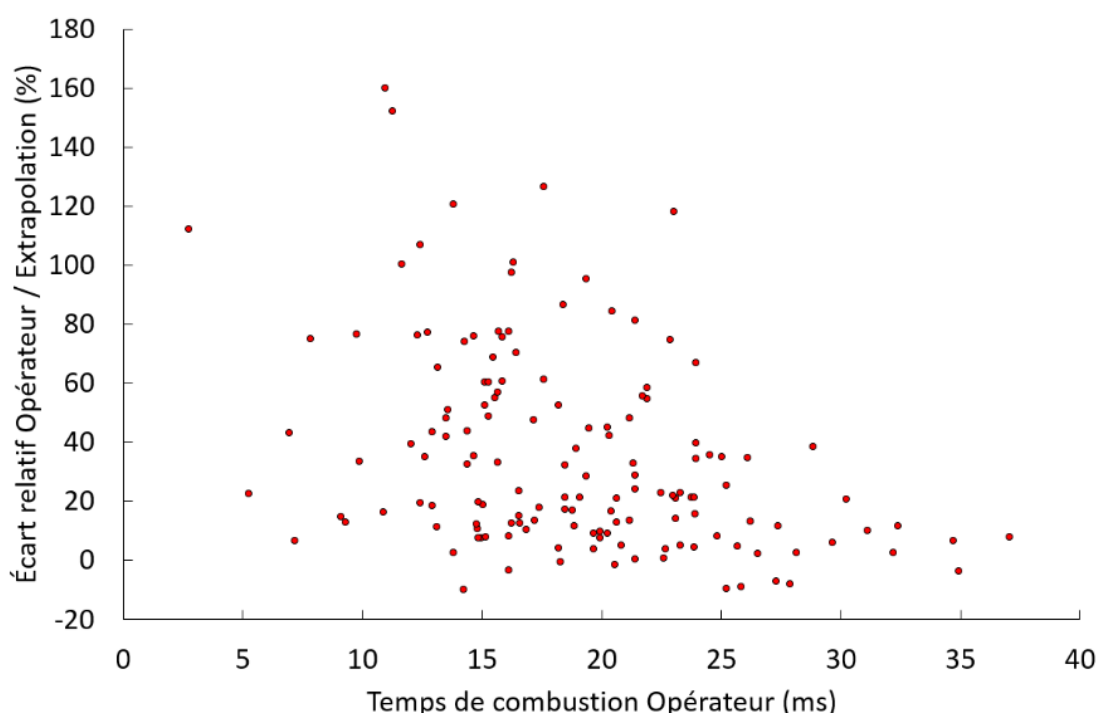


Figure IV-31 — Écart relatif entre le temps de combustion estimé par les méthodes Extrapolation et Opérateur en fonction du temps de combustion Opérateur. L'ensemble des expériences compilées a été réalisé dans l'air à 1 ou 2,5 bar.

La Figure IV-32 illustre également deux groupes de résultats, avec une limite arbitrairement fixée à 30 % de différence relative entre les méthodes Opérateur et Extrapolation. Cette limite permet de séparer les imprécisions faites avec la méthode Opérateur concernant l'arrêt de la combustion. Dans certaines combustions, comme l'exemple (b) de la Figure III-19, le suivi de l'intensité lumineuse est soudainement interrompu. Cela est généralement dû au fait que la particule quitte le champ de vision des photomultiplicateurs suite à une perturbation pendant la combustion. Le temps de combustion est alors sous-estimé par rapport au temps réel de combustion de la particule. Cette perturbation est observée lors des combustions où la différence relative entre les méthodes Opérateur et Extrapolation est supérieure à 30 %. L'analyse des temps de combustion se concentre donc exclusivement sur les temps dont l'écart relatif ne dépasse pas 30 %.

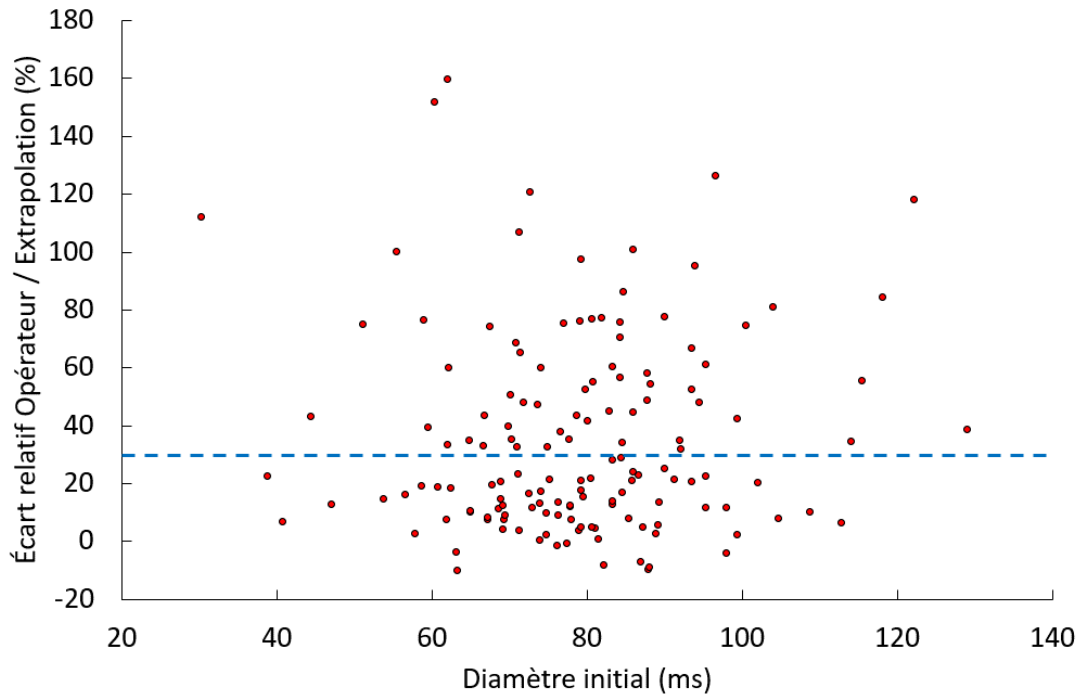


Figure IV-32 — Écart relatif entre le temps de combustion estimé par les méthodes Extrapolation et Opérateur en fonction du diamètre initial des particules d'aluminium. Les expériences compilées ont été réalisées dans l'air à 1 ou 2,5 bar. La séparation arbitraire à 30 % d'écart relatif divise les résultats en deux groupes. Au-dessus de 30 %, les temps de combustion Opérateur ne sont pas considérés comme fiables.

Cette sélection offre la possibilité, dans le contexte de l'air à 1 bar, de filtrer les combustions qui sortent du champ visuel des PM. La Figure IV-33 illustre les variations du temps de combustion Opérateur en fonction du diamètre initial pour les deux catégories définies. Une tendance est observable pour les points rouges, qui présentent le plus petit écart relatif par rapport au temps de combustion extrapolé, contrairement aux points noirs qui sont plus éparpillés. Pour les prochaines étapes, seuls les points rouges seront pris en compte.

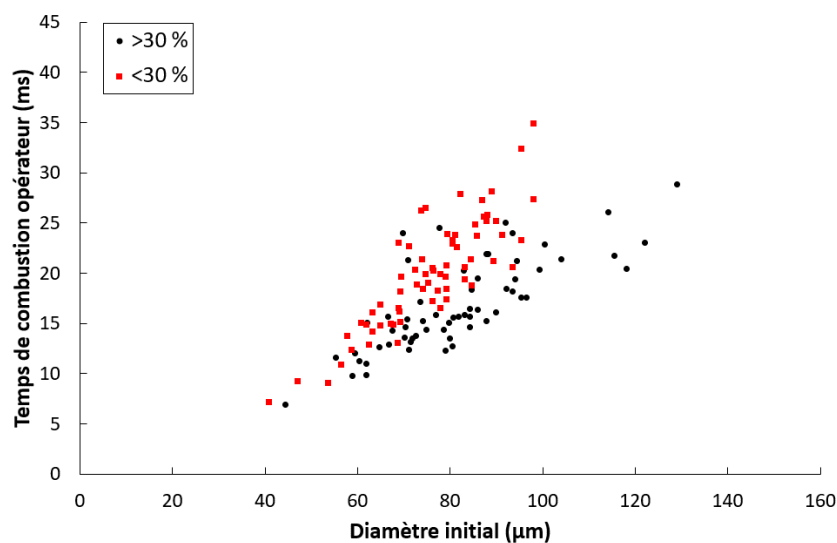


Figure IV-33 — Évolution du temps de combustion opérateur en fonction du diamètre initial de la particule. Les points rouges correspondent aux données en dessous de la limite fixée sur la Figure IV-32 et inversement pour les points noirs.

IV.3.1. Effets de la pression sur le temps de combustion

Les recherches de Beckstead (2004)^[108] et de Braconnier (2020)^[2] ont décrit l'effet de la pression sur le temps de combustion, en établissant une relation de la forme que $t_c \propto D_0^n / P^\alpha$. Ils ont respectivement déterminé un paramètre α de 0,1 et 0,007. Le paramètre α proposé par Braconnier, qui est plus faible que celui de Beckstead, suggère que la pression a un impact moindre sur le temps de combustion. Braconnier a démontré que l'environnement gazeux affecte la valeur du paramètre α . Dans son étude, il a identifié une tendance opposée entre les combustions dans l'air et dans le CO₂ pur, avec un paramètre α de -0,1 et 0,1 respectivement. Les expériences menées sous pression dans l'air et le dioxyde de carbone lors de cette thèse confirment les résultats de Braconnier. Il est possible d'observer une tendance inverse entre l'air, où le temps de combustion augmente avec la pression (Figure IV-34), et le CO₂, où l'effet est inversé (Figure IV-35).

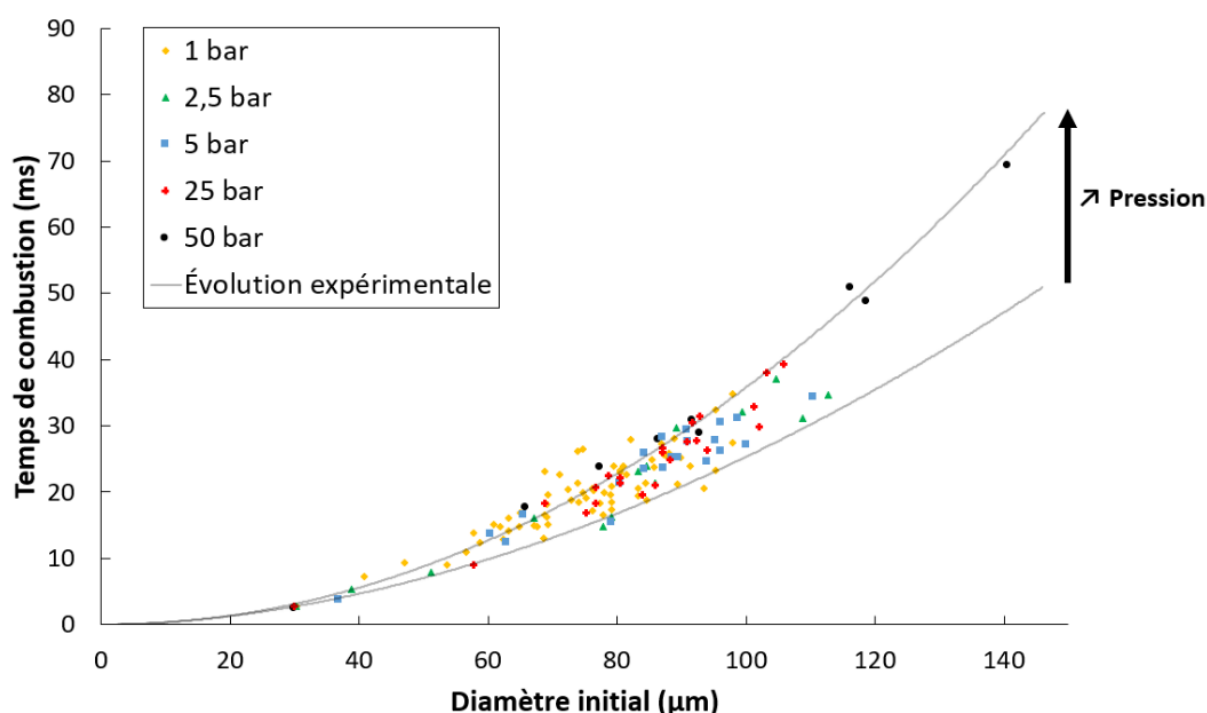


Figure IV-34 — Compilation des temps de combustion expérimentaux en fonction du diamètre initial de la particule pour des réactions réalisées dans l'air à différentes pressions (1/2,5/5/25/50 bar). La flèche noire indique l'évolution du temps de combustion avec la pression.

Dans le cas d'une ambiance d'air, en se référant à la corrélation proposée par Beckstead (2004)^[108], et en utilisant l'ensemble des mesures réalisées durant cette étude (170 points), une relation entre le temps de combustion et la pression a été établie, telle que $t_c \propto D_0^{1,75} / P^{-0,014}$. La Figure IV-34 regroupe l'intégralité des conditions étudiées dans l'air. Il est possible de remarquer que la tendance est inverse de celle décrite par la loi de Beckstead, mais elle suit celle proposée par Braconnier, bien qu'elle soit moins prononcée. Une explication suggérée est que le mode de combustion passe d'un régime de combustion en phase gazeuse pour les basses pressions à un régime intermédiaire (phase gazeuse/hétérogène de surface) pour les pressions plus élevées. Ce changement de mode pourrait expliquer un ralentissement de la réaction.

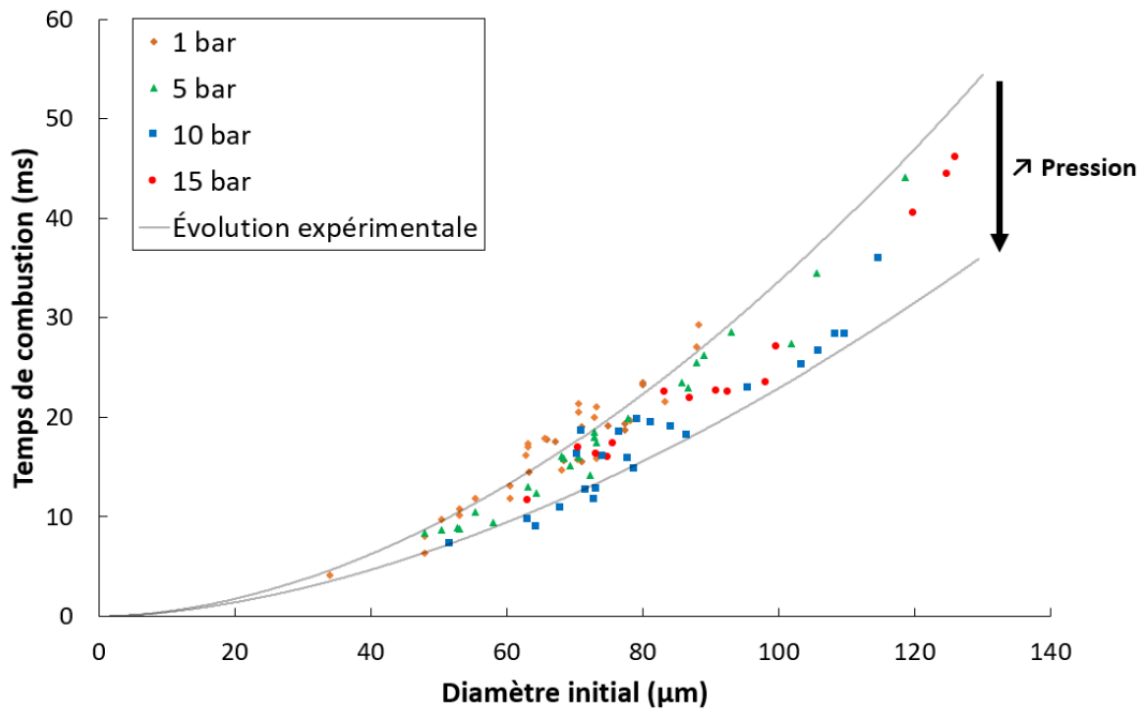


Figure IV-35 — Compilation des temps de combustion expérimentaux en fonction du diamètre initial de la particule pour des réactions réalisées dans le dioxyde de carbone pur à différentes pressions (1/5/10/15 bar). L'évolution des données en fonction de la pression est tracée en noir.

En suivant la même méthode, pour un environnement de dioxyde de carbone (112 points de mesure), on peut établir la relation $t_c \propto D_0^{1,75} / P^{0,014}$. Cette évolution coïncide avec les études de Beckstead (2004)^[108] et de Braconnier (2020)^[2] qui décrivent aussi une diminution du temps de combustion avec l'augmentation de la pression. La Figure IV-35 illustre cette tendance. Globalement, les temps de combustion diminuent lorsque la pression augmente, bien que ceux mesurés à 15 bar soient légèrement plus longs qu'à 10 bar. Cette discontinuité dans l'évolution du temps de combustion en fonction de la pression est probablement due à un changement de régime de combustion, passant d'un mode de combustion intermédiaire à un mode hétérogène de surface. Théoriquement, ce changement de régime peut être estimé entre 20 et 30 bar. Ce basculement est déterminé en comparant l'évolution de la température de flamme théorique avec celle de la vaporisation de l'aluminium en fonction de la pression. Le régime hétérogène de surface se met en place lorsque l'énergie produite par la réaction n'est plus suffisante pour vaporiser l'aluminium. L'augmentation des temps de combustion pourrait être due à ce changement de régime, car les réactions de surface sont plus lentes que les réactions en phase gazeuse. Cependant, le mode hétérogène de surface n'est pas clairement établi sur les séquences observées à 15 bar.

L'effet de la pression dépend de l'environnement gazeux étudié. Les corrélations proposées par Beckstead (2004)^[108], Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60] utilisent un seul paramètre pour représenter l'évolution du temps de combustion en fonction de la pression. Pour minimiser l'erreur du temps de combustion sur l'ensemble de leurs données, une pondération des différents paramètres α a été réalisée. Cependant, cette approximation est problématique lors de l'estimation du temps de combustion à différentes pressions, car elle surestime (Figure IV-36) ou sous-estime (Figure IV-37) le temps de combustion dans les conditions maximales ou minimales réalisées.

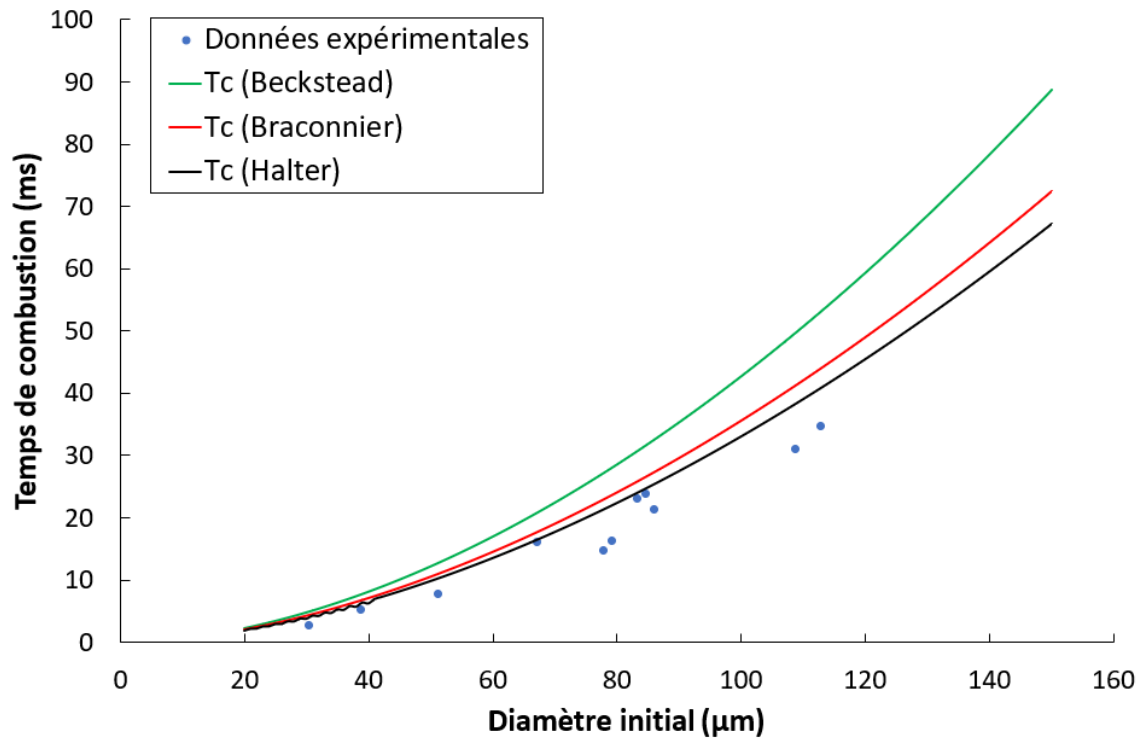


Figure IV-36 — Temps de combustion de particules d'aluminium dans l'air à une pression de 2,5 bar en fonction du diamètre initial de la goutte d'aluminium. Les courbes représentent l'évolution du temps de combustion en fonction du diamètre initial de la particule estimé par les lois de Beckstead (2004)^[108], Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60].

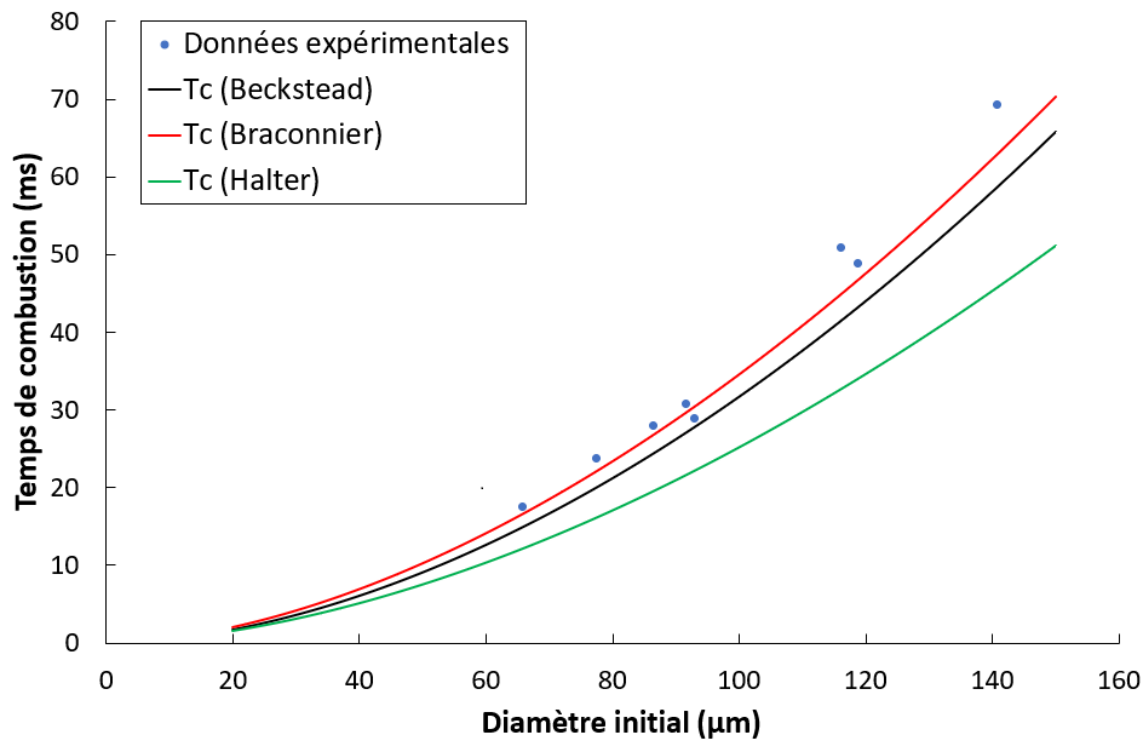


Figure IV-37 — Temps de combustion de particules d'aluminium dans l'air à une pression de 50 bar en fonction du diamètre initial de la goutte d'aluminium. Les courbes continues correspondent aux lois de Beckstead (2004)^[108], Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60].

L'une des propositions est d'ajuster l'exposant de la pression pour qu'il prenne en compte l'effet de l'environnement gazeux. Suite à l'optimisation de la loi empirique obtenue en compilant les différents résultats (cf. IV.3.3), une loi de cette forme est proposée dans cette étude :

$$t_c \propto D_0^n / P^{\sum \alpha_i \cdot \phi_i} \quad \text{Équation IV-3}$$

où α_i est le paramètre de pression et ϕ_i est la fraction volumique de l'espèce i de l'ambiance gazeuse. Cette formulation de l'évolution de la pression tient compte de l'influence de l'atmosphère gazeuse sur l'évolution du temps de combustion lors de l'augmentation de la pression. Cependant, tous les oxydants ou diluants peuvent potentiellement affecter ce paramètre. L'analyse de leur impact suite à l'augmentation de pression n'a pas été effectuée au cours de cette thèse, mais pourrait être explorée dans des travaux futurs.

IV.3.2. Étude de l'impact de l'environnement gazeux

Cette thèse se concentre sur l'environnement gazeux typique d'une postcombustion, dominé par le CO_2 , H_2O et N_2 . Cependant, d'autres composants, comme le CO et le CH_4 , sont également présents dans l'atmosphère gazeuse d'une postcombustion. L'effet de ces diverses molécules sera examiné dans des recherches ultérieures.

Les sections IV.1.2 et IV.1.3 abordent les phénomènes mis en jeu en fonction de l'atmosphère gazeuse (CO_2 et H_2O , ainsi qu'une combinaison des deux). Cette étude a révélé que la phénoménologie est principalement dirigée par la présence de la vapeur d'eau, indépendamment de sa proportion, tant qu'elle est supérieure à 25 %. L'impact de la proportion de CO_2 dans le mélange est principalement observé sur le temps de combustion qui s'accroît avec la concentration en CO_2 . La Figure IV-38 illustre la compilation des résultats obtenus. La formule de Braconnier, qui n'intègre pas les effets de vapeur d'eau, n'est donc pas représentée sur la figure. Les lois empiriques proposées par Beckstead (2004)^[108] et Halter (2022)^[60] sont représentées respectivement par des pointillés et une ligne continue pour les différents mélanges. Ces deux lois présentent une évolution similaire : Beckstead et Halter indiquent que l'augmentation de la fraction volumique de CO_2 induit une augmentation du temps de combustion. Toutefois, Halter a ajusté les paramètres d'efficacité oxydante pour les espèces CO_2 et H_2O afin de mieux correspondre aux données expérimentales. Les temps de combustion calculés avec la loi de Beckstead sont surestimés pour les réactions dans le CO_2 pur et sont sous-estimés pour les réactions avec une fraction plus élevée de H_2O (>75 % d' H_2O). Il est important de noter que dans son étude aucune mesure pour la vapeur d'eau pure n'est donnée. Halter a, pour sa part, réalisé son optimisation avec la majorité des données de la Figure IV-38, ce qui explique pourquoi les évolutions proposées coïncident naturellement avec les données expérimentales. La différence entre les deux lois peut donc être expliquée par le jeu de données utilisées pour les deux optimisations, ainsi que par l'absence de données expérimentales dans les conditions de vapeur d'eau pure pour Beckstead.

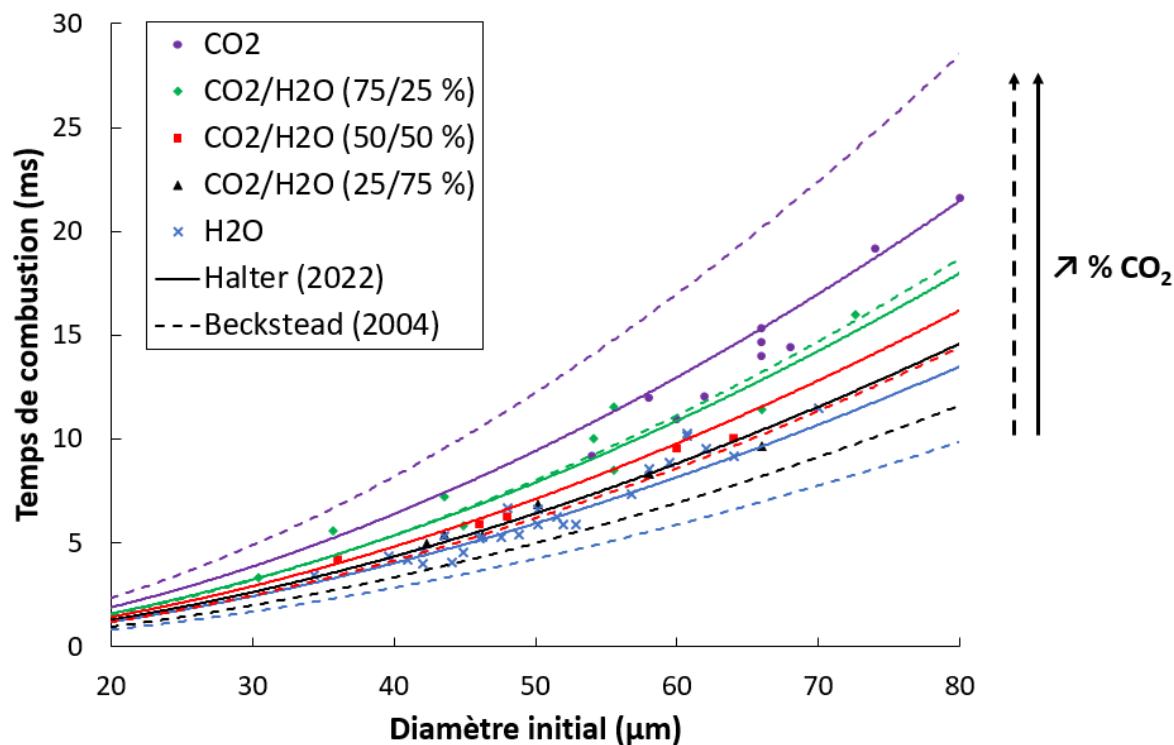


Figure IV-38 — Évolution du temps de combustion en fonction du diamètre initial de la particule. Les différentes couleurs représentent une variation de la proportion volumique entre le CO₂ et l'H₂O. Les courbes en pointillé et en trait plein représentent le temps de combustion calculé avec les équations de Beckstead (2004)^[108] et Halter (2022)^[60].

L'introduction d'un inhibiteur de réaction dans un environnement gazeux peut ralentir la réaction, prolongeant ainsi le temps de combustion des particules d'aluminium. Le diazote, souvent présent dans un environnement de postcombustion, est l'objet de cette étude. Nous avons examiné la phénoménologie de la réaction de l'aluminium dans une atmosphère humide typique des produits de détonation dans la partie IV.1.4. L'ajout de quantités importantes de N₂ à un environnement avec une proportion 50/50 de CO₂ et de H₂O n'affecte pas la prédominance de la vapeur d'eau sur la dynamique de la réaction. Cependant, l'ajout du diazote perturbe la condensation autour de la goutte, entraînant des phénomènes observés pour les mélanges contenant plus de CO₂ que d'H₂O. L'ajout de diazote affecte également l'évolution du temps de combustion en fonction du diamètre : il augmente considérablement par rapport à une combustion dans un environnement de 50 % de CO₂ et 50 % d'H₂O, comme le montre la Figure IV-39. Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60] ont introduit un coefficient à l'efficacité oxydante proposé par Beckstead (2004)^[108] (Équation IV-2) pour tenir compte de l'ajout de diazote. Ce facteur est négatif pour décrire l'effet inhibiteur du N₂ sur la réaction. Cependant, ce facteur doit être nuancé, car il compense principalement l'impact de la pression dans un environnement d'air. Lors de l'élaboration d'une nouvelle loi empirique, réalisée dans la section suivante, le coefficient pour le N₂ est considéré nul. Des études supplémentaires sont nécessaires pour clarifier le rôle du N₂.

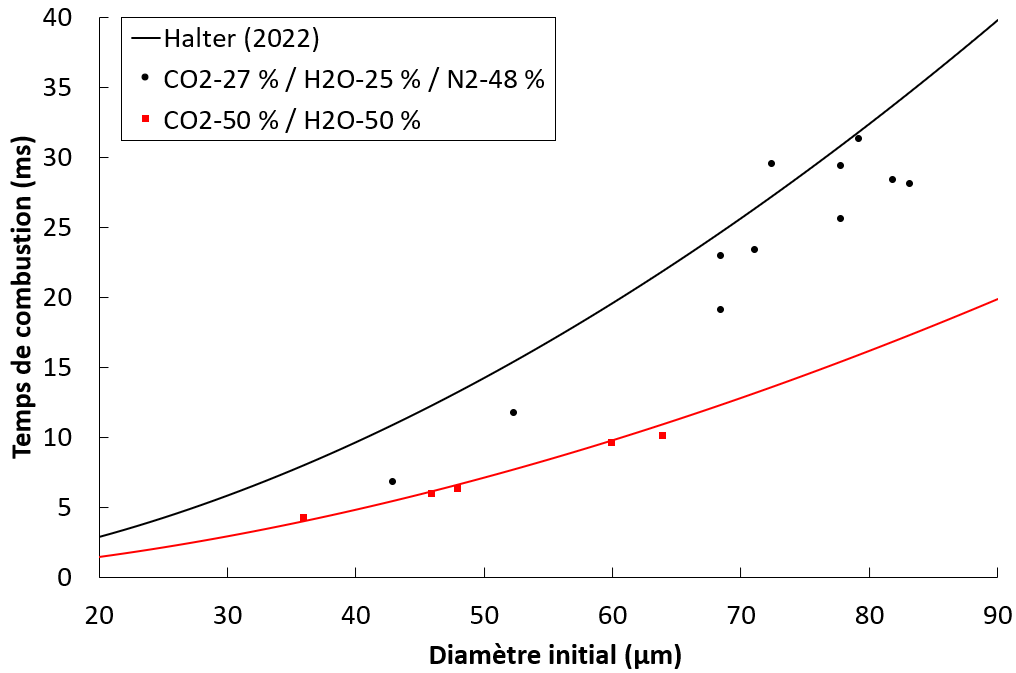


Figure IV-39 — Évolution du temps de combustion en fonction du diamètre initial de la particule d'aluminium avec la loi empirique proposée par Halter (2022)^[60]. Comparaison entre une réaction dans une ambiance 50/50 de CO₂/H₂O et une atmosphère humide représentative de produits de détonation.

IV.3.3. Loi empirique du temps de combustion des particules d'aluminium

Comme mentionné précédemment, la compilation des différents résultats a été réalisée dans le but d'établir une corrélation empirique pour déterminer le temps de combustion en fonction des différents paramètres de combustion (taille initiale, propriétés du milieu réactif). Cette loi est élaborée sur la base de celle proposée par Beckstead (2004)^[108] (Équation IV-1), avec certaines modifications.

Premièrement, l'Équation IV-2 proposée par Beckstead n'inclut pas toutes les espèces oxydantes utilisées dans les différentes études, comme le CO. Cet ajout a été suggéré par Braconnier (2020)^[2], ainsi que l'ajout du N₂ dans la formulation du X_{eff} . Cependant, dans la section précédente, l'importance du diazote a été remise en question pour favoriser l'introduction d'un nouveau paramètre permettant de mieux représenter l'impact de la pression (Équation IV-3). Ce changement a eu pour conséquence de rendre le paramètre e_{N_2} nul. Avec ces modifications, l'Équation IV-4 est proposée pour décrire l'efficacité oxydante globale, dans le but d'intégrer de nouvelles espèces oxydantes à l'avenir.

$$X_{eff} = e_{O_2} \cdot \phi_{O_2} + e_{CO_2} \cdot \phi_{CO_2} + e_{H_2O} \cdot \phi_{H_2O} + e_{CO} \cdot \phi_{CO} \quad \text{Équation IV-4}$$

Par rapport à la proposition originale de Beckstead et à la révision du paramètre γ de Halter (2022)^[60], le paramètre de température n'a pas été retenu. Les faibles variations effectuées au cours de cette étude ne permettent pas d'établir une loi d'évolution cohérente. En effet, la majorité des expériences ont été réalisées à température ambiante. Seules celles effectuées dans la vapeur d'eau ont été réalisées à une température plus élevée. Toutefois, la

température maximale que ce dispositif peut atteindre est d'environ 500 K, ce qui ne permet pas d'atteindre les températures typiques d'un environnement de postcombustion qui peuvent atteindre 4000 K immédiatement après la détonation.

Le coefficient a et l'exposant n sont conservés, bien que leur valeur soit à nouveau optimisée avec le nouveau jeu de données, en utilisant la nouvelle forme de la loi (Équation IV-6).

L'étude de l'impact de la pression sur le temps de combustion (cf. IV.3.1) a révélé que le paramètre lié à la pression doit également intégrer une dépendance à la composition de l'environnement gazeux de la particule. Dans ces conditions, le paramètre α initialement proposé par Beckstead devient :

$$A = \alpha_{O_2} \cdot \phi_{O_2} + \alpha_{CO_2} \cdot \phi_{CO_2} \quad \text{Équation IV-5}$$

où α_i est le paramètre de pression et ϕ_i est la fraction volumique de l'espèce i . Seules les espèces dont l'étude a été faite à différentes pressions sont intégrées pour déterminer ce nouveau paramètre. La variation de pression n'a pas été étudiée pour le CO et l'H₂O. Compte tenu des résultats précédents sur l'importance de l'azote, ce dernier n'a pas non plus été pris en compte. Des études futures pourraient clarifier ce point.

L'optimisation est alors réalisée sur l'Équation IV-6 qui synthétise l'ensemble des éléments discutés précédemment :

$$t_c = \frac{a \cdot D_0^n}{X_{eff} \cdot P^A} \quad \text{Équation IV-6}$$

où t_c est le temps de combustion en milliseconde, D_0 est le diamètre initial de la particule en micromètre, X_{eff} est l'efficacité oxydante globale sans unité décrite par l'Équation IV-4 et P la pression en bar. Les paramètres d'optimisation a , n et A sont déterminés par une procédure algorithmique qui cherche à minimiser l'erreur entre les données expérimentales et la loi empirique, en utilisant la méthode des moindres carrés. Cette optimisation est réalisée sur une partie des données expérimentales réalisée dans cette thèse (266 points de mesure) ainsi que sur une partie des expériences de Braconnier (2020)^[2] (239 points de mesure). Près de la moitié des expériences réalisées dans l'air à 1 bar n'a pas été prise en compte en raison d'une évaluation biaisée de la durée de combustion, comme cela est décrit dans la section IV.3.1. La Figure IV-40 reprend l'ensemble des mesures retenues pour l'optimisation des différents paramètres. L'objectif de cette étude étant de décrire la combustion d'une particule d'aluminium dans une ambiance gazeuse proche de celle des produits de postcombustion, les principales atmosphères étudiées sont composées de O₂, H₂O, CO₂, N₂ et CO.

	Propriétés du milieu réactif						Points de mesure		Écart relatif							
	φO ₂	φH ₂ O	φCO ₂	φCO	φN ₂	P (bar)	Total : 505	% points réalisés	BECKSTEAD		BRACONNIER		HALTER		GLASZIOU	
CO ₂ - N ₂	0	0	0,8	0	0,2	1	21	0%	15%	23%	16%	15%	13%	13%	9%	12%
	0	0	0,9	0	0,1	1	18		18%		15%		11%		7%	
CO ₂ - O ₂	0,6	0	0,4	0	0	1	18	0%	29%		14%		14%		14%	
	0,4	0	0,6	0	0	1	16		30%		15%		15%		15%	
	0,2	0	0,8	0	0	1	20		28%		12%		12%		12%	
	0,1	0	0,9	0	0	1	14		26%		8%		8%		9%	
CO ₂ - CO	0	0	0,4	0,6	0	1	15	0%	29%		13%		12%		11%	
	0	0	0,6	0,4	0	1	16		25%		17%		14%		12%	
	0	0	0,8	0,2	0	1	10		25%		15%		13%		12%	
	0	0	0,9	0,1	0	1	16		24%		16%		14%		12%	
CO ₂ - Pression	0	0	1	0	0	1	46	28%	22%		11%		10%		12%	
	0	0	1	0	0	5	26		17%		6%		8%		6%	
	0	0	1	0	0	10	23		25%		17%		13%		14%	
	0	0	1	0	0	15	14		13%		7%		8%		7%	
Air - Pression	0,2	0	0	0	0,8	1	70	100%	27%		11%		11%		13%	
	0,2	0	0	0	0,8	2,5	26		26%		19%		19%		18%	
	0,2	0	0	0	0,8	5	39		22%		13%		10%		8%	
	0,2	0	0	0	0,8	25	24		11%		12%		21%		10%	
	0,2	0	0	0	0,8	50	11		17%		8%		47%		11%	
H ₂ O	0	1	0	0	0	1	27	100%	46%		ND		9%		21%	
CO ₂ / H ₂ O	0	0,75	0,25	0	0	1	6	100%	7%		ND		8%		6%	
	0	0,5	0,5	0	0	1	5		11%		ND		5%		3%	
	0	0,25	0,75	0	0	1	9		12%		ND		13%		12%	
CO ₂ - H ₂ O N ₂	0	0,25	0,27	0	0,48	1	11	100%	11%		ND		16%		12%	
Corrélation empirique						$t_c = \frac{a \cdot D_0^n}{X_{eff} \cdot P^A}$		$A = \alpha_{O_2} \cdot \phi_{O_2} + \alpha_{CO_2} \cdot \phi_{CO_2} + \alpha_{N_2} \cdot \phi_{N_2}$ $X_{eff} = e_{CO_2} \cdot \phi_{O_2} + e_{CO_2} \cdot \phi_{CO_2} + e_{H_2O} \cdot \phi_{H_2O} + e_{CO} \cdot \phi_{CO} + e_{N_2} \cdot \phi_{N_2}$								
Paramètres d'optimisation							a	n	eH ₂ O	eCO ₂	eCO	eN ₂	α (A)	αO ₂	αCO ₂	γ
BECKSTEAD							0,00735	1,8	0,6	0,22	ND	ND	0,1	ND	ND	0,2
BRACONNIER							0,002	1,75	ND	0,21	0,03	-0,03	0,01	ND	ND	ND
HALTER							0,00626	1,75	0,3	0,2	0,03	-0,03	0,007	ND	ND	0,2
GLASZIOU							0,002	1,75	0,37	0,18	0,04	0	ND	-0,07	0,1	ND

Figure IV-40 — Récapitulatif des propriétés du milieu réactif et des écarts relatifs mesurés entre les données expérimentales et les différentes corrélations empiriques proposées par Beckstead (2004)^[108], Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60], ainsi que la loi proposée durant ces travaux. Expériences réalisées avec des particules de 30 à 140 μm .

L'optimisation de ces paramètres aboutit aux Équation IV-7, Équation IV-8 et Équation IV-9 :

$$t_c = \frac{0,002 \cdot D_0^{1,75}}{X_{eff} \cdot P^A} \quad \text{Équation IV-7}$$

$$X_{eff} = \phi_{O_2} + 0,18 \cdot \phi_{CO_2} + 0,37 \cdot \phi_{H_2O} + 0,04 \cdot \phi_{CO} \quad \text{Équation IV-8}$$

$$A = -0,07 \cdot \phi_{O_2} + 0,1 \cdot \phi_{CO_2} \quad \text{Équation IV-9}$$

La comparaison entre les différents paramètres est complexe au vu des changements apportés à la corrélation. Toutefois, ils concernent surtout les paramètres présents au dénominateur de l'Équation IV-7. Les paramètres a et n restent inchangés par rapport à la loi de Braconnier.

La pertinence des corrélations est évaluée en calculant l'écart relatif pour chaque variation des propriétés du milieu réactif. La corrélation proposée dans cette étude est la plus précise de tous les tests, avec un écart de 12 %. Il est important de mentionner que les formulations de Braconnier (2020)^[2] et Halter (2022)^[60] sont également précises avec des écarts relatifs de 15 et 13 %, respectivement. La loi proposée par Beckstead (2004)^[108] est moins précise que les autres avec un écart relatif moyen de 23 %. Cependant, l'analyse indique clairement que la relation de Beckstead n'est pas adaptée aux réactions dans une ambiance carbonée. En revanche, les corrélations de Braconnier et Halter sont plutôt efficaces pour la combustion dans les atmosphères carbonées, mais moins dans l'air. L'étude propose un nouveau paramètre A pour corriger la dualité des tendances lors de l'augmentation de la pression dans l'air et le CO_2 pur. La corrélation de Braconnier est inadéquate pour déterminer le temps de combustion dans la vapeur d'eau, alors que la corrélation de Halter excelle dans ces environnements. La loi proposée dans cette étude est capable de rendre compte de tous les environnements avec un écart relatif qui reste proche de la moyenne globale. Toutefois, un écart plus important de 21 % est à noter pour les combustions dans la vapeur d'eau pure. Cette différence peut être attribuée à l'absence du paramètre de la température dans cette étude. Les variations de température n'étaient pas suffisantes pour prédire avec précision la durée de combustion dans des conditions de température élevée.

Cette nouvelle loi fournit des informations précises, mais il est important de noter qu'elle a un champ d'application limité et qu'il ne s'agit que d'une corrélation empirique. Elle n'a pas été testée dans différentes conditions avec des proportions de gaz différents et la relation est incertaine pour des diamètres de particules en dehors de la plage étudiée (30 à 140 μm). La dépendance en pression est aussi une source d'incertitude puisque seules les espèces CO_2 et O_2 sont prises en compte.

IV.3.1. Bilan des résultats expérimentaux

Les analyses menées dans le cadre de cette thèse ont permis de réviser la loi empirique utilisée pour déterminer le temps de combustion des particules. Les conditions explorées dans ce chapitre permettent de compléter les bases de données sur des atmosphères similaires à celles que l'on trouve dans une postcombustion, en utilisant de

nouvelles atmosphères gazeuses, telles que celles contenant de la vapeur d'eau. La vapeur d'eau domine le processus dès que sa fraction molaire dépasse 0,25. La durée de combustion est moins sensible à la présence de vapeur d'eau, mais elle est fortement ralentie par l'ajout de CO_2 ou de N_2 . Les différentes méthodes de mesure de la température développées dans ce travail sont encore en phase de développement. Cependant, les premiers résultats sont encourageants, notamment pour le suivi de la température par pyrométrie, avec toutefois une nécessité de détailler les différentes températures observées. La mesure de la température de l'oxyde d'aluminium dépend de la phénoménologie impliquée. Néanmoins, la méthode a produit des mesures très prometteuses pour de futures études expérimentales.

Conclusions et perspectives

Les poudres d'aluminium sont déjà intégrées à la composition de certains explosifs, pour augmenter la pression en aval du choc aérien. Elles fournissent une énergie supplémentaire significative après la détonation. L'aluminium possède des propriétés énergétiques intéressantes, comme une densité énergétique de plus de 80 MJ/L et une température de réaction très élevée, dépassant 3200 °C. Cependant, son mécanisme de combustion dans les produits de détonation est encore mal connu, ce qui limite la précision des modèles, et l'utilisation du potentiel énergétique de l'aluminium doit être optimisé. C'est pourquoi la compréhension et la modélisation de la combustion des particules d'aluminium sont des enjeux majeurs. De nombreuses études expérimentales ont été menées ces dernières années, principalement centrées sur des applications propulsives, mais également sur une utilisation comme vecteur énergétique décarboné. L'utilisation de cette source d'énergie est encore récente et les études menées jusqu'à présent se sont essentiellement concentrées sur l'aspect macroscopique, très peu sur l'aspect microscopique. Par conséquent, la littérature sur cet aspect de la combustion est encore très limitée et les données expérimentales sont incomplètes. Cette thèse vise à élargir la base de données sur la combustion de l'aluminium dans le domaine spécifique de la postcombustion, tout en élargissant les résultats à un plus grand nombre d'applications. Les objectifs de cette étude sont de décrire aux mieux les processus de réaction, mais aussi de collecter des données physiques sur ces derniers, afin d'améliorer les modèles prédictifs et les outils numériques.

L'objectif des expérimentations menées pendant cette thèse était d'étudier l'effet de la pression sur la combustion des particules d'aluminium et de reproduire un environnement similaire à celui de la postcombustion d'un explosif, un domaine encore peu documenté.

Pour étudier l'impact de la pression sur la réaction, nous avons examiné les environnements d'air pur et de dioxyde de carbone pur, en faisant varier la pression de 1 à 50 *bar* pour l'air et de 1 à 15 *bar* pour le CO₂. Les résultats obtenus ont montré des changements significatifs dans la phénoménologie lors de l'augmentation de la pression. Le comportement du temps de combustion en fonction de l'augmentation de la pression a été analysé et change en fonction de l'environnement gazeux. Dans l'air, le temps de combustion augmente avec la pression, tandis qu'il diminue dans le CO₂. Ces comportements opposés avaient été identifiés lors d'études précédentes, mais n'avaient pas été pris en compte dans l'élaboration des lois de combustion. Au cours de cette étude, nous avons proposé une nouvelle approche pour l'évolution du temps de combustion en fonction de la pression, qui tient compte des tendances opposées des espèces oxydantes dans les différents environnements étudiés. Cependant, comme il s'agit d'une loi empirique, son domaine d'utilisation est restreint par les données utilisées pour l'établir. Nous n'avons pas pu tester d'autres environnements sous pression, mais il semble logique de penser que chaque oxydant possède sa propre sensibilité à la pression. De plus, l'impact du diluant n'a pu être étudié, car les environnements d'air sont composés à 80 % de diazote, ce qui peut affecter la réaction.

L'évolution de la phénoménologie observée est similaire à celle observée lors d'études précédentes menées avec le même dispositif expérimental. Dans l'air, le régime diffusif prédomine pendant les réactions à moins de 5 bar, puis devient instable au-delà de cette pression.

Cette étude a non seulement examiné l'impact de la pression, mais a également permis de réaliser les premières observations de la combustion d'une particule d'aluminium dans la vapeur d'eau. Le dispositif d'introduction de vapeur d'eau avait été conçu et installé lors de la thèse de Braconnier (2020)^[2], mais n'avait pas pu être testé jusqu'à présent. Après plusieurs ajustements du dispositif expérimental, une étude sur le comportement de la particule dans un environnement de vapeur d'eau pure a été menée. Cette première approche a établi une référence de combustion pour cet environnement spécifique. Les phénomènes observés sont uniques par rapport à tous les environnements étudiés dans les divers travaux réalisés sur le dispositif expérimental. Les temps de combustion obtenus se situent entre ceux d'un environnement de CO₂ pur et d'O₂ pur. Une variation de la concentration en H₂O dans l'environnement a été effectuée pour observer l'impact de cet oxydant sur la réaction. Il a été démontré que la vapeur d'eau pilote la réaction dès que sa fraction volumique dépasse 25 % dans le mélange. Cependant, le temps de combustion est fortement influencé par le mélange d'oxydants : plus il y a de CO₂, plus le temps de combustion est long.

Enfin, un dernier environnement a été étudié pour se rapprocher des conditions rencontrées par l'aluminium au cours de la postcombustion d'un explosif. La réaction de l'aluminium dans un environnement composé d'H₂O, de CO₂ et de N₂ a été étudiée avec des proportions volumiques qui sont respectivement de 25, 27 et 48 %. Phénoménologiquement, la réaction est toujours pilotée par la vapeur d'eau et les réactions observées sont proches de celles observées dans des mélanges d'H₂O et de CO₂. Toutefois, le temps de combustion est nettement supérieur aux mélanges ayant des proportions similaires de dioxyde de carbone et de vapeur d'eau.

Les expériences réalisées ont enrichi les bases de données, permettant d'optimiser les codes de calculs grâce à l'élaboration d'une loi empirique du temps de combustion d'une particule d'aluminium. Cette loi est une amélioration des lois précédentes qui décrivent l'évolution du temps de combustion en fonction des conditions environnantes de la particule. La modification majeure de la loi est liée à la pression dont l'effet dépend de la proportion des oxydants. Ces paramètres de pression pourront être complétés par la suite pour prendre en compte un nombre plus conséquent d'environnements gazeux.

En utilisant le dispositif expérimental qui permet de faire léviter une particule métallique isolée dans un environnement gazeux arbitraire, des méthodes d'analyse ont été développées au cours de cette étude. Une partie du dispositif a également été modernisée pendant ces travaux de thèse pour mettre en œuvre de nouvelles méthodes d'analyse. Les ajouts au dispositif comprennent la pyrométrie multispectrale avec les photomultiplicateurs et la spectrométrie avec un spectromètre à haute résolution installé pendant ces travaux. De nouveaux dispositifs d'analyse, comme une caméra rapide plus performante et un nouveau système de photomultiplicateur ont également été installés.

Les principales méthodes d'analyse ajoutées au dispositif expérimental permettent de mesurer la température des phases condensée et gazeuse pendant la réaction. Ces mesures sont faites de façon non intrusive et donc ne perturbent pas la combustion.

La pyrométrie est une technique qui permet de déterminer la température moyenne des phases condensées de la combustion. Elle ne distingue pas les différents éléments qui composent cette phase, la température mesurée est donc une moyenne basée sur le rayonnement de chaque élément. Il est nécessaire de poursuivre les recherches pour distinguer la température de chacun des éléments observés pendant les réactions. Dans cette étude, les températures mesurées variaient de 3200 à 4000 K entre 1 et 5 bar dans l'air, tandis que les calculs de codes de thermodynamique estimaient une température entre 3500 à 3850 K pour la même plage de pression. La pyrométrie a montré que la température restait stable pendant les phases symétriques des réactions entre 1 et 5 bar dans l'air. Un autre palier de température, plus bas, a été observé durant les phases asymétriques de ces combustions. Pour les combustions à plus haute pression, les paliers de températures ne sont pas clairement définis, car les phases stables de réaction ne le sont pas non plus. Cependant, la mesure de la température semble suivre l'évolution de la vaporisation de l'aluminium, indiquant que la réaction n'est pas totalement en régime de combustion hétérogène de surface. Elle se caractérise par une température mesurée lors de la réaction qui est inférieure à celle de la vaporisation de son combustible. Actuellement, les simulations de la combustion de l'aluminium dans les explosifs proposent un seul palier de température pendant toute la combustion. Des recherches supplémentaires sont nécessaires pour vérifier cette hypothèse dans différents environnements, car, selon le mode de combustion, des paliers de température peuvent se produire comme cela a été démontré dans cette étude.

Le spectromètre intégré à notre dispositif expérimental a la capacité non seulement d'identifier les espèces générées lors de la combustion, mais aussi de mesurer la température d'une espèce gazeuse pendant ce processus. Les températures déterminées par cette méthode reflètent l'évolution de la température de flamme adiabatique avec toutefois une grande dispersion. Cette dispersion est due à la forte dépendance de la méthode à la qualité du signal reçu par le spectromètre. Celle-ci est étroitement liée à la présence d'une phase de diffusion longue et stable, car les espèces gazeuses n'émettent pas suffisamment de rayonnement pendant les phases instables de la réaction pour être détectées par le spectromètre utilisé. Cette méthode inclut également une mesure de la température de la phase condensée, mais elle est confrontée aux mêmes défis que la mesure par pyrométrie multispectrale. Les spectres émis par les espèces condensées sont intégrés dans un unique fond continu, ce qui complexifie les estimations de la température. Sans une information précise sur l'émissivité des espèces, il est donc difficile d'obtenir une température de la phase condensée à partir des spectres obtenus.

La recherche effectuée dans le cadre de cette thèse ouvre la voie à des expériences futures qui enrichiront les bases de données et les modèles de simulation numérique. Les contributions analytiques présentées dans ce manuscrit ont fourni de nouvelles informations essentielles pour une meilleure compréhension de la combustion. Ces informations contribueront à améliorer les modèles de postcombustion d'explosifs solides contenant de l'aluminium. Toutefois, les méthodes de mesures utilisées dans ces travaux nécessitent encore quelques ajustements pour obtenir des informations plus précises. Des améliorations supplémentaires sont prévues dans les travaux futurs pour augmenter le niveau de

compréhension de la combustion des particules d'aluminium. Par exemple, l'utilisation de la pyrométrie multispectrale avec une caméra couleur permettra de déterminer la température d'une zone spécifique de la combustion. La méthode de mesure par extinction de la lumière permettra également d'analyser la concentration et la taille des nanoparticules d'alumine dans le nuage.

Bibliographie

- [1] <https://www.tue.nl/en/news-and-events/news-overview/29-10-2020-tue-demonstrates-iron-fuel-at-brewery-bavaria-a-new-circular-and-co2-free-fuel-for-the-industry>
- [2] A. Braconnier. *Étude expérimentale de la combustion d'une particule d'aluminium isolée : influence de la pression et de la composition de l'atmosphère oxydante*. PhD thesis, Orléans, 2021.
- [3] J. Bergthorson, S. Goroshin, M. Soo, P. Julien, J. Palecka, D. Frost, D. Jarvis. Direct combustion of recyclable metal fuels for zero-carbon heat and power. *Applied Energy*, 160 : 368–382, 2015.
- [4] M. A. Cooper, M. J. Kaneshige, R. J. Pahl, S. Snedigar, A. M. Renlund. Methods for evaluating aluminized RDX explosives. *Proceedings of the 13th International Detonation Symposium*, 2006.
- [5] S. Courtaud. *Étude et simulation de la post-combustion turbulente des explosifs homogènes sous-oxygénés*. PhD thesis, Toulouse, 2017.
- [6] J. Suarez. *Modélisation de la combustion diphasique de l'aluminium et application sur la post combustion d'une charge d'explosif condensé dans l'air*. PhD thesis, Toulouse, 2020.
- [7] A. Gosset. *Modélisation de la combustion de particules d'aluminium en milieu gazeux sous pression*. PhD thesis, Toulouse, 2024.
- [8] E. S Oran. Understanding explosions. From catastrophic accidents to creation of the universe. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(1) :1–35, 2015.
- [9] L. Turker. Thermobaric and enhanced blast explosives (TBX and EBX). *Defence Technology*, 12(6) :423–445, 2016.
- [10] J. Thouvenin. *Détonique*. Eyrolles, 1997.
- [11] P. Clavin, G. Searby. *Combustion Waves and Fronts in Flows*. Cambridge University Press, 2016.
- [12] G. Baudin. *Physique des explosifs : de l'amorçage aux effets des explosifs condensés. Mémoire d'habilitation à diriger des recherches*. Université Paris Ouest - Nanterre, 2013.
- [13] L. Turker. Thermobaric and enhanced blast explosives (TBX and EBX). *Defence Technology*, 12(6) :423–445, dec 2016.
- [14] T. Elia. *Etude théorique et expérimentale de l'amorçage par choc et de la détonation de compositions énergétiques intégrant des additifs oxydants et métalliques réactifs*. PhD thesis, Paris, 2020.
- [15] J. Dodds, G. Baluais. Caractérisation de la taille des particules. *Sciences Géologique*, 46 (1-4) : 79–104, 1993.
- [16] T. Allen. *Particle size measurement Powder Technology Series*, 4th edition, Chapman & Hall. 1991.
- [17] J. H. S. Lee. *The Detonation Phenomenon*. Cambridge University Press, 2008.

- [18] I. Edri, V. R. Feldgun, Y. S. Karinski, D. Z. Yankelevsky. Afterburning aspects in an internal TNT explosion. *International Journal of Protective Structures*, 4(3) :97–116, 2013.
- [19] B. Bukiet. The Effect of Curvature on Detonation Speed. *SIAM Journal on Applied Mathematics*, 49(5) :1433–1446, oct 1989.
- [20] I. Anisimov, B. Zeldovich, A. Inogamov, F. Ivanov. The Taylor Instability of Contact Boundary Between Expanding Detonation Products and a Surrounding Gas. In *Shock Waves, Explosions, and Detonations*, pages 218–227. American Institute of Aeronautics and Astronautics, New York, 1983.
- [21] A. L. Kuhl. Mixing in Explosions. Technical Report UCRL-JC-115690, Lawrence Livermore National Laboratory, 1993.
- [22] Lord Rayleigh. Investigation of the Character of the Equilibrium of an Incompressible Heavy Fluid of Variable Density. *Proceedings of the London Mathematical Society*, 14, 170–177, 1883.
- [23] G. I. Taylor. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. I. *Proc. R. Soc. Lond. A* 201 : 192–196, 1950
- [24] Lord Kelvin. Hydrokinetic solutions and observations. *Philosophical Magazine*, 42 : 362–377, 1871.
- [25] H. Helmholtz. Über discontinuirliche Flüssigkeitsbewegungen. *Monatsb. K. Akad. Berlin*, 23 :215, 1868.
- [26] K. Balakrishnan, F. Genin, D.V. Nance, S. Menon. Numerical study of blast characteristics from detonation of homogeneous explosives. *Shock Waves*, 20 :147–162, 2010.
- [27] A. L. Kuhl, R. E. Ferguson, A. K. Oppenheim. Gasdynamic model of turbulent exothermic fields in explosions. *Prog. Astronaut. Aeronaut.*, 173 :251–261, 1997.
- [28] F. Volk, F. Schedlbauer. Analysis of post detonation of different explosive charges. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 24(3):182–188, 1999.
- [29] A. L. Kuhl, H. Reichenbach. Combustion effects in confined explosions. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32 :2291–2298, 2009.
- [30] R. Friedman, A. Maček. Ignition and combustion of aluminium particles in hot ambient gases. *Combustion and flame*, 6 :9–19, 1962.
- [31] P. Bucher, R. A. Yetter, F. L. Dryer, E. P. Vicenzi, T. Parr, and D. Hanson-Parr. Condensed-phase Species Distributions about Al Particles Reacting in Various Oxidizers, *Combustion and flame* 117:351–361, 1999.
- [32] V. Sarou-Kanian. Etude expérimentale de la combustion de gouttes d'aluminium en convection forcée : Influence de l'atmosphère gazeuse, PhD thesis, Orléans, 2003.
- [33] Y. Feng, Z. Xia, L. Huang, X. Yan. Experimental investigation on the combustion characteristics of aluminum in air. *Acta Astronautica* 129 : 1–7, 2016.
- [34] J. Servaites, H. Krier, J. Melcher, and R. Burton. Ignition and combustion of aluminium particles in shocked H₂O/O₂/Ar and CO₂/O₂/Ar mixtures. *Combustion and flame*, 125 (1–2): 1040–1054, 2001.
- [35] T. Bazyn, H. Krier, N. Glumac. Combustion of nanoaluminum at elevated pressure and temperature behind reflected shock waves. *Combustion and Flame*, 145(4) :703–713, 2006.
- [36] D. Allen, H. Krier, N. Glumac. Heat transfer effects in nano-aluminum combustion at high temperatures. *Combustion and Flame* 161 295–302, 2014.

- [37] P. Julien, S. Whiteley, M. Soo, S. Goroshin, D. L. Frost, J. M. Bergthorson. *Flame speed measurements in aluminum suspensions using a counterflow burner*, *Proceedings of the Combustion Institute*, Volume 36, Issue 2, 2017.
- [38] R. Lomba. *Utilisation de la combustion métallique dans les machines thermiques*, PhD thesis, Orléans, 2017.
- [39] P. Laboureur. *Caractérisation expérimentale d'une flamme prémélange aluminium/air*. PhD thesis, Orléans, 2023.
- [40] M. Marion. *Étude sur la combustion des particules d'aluminium sous pression*, PhD thesis, Orléans, 1996.
- [41] B. Legrand. *Étude de la combustion de particule d'aluminium et de magnésium : influence de la composition du mélange gazeux et de la pression*, PhD thesis, Orléans, 2000.
- [42] L. Catoire, J.-F. Legendre, and M. Giraud. *Kinetic model for aluminum-sensitized ram accelerator combustion*. *Journal of propulsion and power*, 19(2) :196–202, 2003.
- [43] I. Glassman, R. A. Yetter. *"Combustion" Fourth Edition*, Elsevier Academic Press, 2008.
- [44] D. K. Kuehl. *Ignition and combustion of aluminum and beryllium*. *AIAA Journal*, 3(12): 2239–2247, 1965.
- [45] A. Maček. *Fundamentals of combustion of single aluminum and beryllium particles*. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 11, pages 203–217. Elsevier, 1967.
- [46] R. Wilson Jr, F. Williams. *Experimental study of the combustion of single aluminium particles in O₂/Ar*. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 13, pages 833–845. Elsevier, 1971.
- [47] J. L. Prentice. *Aluminum droplet combustion: rates and mechanisms in wet and dry oxidizers*. Technical report, NAVAL WEAPONS CENTER CHINA LAKE CA, 1974.
- [48] A. Davis. *Solid propellants: the combustion of particles of metal ingredients*. *Combustion and Flame*, 7 :359–367, 1963.
- [49] A. Belyaev, Y. V. Frolov, A. Korotkov. *Combustion and ignition of particles of finely dispersed aluminum*. *Combustion, Explosion and ShockWaves*, 4(3) :182–185, 1968.
- [50] K. Hartman. *Ignition and combustion of aluminum particles in propellant flame gases*. *8th JANNAF Combustion Mtg*, 1 :1–24, 1971.
- [51] A. Braconnier, C. Chauveau, F. Halter, S. Gallier. *Detailed analysis of combustion process of a single aluminum particle in air using an improved experimental approach*. *International Journal of Energetic Materials and Chemical Propulsion*. 17(2) : 111–124, 2020.
- [52] R. O. Foelsche, R. L. Burton, H. Krier. *Ignition and combustion of aluminum particles in H/O/N Combustion Products*. *Journal of propulsion and power*, 14(6) :1001–1008, 1998.
- [53] A. Zenin, G. Kusnezov, V. Kolesnikov. *Physics of aluminum particle combustion at convection*. In *38TH Aerospace Sciences Meeting and exhibit*, page 849, 2000.
- [54] V. Kuryavtsev, A. Sukhov, A. Voronetskii, A. Shpara. *High-pressure combustion of metals (three-zone model)*. *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 15(6) :731–737, 1979.
- [55] D.A. Yagodnikov, A.V. Voronetskii, V.I. Lapitskii. *Flame propagation through an aluminum aerosuspension at reduced pressure*. *Combustion, Explosions, and Shock Waves*, 31:524–531, 1995.

- [56] L. Li, X. Chen, O. Musa, C. Zhou, M. Zhu. The effect of pressure and oxygen concentration on the ignition and combustion of aluminum–magnesium fuel-rich propellant, *Aerospace Science and Technology*, Volume 76, Pages 394–401, ISSN 1270–9638, 2018.
- [57] Y. Feng, Z. Xia, L. Huang, L. Ma. Effect of ambient temperature on the ignition and combustion process of single aluminium particles, *Energy*, Volume 162, Pages 618–629, ISSN 0360–5442, 2018.
- [58] C. Badiola, R. J. Gill, E. L. Dreizin. Combustion characteristics of micron-sized aluminum particles in oxygenated environments. *Combustion and Flame*, 158(10): 2064–2070, 2011
- [59] R. J. Gill, C. Badiola, 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.
- [60] F. Halter, V. Glasziou, M. Di Lorenzo, S. Gallier, C. Chauveau, Peculiarities of aluminum particle combustion in steam, *Proceedings of the Combustion Institute*, 2022,
- [61] K. P. Brooks, M. W. Beckstead. Dynamics of aluminum combustion. *Journal of propulsion and power*, 11(4) :769–780, 1995.
- [62] J. Widener, M. Beckstead. Aluminum combustion modeling in solid propellant combustion products. In 34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit, page 3824, 1998.
- [63] T. Bazyn, H. Krier, N. Glumac. Oxidizer and pressure effects on the combustion of 10-micron aluminum particles. *Journal of propulsion and power*, 21(4) :577-582, 2005.
- [64] P. Lynch, H. Krier, N. Glumac. A correlation for burn time of aluminum particles in the transition regime. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32(2) :1887–1893, 2009.
- [65] 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.
- [66] V. Sarou-Kanian, J.-C. Rifflet, F. Millot, G. Matzen, I. Gökalp. Influence of nitrogen in aluminum droplet combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30(2) :2063–2070, 2005.
- [67] E. L. Dreizin. On the mechanism of asymmetric aluminum particle combustion. *Combustion and flame*, 117(4) :841–850, 1999.
- [68] J. L. Prentice L. Nelson. Differences between the combustion of aluminum droplets in air and in an oxygen–argon mixture. Technical report, NavalWeapons Center, China Lake, Calif. Michelson Labs. ; Sandia Corp , 1967.
- [69] E. Dreizin. Phase changes in metal combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26(1) :57–78, 2000.
- [70] E. Dreizin. Effect of phase changes on metal-particle combustion processes. *Combustion, Explosion and ShockWaves*, 39(6) :681–693, 2003.
- [71] I. Glassman, R. A. Yetter. N.G. Glumac. “Combustion” Fifth Edition, Elsevier Academic Press, 2014
- [72] T. Bazyn, H. Krier, N. Glumac. Evidence for the transition from the diffusion-limit in aluminum particle combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(2): 2021–2028, 2007
- [73] S. Mohan, M. A. Trunov, E. L. Dreizin. On possibility of vapor-phase combustion for fine aluminum particles. *Combustion and Flame*, 156(11) :2213–2216, 2009.
- [74] N. Fuchs. On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica pura e applicata*, 56(1) :185–193, 1963.

- [75] 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.
- [76] R. Kullmer. *Heat transfer from small tungsten spheres into an ambient H₂ atmosphere. Applied Physics B*, 62(2) :191–196, 1996.
- [77] S. Mohan, M. A. Trunov, E. L. Dreizin. *Heating and ignition of metal particles in the transition heat transfer regime. Journal of heat transfer*, 130(10) :104505, 2008.
- [78] 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.
- [79] X. Man, H. Lu, Q. Xu, C. Wang, Z. Ling, *Review on the thermal property enhancement of inorganic salt hydrate phase change materials, Journal of Energy Storage*, Volume 72, Part E, 108699, 2023.
- [80] E. J. Davis, M. F. Buehler, T. L. Ward. *The double-ring electrodynamic balance for microparticle characterization. Review of Scientific Instruments*, 61(4) :1281–1288, 1990.
- [81] E. Bar-Ziv, 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.
- [82] W. H. Hartung, C. T. Avedisian. *On the electrodynamic balance. Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical and Physical Sciences*, 437(1900):237–266, 1992
- [83] W. T. Brande. *The bakerian lecture: on some new electro-chemical phenomena. Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, (104) :51–61, 1814.
- [84] E. L. Dreizin. *Experimental study of stages in aluminium particle combustion in air. Combustion and Flame*, 105(4) :541–556, 1996.
- [85] P. Bucher, R. A. Yetter, F. Dryer, T. Parr, D. Hanson-Parr, E. Viceni. *Flames structure measurement of single, isolated aluminum particles burning in air. In Symposium (International) on Combustion*, v. 26, p. 1899–1908. Elsevier, 1996.
- [86] S. E. Olsen, M. W. Becksteadt. *Burn Time Measurements of Single Aluminum Particles in Steam and CO₂ Mixtures. Journal Of Propulsion And Power* Vol. 12, No. 4, 1996
- [87] C. Rodiet. *Mesure de Température par Méthodes Multi-Spectrales et Caractérisation Thermique de Matériaux Anisotropes par Transformations Intégrales : Aspects Théoriques et Expérimentaux. PhD thesis, Université de Lorraine*, 2014.
- [88] M. Dabos, K. Tran, N. Lecysyn, G. Baudin, M. Genetier, I. Ranc, B. Serio, A. Osmont. *Investigation of alumina's emission in the deflagration of gas-aluminum particles mixtures. Europyro*, 2019.
- [89] C.E. Kolb, M.E. Gersh, "A suggested mechanism for the visible chemiluminescence observed in gas phase aluminum oxidation", *Combustion and Flame*, vol. 25, pp. 31–41, 1975.
- [90] S.B. Oblath, J.L. Gole, "On the Continuum Emissions Observed upon Oxidation of Aluminum and its Compounds ", *Combustion and Flame*, vol. 37, pp. 293–312, 1980.
- [91] S. Rosenwaks, R. E. Steele, H. P. Broida, "Chemiluminescence of AlO", *J. Chem. Phys.*, vol. 63, pp.1963-1966, 1975.
- [92] H. Madura, M. Kastek, T. Piątkowski. *Automatic compensation of emissivity in three-wavelength pyrometers, Infrared Physics & Technology*, Volume 51, Issue 1, 2007

- [93] P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, T.P. Parr, D.M. Hanson-Parr. Plif species and ratiometric temperature measurements of aluminum particle combustion in O₂, CO₂ and N₂O oxidizers, and comparison with model calculations. *Symposium (International) on Combustion*, 27(2) :2421–2429, 1998.
- [94] G. Best. Upper atmosphere temperature determination using AlO bands excited by the sun at twilight. NASA, contract no. NASW-1083, 1967
- [95] H. Partridge, S. R. Langhoff, B. Lensgfield, B. Liu. Theoretical study of the AlO blue-green ($B\ 2\Sigma^+ - X\ 2\Sigma^+$) band system, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 30, no 5, p. 449–462, 1983.
- [96] J. Coxon, S. Naxakis. Rotational analysis of the $B\ 2\Sigma^+ - X\ 2\Sigma^+$ system of the aluminum monoxide radical, AlO, *Journal of Molecular Spectroscopy*, vol. 111, no 1, p. 102–113, 1985.
- [97] A. Osmont, M. Genetier, G. Baudin. Ability of thermochemical calculation to treat organic peroxides. *AIP Conference P*
- [98] 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.
- [99] V.B. Storozhev, A.N. Yermakov, On the interplay of chemical and physical processes during the combustion of aluminum in water vapor, *Russ. J. Phys. Chem. B* 8, 672–679, 2014.
- [100] J. Dubois, E. Grau, T. Tassaing, M. Dumon. On the CO₂ sorption and swelling of elastomers by supercritical CO₂ as studied by in situ high pressure FTIR microscopy. *The Journal of Supercritical Fluids* Volume 131, Pages 150–156, January 2018.
- [101] S. Yuasa, S. Sogo, H. Isoda. Ignition and combustion of aluminum in carbon dioxide streams. In *Symposium (International) on Combustion*, volume 24, pages 1817–1825. Elsevier, 1992.
- [102] B. de B. Darwent. Bond dissociation energies in simple molecules, 1970
- [103] S. Rossi, E. L. Dreizin, C. K. Law. Combustion of aluminum particles in carbon dioxide. *Combustion science and technology*, 164(1) :209–237, 2001.
- [104] C. Josserand, P. Ray, S. Zaleski, Droplet impact on a thin liquid film: Anatomy of the splash. *Journal of Fluid Mechanics*, 802, 775–805, 2016.
- [105] H. Yuan, J. Li, X. He, L. Chen, Z. Wang, and J. Tan, "Study of droplet splashing on a liquid film with a tunable surface tension pseudopotential lattice Boltzmann method", *AIP Advances* 10, 025209, 2020.
- [106] B. J. McBride. NASA Glenn coefficients for calculating thermodynamic properties of individual species, National Aeronautics and Space Administration, John H. Glenn Research Center, 2002.
- [107] D. S. Sundaram, V. Yang, V. E. Zarko. Combustion of nano aluminum particles (Review). *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 51, 173–196. 2015.
- [108] M. Beckstead. A summary of aluminum combustion. Technical report, Brigham Young Univ. Provo Ut, 2004.

Valentin GLASZIOU

Étude expérimentale des mécanismes de combustion de particules d'aluminium en milieu gazeux sous pression

Le domaine de la Défense porte un fort intérêt à l'utilisation de particules d'aluminium dans les explosifs puisqu'elles constituent un vecteur supplémentaire d'énergie. Les particules d'aluminium sont chauffées par l'onde de détonation puis dispersées avec l'expansion des gaz et brûlent dans les produits de détonation et l'air au cours d'une phase appelée postcombustion. Une chaleur supplémentaire est alors produite au sein de la boule de feu, ce qui conduit à augmenter le souffle et rend la boule de feu encore plus lumineuse. La compréhension de la combustion des particules d'aluminium dans ces ambiances particulières intéresse des agences telles que le CEA afin qu'ils puissent l'appréhender au mieux et la modéliser. L'étude fondamentale de la combustion d'une particule d'aluminium a été réalisée sur un lévitateur électrodynamique d'ICARE (CNRS). Des analyseurs optiques permettent de capturer les séquences de combustion et de suivre l'évolution de la réaction en fonction du temps. Des méthodes d'analyse supplémentaires furent développées. Elles portent sur la mesure de la température durant la combustion. Les systèmes mis en place se basent sur la pyrométrie multispectrale et une analyse spectrale des émissions gazeuses de la réaction. Les ambiances étudiées sont principalement composées des espèces retrouvées dans une atmosphère de postcombustion (CO_2 , H_2O et N_2) et aussi dans l'air. L'impact de la pression fut étudié dans l'air et le CO_2 . L'examen des temps de combustion des particules d'aluminium a mené à l'optimisation d'une loi empirique de combustion. Elle permet de déterminer le temps de combustion d'une particule d'aluminium de diamètre connu en fonction des caractéristiques de l'atmosphère qui l'entoure (pression, composition de l'environnement). Ces éléments permettent d'améliorer la description fondamentale du phénomène et d'accroître les capacités de prédiction des codes de simulations

Mots clés : Combustion, Explosif, Aluminium, Lévitateur, Pression, Vapeur d'eau.

Experimental study of the combustion mechanisms of aluminium particles in a pressurised gaseous environment

The defence industry is very interested in the use of aluminium particles in high explosives as they are an additional energy carrier for explosives. The aluminium particles are heated by the detonation wave, then dispersed with the expansion of the gases and burned in the detonation products and air during a phase called afterburning. Additional heat is then generated within the fireball, enhancing the blast and making the fireball even brighter. Understanding the combustion of aluminium particles in these particular environments is of interest to agencies such as the CEA, so that they can better grasp the issues involved. The fundamental study of the combustion of an aluminium particle was carried out on an electrodynamic levitator at ICARE (CNRS). Optical diagnostics were used to capture the combustion sequences and follow the evolution of the reaction as a function of time. Additional analysis methods were developed. These involve measuring temperature during combustion. The systems implemented are based on multispectral pyrometry and spectral analysis of gaseous reaction emissions. The environments studied are mainly composed of species found in an afterburning atmosphere (CO_2 , H_2O and N_2) and also in the air. Another study on the impact of pressure was carried out in the air and in CO_2 . Examination of the combustion times of aluminium particles resulted in the optimisation of an empirical combustion law. This enables the combustion time of an aluminium particle of known diameter to be determined as a function of the properties of the surrounding gas (pressure, composition of the environment). These elements improve the fundamental description of the phenomenon and enhance the predictive capabilities of simulation codes.

Keywords : Combustion, Explosive, Aluminium, Levitator, Pressure, Steam water



CNRS - ICARE
1C, Avenue de la Recherche Scientifique, 45100
Orléans
CEA – Gramat
D14, 46500 Gramat

