HAL
open science

Caractérisation expérimentale d'une flamme prémélangée aluminium / air

Pascal Laboureur

▶ **To cite this version:**

Pascal Laboureur. Caractérisation expérimentale d'une flamme prémélangée aluminium / air. Mécanique [physics.med-ph]. Université d'Orléans, 2023. Français. NNT : 2023ORLE1048 . tel-04019521v2

HAL Id: tel-04019521

https://cnrs.hal.science/tel-04019521v2

Submitted on 2 Apr 2024

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

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

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

ÉCOLE DOCTORALE ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS

Institut de Combustion Aérothermique Réactivité et Environnement (CNRS-ICARE)

THÈSE présentée par :

Pascal LABOUREUR

soutenue le : **21 février 2023**

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

Discipline/ Spécialité : Mécanique & Énergétique

Caractérisation expérimentale d'une flamme prémélangée aluminium / air

THÈSE dirigée par :

Fabien HALTER	Professeur, Université d'Orléans, CNRS-ICARE
Christian CHAUVEAU	Directeur de recherche, CNRS-ICARE

RAPPORTEURS :

Jean-François BRILHAC	Professeur, Université de Haute-Alsace, LGRE
Laurent PERRIN	Professeur, Université de Lorraine, LRGP

JURY :

Laurent SELLE	Directeur de recherche, CNRS-IMFT	**Président du jury**
Pascal BOULET	Professeur, Université de Lorraine, LEMTA	
Clément DUMAND	Ingénieur de recherche, STELLANTIS	

Table des matières

I ***Introduction*** ***3***

I.1.1 *Contexte général* 3

I.2 *Motivation de l'étude* 7

I.3 *Concept de vecteur énergétique métallique* 9

I.4 *Objectifs de la thèse* 13

II ***Combustion de l'aluminium*** ***15***

II.1 *Généralités* 15

II.2 *Cas d'une particule isolée* 16

II.2.1 *Processus d'allumage* 17

II.2.2 *Régimes de combustion* 21

II.2.3 *Fin d'oxydation* 26

II.3 Cas d'une poudre en suspension 30

II.3.1 Mode d'oxydation et produits de combustion 31

II.3.2 Température de flamme 37

II.3.3 Vitesse de flamme laminaire 44

II.4 Bilan bibliographique 49

III ***Dispositif expérimental*** ***51***

III.1 *Principe de fonctionnement* 51

III.2 *Caractérisation de la poudre d'aluminium* 57

III.3 *Propriétés de l'écoulement* 61

III.4 *Appareils de mesure et diagnostics* 64

IV ***Résultats expérimentaux*** ***67***

IV.1 Propriétés des flammes Al / air 67

IV.1.1 Richesse des gaz frais 78

IV.1.2 Structure de flamme et vitesse de propagation laminaire 84

IV.1.3 Température de la phase condensée dans la zone de réaction 100

IV.1.4 Bilan 113

IV.2 Produits de combustion solides 114

IV.2.1 Systèmes de mesure utilisés 114

IV.2.2 Granulométrie des particules 118

IV.2.3 Composition chimique des particules 122

IV.2.4 Bilan 126

IV.3 Rayonnement de l'ensemble flamme / panache 127

IV.3.1 Techniques de mesure expérimentales 127

IV.3.2 Validation de la méthodologie 131

IV.3.3 Mesures issues d'une flamme Al / air 135

IV.3.4 Bilan 147

V Conclusions générales et perspectives 149

Bibliographie 155

Liste des figures 167

Liste des tableaux 179

Chapitre I

Introduction

I.1 Contexte général

Depuis le commencement de notre univers, l'énergie est l'essence même du changement. Elle est le moteur de tout être, de toute chose et de toute transformation des temps modernes. Ainsi, de par notre mode de fonctionnement sociétal actuel, les tendances passées et les prévisions futures démontrent que notre civilisation est piégée dans une situation de dépendance énergétique de plus en plus grande. La figure I.1.1 présente simultanément l'évolution historique de notre consommation énergétique mondiale et sa prédiction envisagée pour les décennies à venir. En raison d'un accroissement démographique planétaire continu et du développement important des pays non membres de l'Organisation de Coopération et de Développement Economiques (OCDE) depuis ces 25 dernières années, la consommation énergétique mondiale ne cesse de croître inexorablement et ne devrait pas infléchir significativement durant ce siècle.

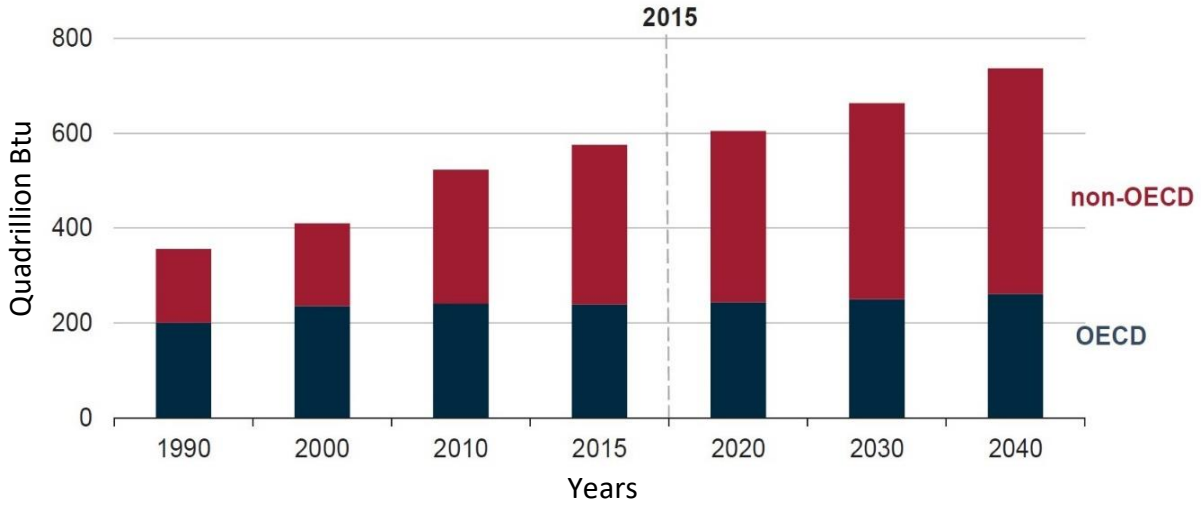


FIGURE I.1.1 – *Évolution historique de la consommation énergétique mondiale et prévisions attendues selon le cas de référence IEO 2017 (IEA, 2017)*

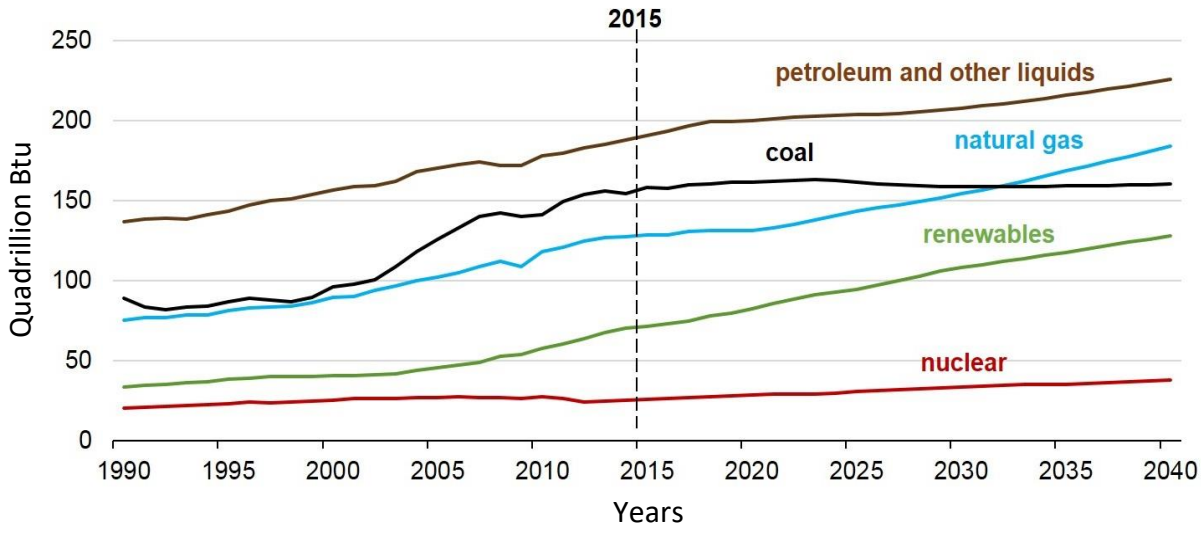


FIGURE I.1.2 – *Évolution historique de la consommation énergétique mondiale par source d'énergie primaire et prévisions attendues selon le cas de référence IEO 2017 (IEA, 2017)*

Néanmoins, notre consommation énergétique est assurée par l'utilisation de différentes sources d'énergie primaire. Historiquement, ce besoin à l'échelle planétaire a été couvert suivant la répartition des sources énergétiques présentée sur la figure I.1.2. La consommation mondiale en énergie était alors d'environ 5,6 Gtep en 1971 et résultait à 86 % de la combustion de produits carbonés traditionnels. Cette même consommation énergétique a été multipliée par 2,5 en moins de 45 ans pour atteindre 14,2 Gtep en 2015, où 82 % de celle-ci provenait toujours de combustibles fossiles. Ainsi, hormis l'émergence des centrales nucléaires pour la production d'électricité, la proportion en énergie primaire issue de la combustion de composés carbonés reste quasiment inchangée depuis un demi-siècle et, selon certains scénarii, pourrait ne pas diminuer de manière notoire dans les prochaines décennies.

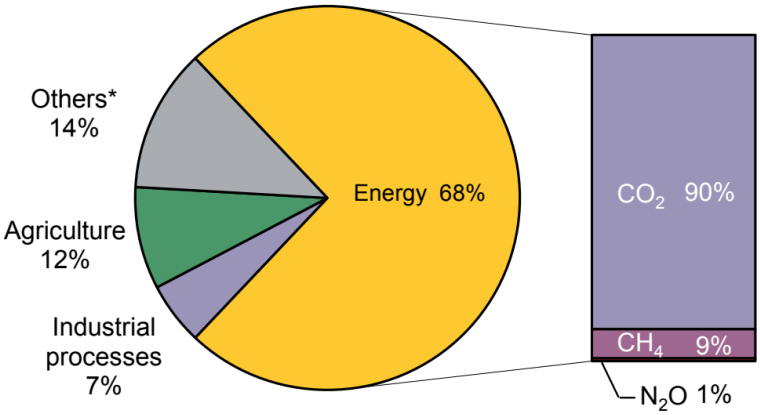


FIGURE I.1.3 – *Répartition des émissions globales de gaz à effet de serre anthropogéniques en 2014 (IEA, 2017)*

Nos besoins énergétiques mondiaux sont donc principalement assurés via l'usage de pétrole, de charbon et de gaz naturel. Au-delà des réserves de produits carbonés fossiles qui s'épuisent progressivement, cette consommation énergétique représente de loin la plus grande source d'émission de gaz à effet de serre à l'échelle planétaire. Les secteurs à l'origine

de ces émissions anthropogéniques et leurs répartitions sont schématisés sur la figure I.1.3. L'utilisation de l'énergie primaire, par exemple dans les domaines du transport ou de la production d'électricité / chaleur, représentait ainsi 68 % des émissions globales de gaz à effet de serre en 2014 et se traduisait principalement par la production de CO_2. À plus petite échelle, l'élevage intensif et les procédés chimiques industriels étaient les autres acteurs de l'effet de serre en rejetant du CH_4, N_2O et des composés gazeux fluorés.

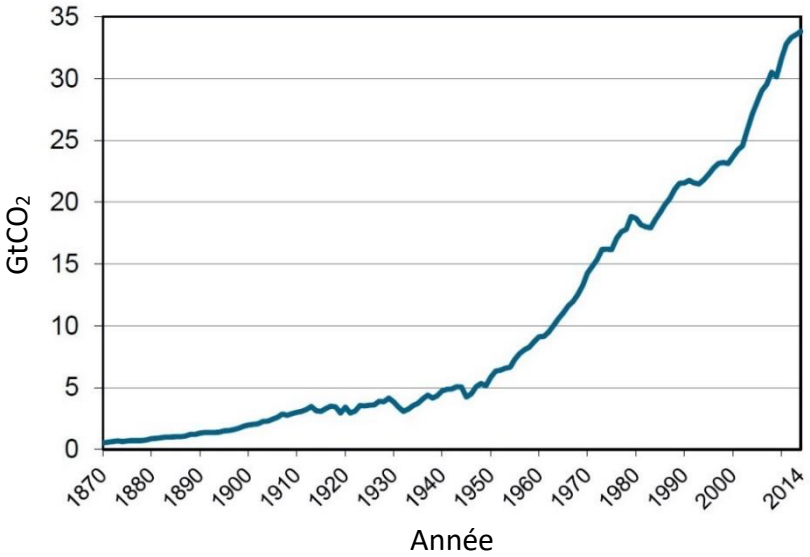


FIGURE I.1.4 – *Évolution des émissions mondiales de $C0_2$ issues de la combustion de combustibles fossiles (IEA, 2017)*

Par conséquent, le choix stratégique dans l'utilisation des sources d'énergie primaire, associé à l'accroisement de la demande énergétique, joue un rôle considérable dans l'évolution des émissions mondiales de gaz à effet de serre anthropogéniques. La figure I.1.4 présente l'évolution historique des émissions mondiales de CO_2 issues de la combustion de combustibles fossiles. Ainsi, ces émissions annuelles ne cessent d'augmenter dramatiquement depuis la révolution industrielle, passant d'une valeur proche de l'unité à 33 $GtCO_2$ générées en 2015. Pilotées par des phénomènes socio-économiques, ces émissions ont été multipliées par 7 lors de ces 65 dernières années avec quelques diminutions locales visibles durant les crises majeures (chocs pétroliers, chute de l'URSS, crise financière asiatique, etc…).

En parallèle de l'accroissement de ces émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère, la température moyenne à la surface du globe s'est progressivement élevée. Le paramètre d'anomalie de température a été adopté afin de caractériser précisément ce réchauffement planétaire et représente la variation de la température par rapport à une période de référence fixée. En se basant sur les données océaniques et terrestres, la figure I.1.5 illustre l'évolution moyenne de cette anomalie de température pour la période de référence entre 1951 et 1980. Il s'avère que cet écart de température globale s'est renforcé continuellement durant ces 35 dernières années et la zone particulièrement impactée par ces montées en température se situe dans l'hémisphère nord. En 2015, une augmentation générale de 0,87°C à la surface du globe était constatée par rapport à la période précédemment citée et l'élévation locale de la température pouvait dépasser 2,5°C au niveau de l'hémisphère nord.

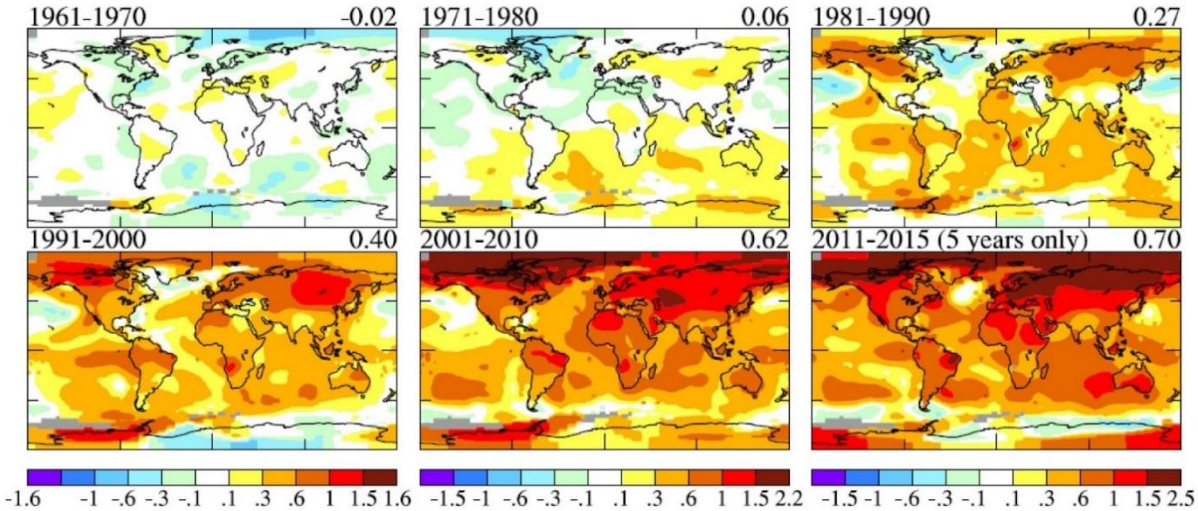


FIGURE I.1.5 – *Évolution moyennée par décennie de l'anomalie de température globale de surface basée sur la période de référence entre 1951 et 1980 (Hansen, 2016)*

Cette hausse de la température terrestre moyenne engendre des conséquences notamment la fonte permanente des glaciers et de la banquise arctique. Au fil des décennies, une réduction croissante de la glace pérenne, c'est-à-dire la couverture de glace qui ne fond pas au cours de l'année, a été observée. La figure I.1.6 présente des vues satellites de l'hémisphère nord et illustre l'évolution historique de la glace pérenne dans cette région du globe. La superficie minimale de glace sur l'océan Arctique était mesurée à 7 millions de kilomètres carrés en 1980 et n'était plus que de 3,4 millions de kilomètres carrés en 2012.

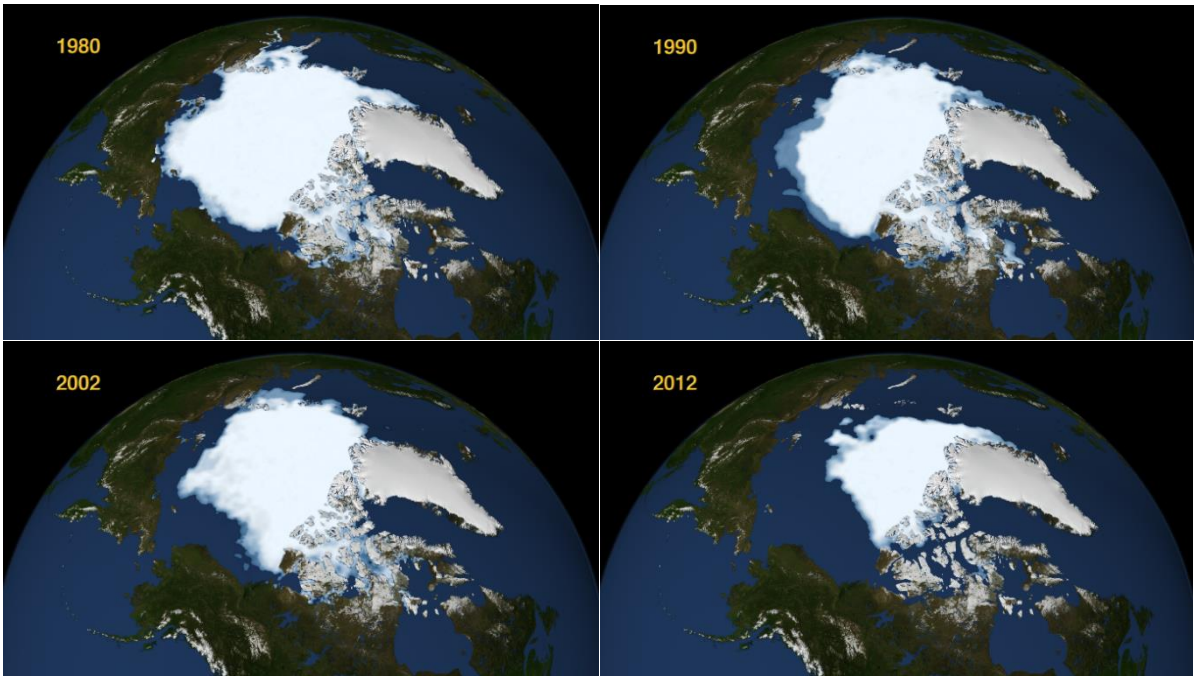


FIGURE I.1.6 – *Évolution annuelle du minimum de glace sur l'océan Arctique de 1979 à 2012 (source : NASA/Goddard Space Flight Center Scientific Visualization Studio, https://svs.gsfc.nasa.gov/3991)*

De plus, les 19000 glaciers du monde perdent en moyenne 335 milliards de tonnes de glace par an sur les dernières décennies, représentant ainsi une perte totale de 9625 Gt de glace entre 1961 et 2016 (Zemp, 2019). Le corollaire direct de ce phénomène est l'augmentation du niveau des océans d'environ 3,2 mm par an depuis plus de 15 ans (Church, 2011), menaçant ainsi l'implantation de certaines populations. Mais ces événements ont également pour effet d'élever la température, de changer la salinité et d'acidifier les océans. Depuis l'ère industrielle, les océans ont absorbé environ 30 % des émissions anthropogéniques cumulées de CO_2, provoquant une augmentation de 26 % de la concentration en ions hydrogène et diminuant le pH de l'eau de mer de 0.1 (IPCC, 2018). L'ensemble de tous ces changements climatiques et environnementaux génère alors un risque pour la biodiversité.

En conséquence de ces diverses observations et constatations, la communauté scientifique s'accorde à dire que l'activité humaine est le principal facteur du changement climatique et du réchauffement planétaire depuis le milieu du 20ème siècle (IPCC, 2013).

I.2 Motivation de l'étude

La possibilité d'une aggravation irréversible du dérèglement climatique et du réchauffement planétaire durant ce siècle représente un risque majeur pour l'humanité et l'écosystème dans lequel nous vivons. Les conséquences pourraient être désastreuses si aucune action n'est entreprise collectivement à l'échelle mondiale, pouvant alors conduire à des effets tels que la multiplication des catastrophes naturelles, la migration environnementale de certaines populations, l'accentuation des inégalités sociales dans le monde ou encore l'extinction massive de la biodiversité.

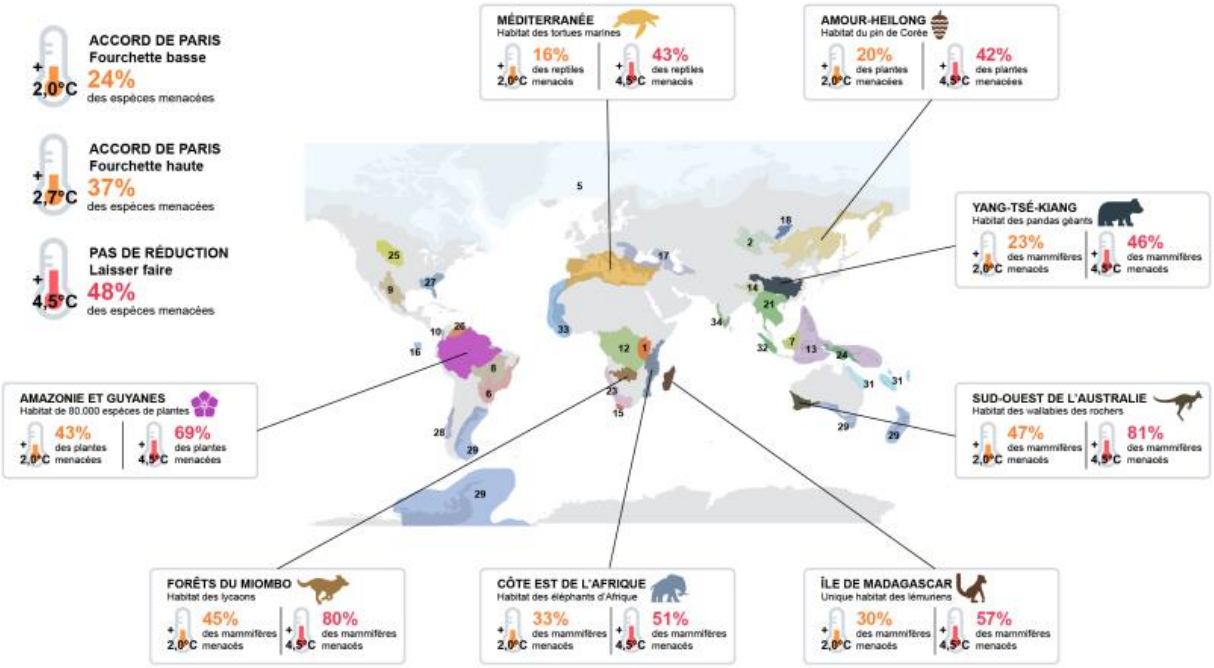


FIGURE I.2.1 – *Estimation des espèces menacées d'extinction d'ici 2080 pour différents scénarii sur l'anomalie de température prévue en 2100 (WWF, 2018)*

La figure I.2.1 présente des estimations de l'impact du niveau de température en 2100 sur la biodiversité. Il se pourrait alors que 24 % des espèces vivantes sur terre soient menacées d'extinction d'ici 2080 pour une élévation moyenne prévue à la fin du siècle de 2°C par rapport à la période préindustrielle. Néanmoins, pour une anomalie de température de +4,5°C en 2100, cette valeur pourrait doubler pour atteindre 48 % des espèces animales et végétales risquant l'extinction. Ces chiffres alarmistes peuvent s'expliquer notamment à travers l'écart de vitesse entre la modification de l'environnement à l'échelle mondiale et la capacité d'évolution des espèces pour s'adapter à un changement. Face à ces enjeux cruciaux, un premier engagement universel pour le climat et le réchauffement planétaire a été ratifié lors de la COP21 de 2015. Appelé accord de Paris, celui-ci ambitionne de limiter l'élévation de la température moyenne en 2100 à 2°C par rapport à la période préindustrielle (Rhodes, 2016).

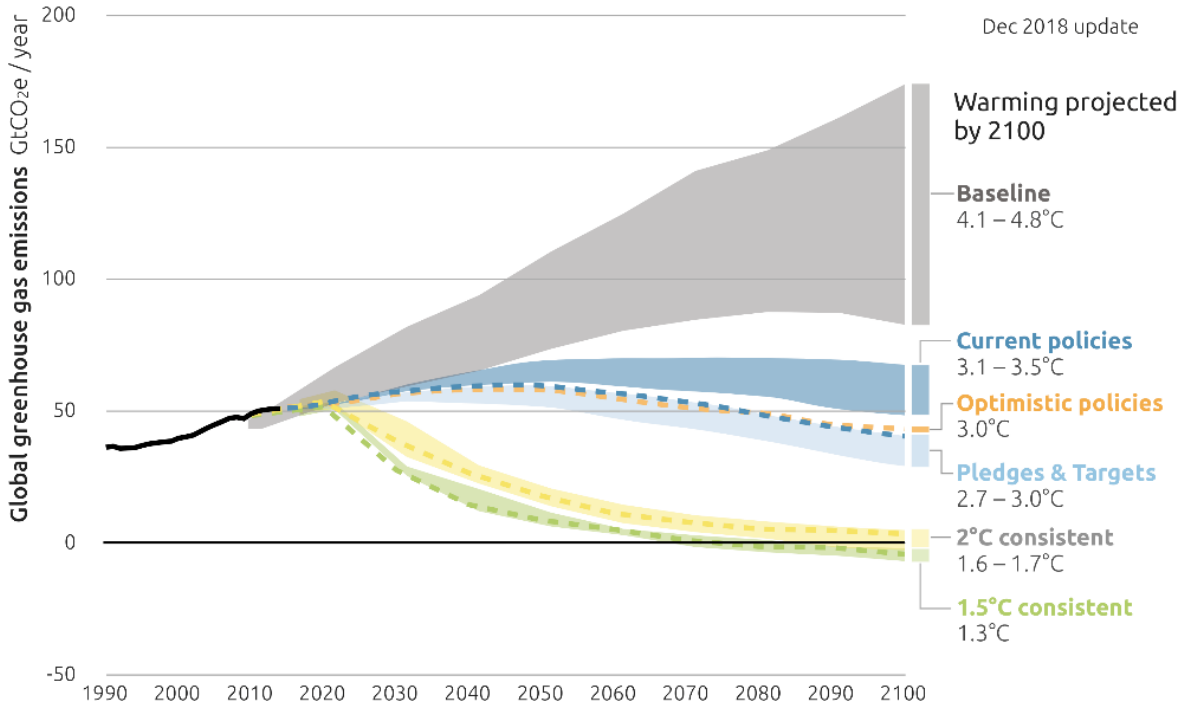


FIGURE I.2.2 – *Évolution historique des émissions nettes de gaz à effet de serre et tendances nécessaires pour atteindre différents seuils de réchauffement en 2100 (CAT, 2018)*

La figure I.2.2 illustre la tendance des émissions de gaz à effet de serre nettes générées par l'activité humaine selon différents scénarii et leurs impacts sur le niveau de température associé en 2100. En poursuivant les politiques écologiques actuellement mises en place dans le monde, l'anomalie de température estimée à la fin du siècle serait supérieure à +3°C. Pour respecter l'accord de Paris, il est alors nécessaire de diminuer drastiquement nos émissions de gaz à effet dans l'atmosphère et d'atteindre à minima d'ici 2100 l'équilibre entre nos émissions brutes annuelles et la capacité de notre planète à accumuler / transformer ces gaz. Agir sur différents leviers, comme l'amélioration continue de l'efficience des systèmes industriels ou limiter les gâchis énergétiques et alimentaires, est indispensable pour atteindre cet objectif. C'est donc un changement progressif de nos modes de production et de consommation qui est requis pour les décennies à venir. En parallèle de ces actions, nos besoins énergétiques ne doivent plus être couverts par l'utilisation de combustibles fossiles mais plutôt par l'énergie solaire, hydraulique et éolien.

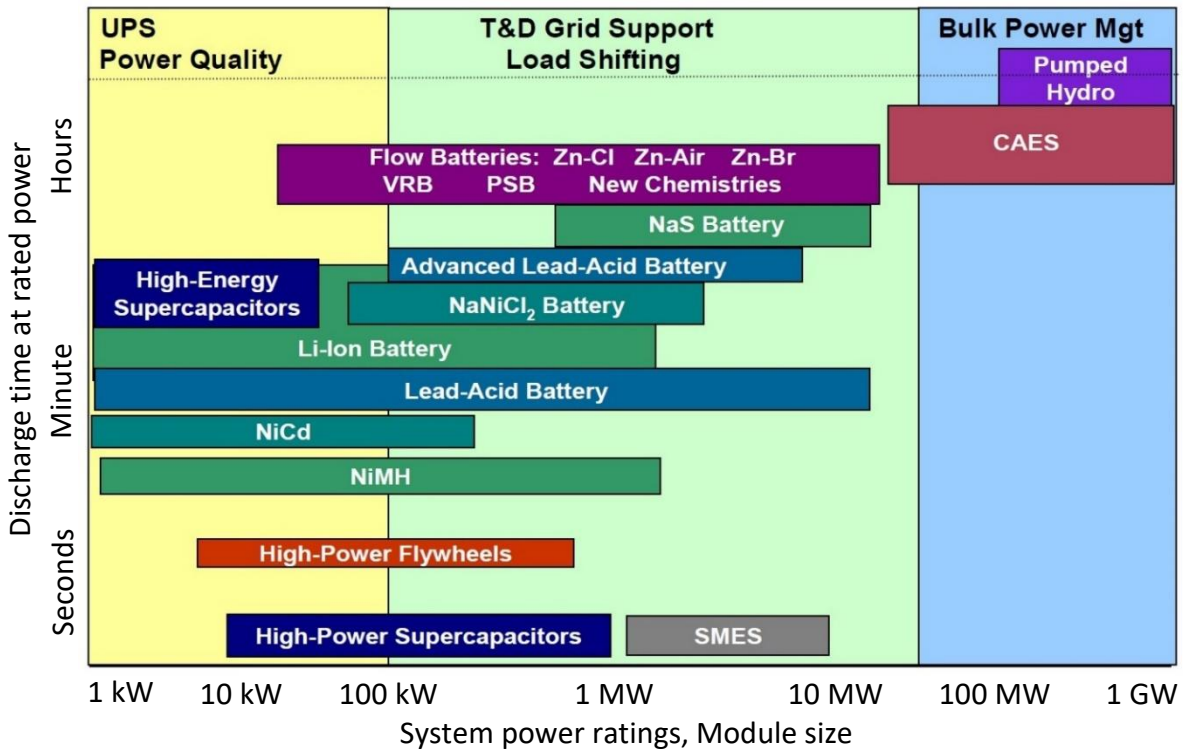


FIGURE I.2.3 – *Champs d'application des différents moyens de stockage existant selon leurs caractéristiques énergétiques (EPRI, 2010)*

Néanmoins, l'intermittence de toutes ces sources d'énergies renouvelables freine la transition énergétique et les systèmes existants ne peuvent être une réponse immédiate en raison d'un approvisionnement en énergie irrégulier et difficilement ajustable à nos besoins (Ibrahim, 2008). Le développement généralisé des solutions décarbonées nécessite alors de pallier à ces intermittences grâce à un stockage massif de l'énergie résultante. La figure I.2.3 présente les différents moyens actuellement utilisés pour stocker l'énergie et leurs caractéristiques associées. Il s'avère que les méthodes de stockage à fortes capacités reposent principalement sur le pompage hydraulique ou la compression d'air et restent dérisoires en comparaison de la consommation énergétique dans le monde. La transition énergétique, indispensable dans les prochaines décennies pour préserver au maximum notre écosystème, implique alors la recherche d'un nouveau vecteur énergétique propre et durable.

I.3 Concept de vecteur énergétique métallique

Le défi de ce siècle consiste alors à mettre en œuvre un vecteur énergétique qui utilise directement les différentes sources d'énergies renouvelables afin de faire chuter nos émissions de gaz à effet de serre à l'échelle planétaire. Au-delà de l'aspect vertueux et durable, ce nouveau vecteur doit répondre à plusieurs problématiques telles que le stockage énergétique et la mobilité de l'énergie. Une solution possible pourrait consister en l'utilisation de métaux, où l'énergie serait stockée sous forme chimique et véhiculée à travers des poudres métalliques.

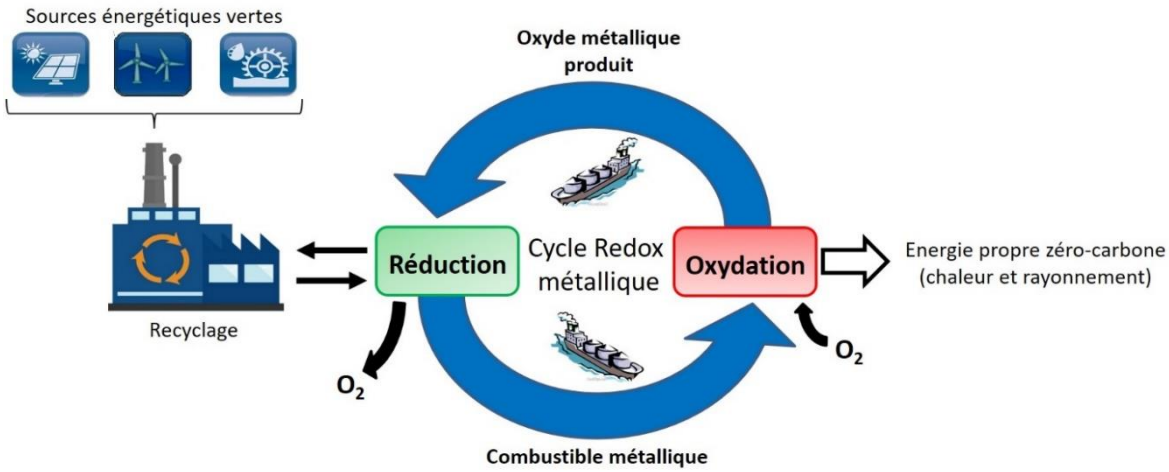


FIGURE I.3.1 – *Illustration du concept de vecteur énergétique métallique*

La figure I.3.1 schématise macroscopiquement le concept de ce vecteur énergétique métallique. Il est alors composé de deux grandes parties distinctes, le stockage de l'énergie et la restitution de celle-ci. La première phase du vecteur consiste à stocker l'énergie primaire issue des sources renouvelables en réalisant une réduction de l'oxyde métallique pour former un métal pur. Une fine couche d'oxydation passive se crée ensuite naturellement en surface et permet de préserver les propriétés énergétiques du métal dans le temps, garantissant ainsi une flexibilité dans la distribution de l'énergie aux points d'utilisation. Lors de la deuxième phase de ce vecteur, l'énergie stockée chimiquement dans le métal est restituée sous la forme de chaleur et de rayonnement grâce à une oxydation. L'oxyde métallique résultant de la combustion est collecté pour être régénéré à nouveau en métal pur, formant alors un cycle itératif simple basé sur un fonctionnement en boucle fermée. Tant que le vecteur énergétique métallique est alimenté par des énergies vertes, celui-ci se veut théoriquement durable, renouvelable et propre, c'est-à-dire sans création de déchets et émission de gaz à effet de serre sur l'ensemble de son cycle.

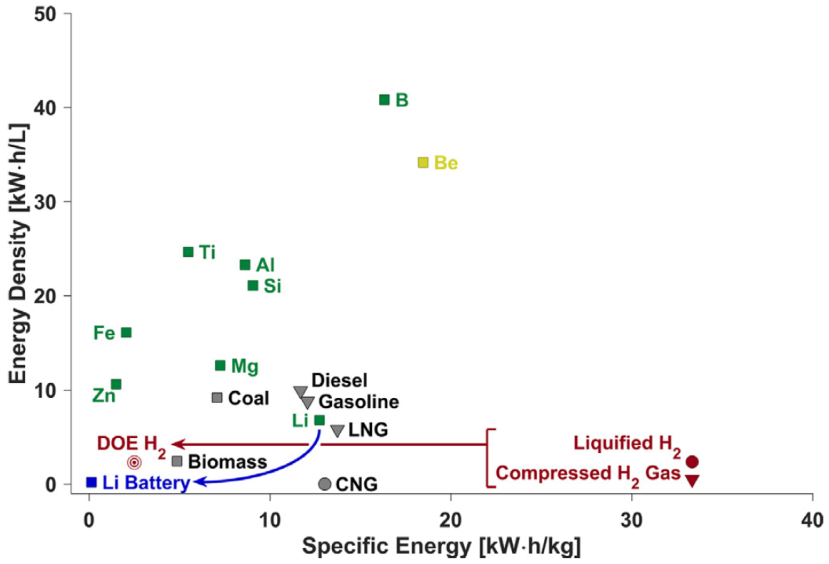


FIGURE I.3.2 – *Comparaison des propriétés énergétiques de différents combustibles (Bergthorson, 2015)*

Néanmoins, pour que ce vecteur soit viable, le combustible métallique doit pouvoir réagir avec l'oxygène de l'air, ne pas être toxique ou radioactif et ne pas générer d'émission de CO_2 lors de la réduction de son oxyde. En considérant ces différentes contraintes, 7 métaux peuvent potentiellement être utilisés comme vecteur énergétique métallique (Julien, 2017) : Bore, Magnésium, Aluminium, Silicium, Titane, Fer et Zinc. La figure I.3.2 présente le pouvoir calorifique et la densité énergétique de différents combustibles. Il s'avère que les métaux possèdent globalement de bonnes propriétés énergétiques, avec une importante compacité du stockage de l'énergie par voie chimique. Même si certains métaux ont déjà fait l'objet de recherches pour un usage en tant que vecteur énergétique métallique, comme le fer (McRae, 2019), le lithium (Schiemann, 2016) ou encore le magnésium (Laraqui, 2020), c'est l'aluminium qui a été retenu pour cette étude. En effet, celui-ci est le 3ème élément le plus abondant de la croûte terrestre, pouvant alors couvrir l'ensemble de nos besoins mondiaux en énergie, et bénéficie de caractéristiques énergétiques comparables aux carburants traditionnels.

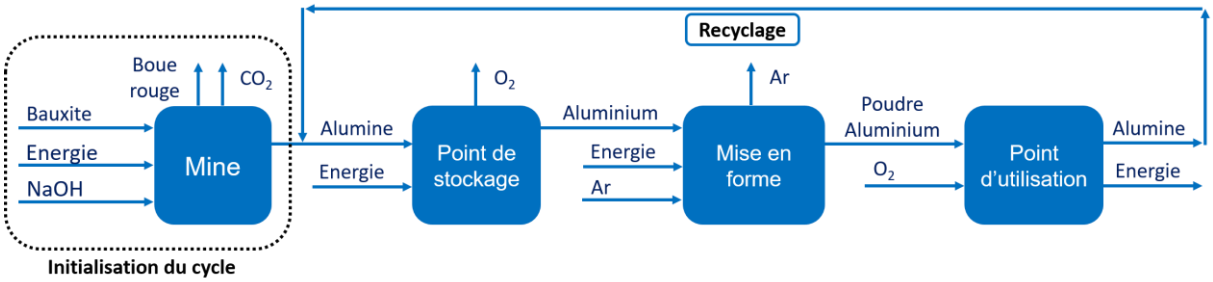


FIGURE I.3.3 – *Description du vecteur énergétique métallique basé sur l'aluminium*

Le vecteur énergétique métallique basé sur l'aluminium peut se décrire suivant la représentation graphique de la figure I.3.3. Cette schématisation présente une phase d'initialisation, correspondant à l'extraction de l'oxyde d'aluminium à partir de la bauxite, pour fournir la matière première essentielle au fonctionnement du vecteur. Cette phase est actuellement issue d'un procédé industriel peu écologique, mais s'imposerait uniquement en cas de nouvelle demande. Pour un besoin énergétique constant, l'impact ponctuellement néfaste de la phase d'initialisation devient alors progressivement négligeable avec l'utilisation du vecteur, pouvant fonctionner durant un nombre de cycles illimité.

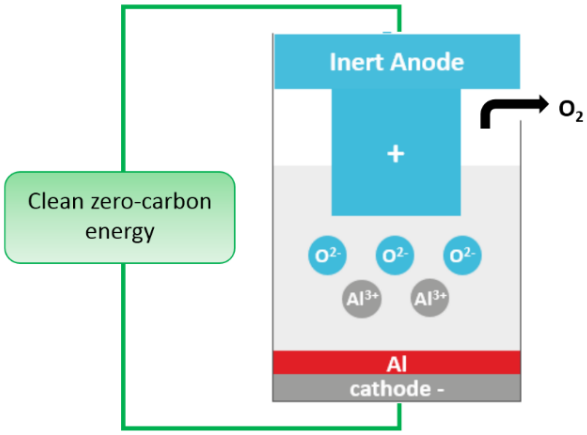


FIGURE I.3.4 – *Schématisation du processus de réduction par électrolyse de l'alumine sans l'émission de CO_2 (Keniry, 2001)*

La première partie du vecteur énergétique présenté sur la figure I.3.3 consiste à stocker chimiquement de l'énergie à partir de la réduction de l'alumine afin de former de l'aluminium. L'électrolyse par anode inerte pourrait être une méthode envisageable afin d'effectuer cette réaction sans rejeter de CO_2 dans l'atmosphère. La figure I.3.4 schématise ce processus de réduction, où l'anode traditionnellement en graphite serait remplacée par une céramique ou un composé métallique à base de Cu-Al ou Cu-Ni-Fe. Selon l'anode utilisée lors de ce procédé, l'aluminium produit sans émission de gaz à effet de serre pourrait obtenir une pureté supérieure à 99,70 % (Helle, 2014).

L'aluminium généré est ensuite mis en forme pour obtenir une poudre et augmenter par la suite sa surface d'échange avec le milieu oxydant, favorisant alors la réactivité globale du combustible métallique. La production de cette poudre est réalisée grâce à l'atomisation de l'aluminium à l'état liquide dans un environnement d'argon (Kuhn, 2012). Une fois à l'air libre, une fine couche d'oxydation passive se crée à la surface de ces particules et la fraction massique de cette oxydation naturelle au sein de la poudre dépendant directement de la granulométrie des particules générées. Globalement, cette oxydation passive représente une plus grande part de la masse de la poudre quand celle-ci est fine.

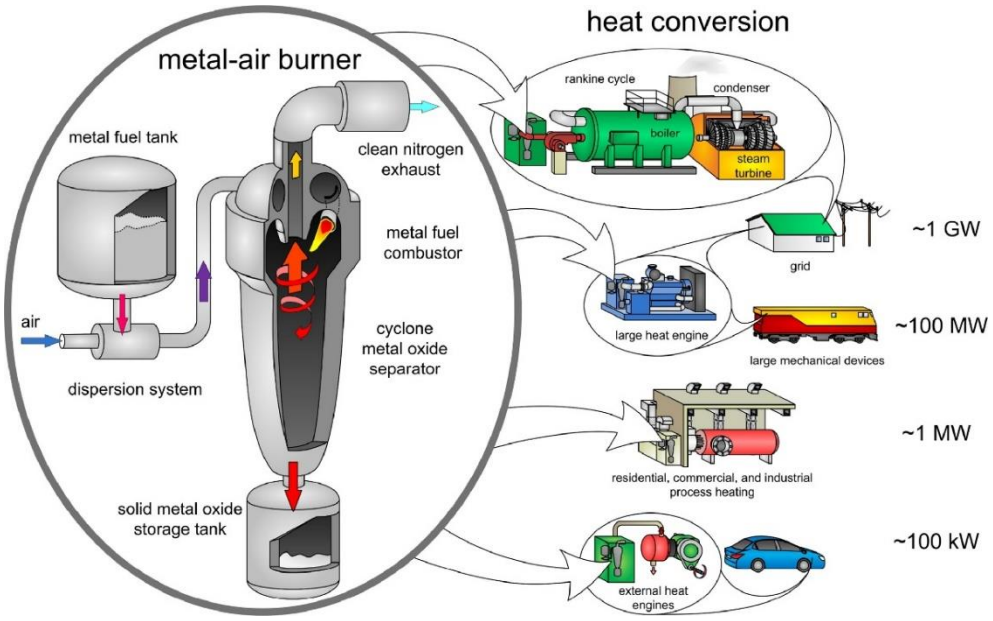


FIGURE I.3.5 – *Exemple de convertisseur énergétique fonctionnant aux poudres métalliques et appliqué à différents domaines industriels (Bergthorson, 2018)*

Après avoir acheminé la poudre d'aluminium jusqu'aux points d'utilisation, la dernière étape du vecteur énergétique présenté sur la figure I.3.3 consiste à libérer l'énergie stockée précédemment grâce à l'oxydation de cette poudre. La figure I.3.5 illustre un concept de convertisseur énergétique où la poudre d'aluminium subirait une combustion avec de l'air et la flamme métallique deviendrait alors une source de chaleur et de rayonnement. La restitution de cette énergie pourrait intervenir dans la production d'électricité ou de chaleur, mais également fournir une énergie mécanique de rotation pour des applications de mobilité. Quel que soit le domaine industriel, l'oxyde d'aluminium issu de la combustion devra toujours être récupéré afin de poursuivre un chemin de recyclage et boucler le vecteur énergétique pour itérer à nouveau ce cycle.

I.4 Objectifs de la thèse

Le vecteur énergétique métallique semble théoriquement cohérent et robuste, pouvant alors être une solution envisageable dans les décennies à venir pour pallier aux intermittences des énergies renouvelables et respecter les objectifs de l'accord de Paris. Néanmoins, le potentiel de ce vecteur reste encore à être démontré dans sa globalité et certains verrous techniques et scientifiques subsistent dans les phases de stockage et de restitution de l'énergie.

Le principal objectif de cette thèse expérimentale est de participer à l'évaluation des capacités de ce vecteur à restituer l'énergie chimiquement stockée dans la poudre métallique en se focalisant sur l'étape d'oxydation des particules. Afin de s'inscrire dans une approche industrielle, le métal choisi pour caractériser cette phase de restitution du vecteur énergétique est l'aluminium. Ces travaux vont alors s'appuyer simultanément sur l'étude microscopique et macroscopique d'une flamme issue d'un mélange de poudre d'aluminium et d'air. Cette flamme purement métallique sera générée et stabilisée en champ libre grâce à un brûleur de type Bunsen, dont la conception a été réalisée lors d'une précédente thèse (Lomba, 2016). Néanmoins, dans le souci d'améliorer constamment le dispositif expérimental, des contraintes techniques supplémentaires ont été ajoutées en développant un système d'extraction et de filtration des fumées. Celui-ci fonctionne sur une gamme de températures élevées et repose sur un filtre à particules aériennes à haute efficacité, permettant ainsi de collecter l'ensemble de l'alumine solide produite par la combustion et de potentiellement poursuivre le cycle du vecteur énergétique.

De manière générale, les études portant sur la combustion d'un nuage de particules métalliques sont assez récentes historiquement et les flammes multiphasiques qui en découle restent encore globalement méconnues par rapport aux flammes d'hydrocarbures traditionnelles. Les objectifs de cette thèse consistent alors en la caractérisation des propriétés fondamentales de la flamme métallique et l'estimation de paramètres nécessaires au dimensionnement d'un convertisseur énergétique basé sur l'utilisation de la poudre d'aluminium. Afin de répondre à ces problématiques, le manuscrit et les travaux associés se décomposent selon la chronologie suivante :

- La première étape consiste à qualifier l'écoulement prémélangé à la sortie du brûleur en renseignant notamment la vitesse et le niveau de turbulence de celui-ci, l'homogénéité du mélange particules / air et la richesse en aluminium durant la phase de combustion. Le but est alors de connaître le plus fidèlement possible les conditions rencontrées par le front de flamme Al / air.

- Ensuite, les propriétés fondamentales de la flamme métallique, telles que la géométrie de la zone de réaction ou la vitesse de flamme laminaire en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans l'écoulement, sont évaluées afin de cartographier la réactivité de l'aérosol. D'une manière plus microscopique, la combustion à l'échelle particulaire est également étudiée grâce à l'analyse des températures de la phase condensée présente dans la zone de réaction.
- Les produits de combustion solides générés après le front de flamme Al / air sont aussi collectés directement dans le panache des gaz brûlés. L'étude de leurs tailles et

compositions chimiques fournit alors des informations directes sur le mode de combustion subi par ces particules d'aluminium et le rendement de combustion global associé à la poudre métallique utilisée. Ces données sont également nécessaires pour concevoir un système de filtration efficace et industriellement viable.

- La dernière étape de ces travaux consiste à mesurer le rayonnement émis vers l'extérieur par la flamme Al / air et son panache chargé en particules d'alumine. L'objectif final est d'estimer la part rayonnée par l'ensemble flamme / panache en fonction de la richesse en aluminium et d'évaluer la répartition énergétique globale entre les différents modes de transfert de chaleur. L'ensemble de ces résultats permettra ainsi de conclure sur la capacité du vecteur énergétique métallique à restituer l'énergie stockée chimiquement dans le métal pur.

Chapitre II

Combustion de l'aluminium

II.1 Généralités

Les premiers travaux référencés sur la combustion de l'aluminium portaient sur la mesure de la température d'allumage et du temps de combustion d'une particule isolée, avec un diamètre compris entre 15 et 67 µm, grâce un brûleur à flamme plate fonctionnant avec un mélange C_3H_8 / O_2 / N_2 (Freidman, 1962). Historiquement, l'essor de ces études provenait des secteurs industriels de l'armement et du spatial avec le développement de moteurs à propergol solide enrichis en particules métalliques. En effet, les performances de ces systèmes sont directement liées aux conditions de pression et de température atteintes au sein de ce type de moteur. L'utilisation d'un propergol traditionnel de type PA (Perchlorate d'Ammonium) / PBHT (PolyButadiène HydroxyTéléchélique) génère ainsi une température de flamme d'environ 2200 K (Lengelle, 2000). Néanmoins, grâce aux propriétés énergétiques des particules d'aluminium micrométriques, un Butalane (68% PA, 14% PBHT et 18% Al en fraction massique) augmente la température des gaz propulsifs d'environ 1000 K et, par conséquent, accroît directement l'impulsion spécifique du système et la poussée de son moteur.

Initialement, la combustion d'une particule d'aluminium micrométrique était assimilée à la phénoménologie régissant la vaporisation d'une goutte de carburant traditionnel, où le temps de combustion de la particule liquide t_c était décrit par la relation suivante dans l'hypothèse d'un nombre de Lewis unitaire (Law, 1982) :

$$t_c = \frac{\rho_l \,.\, {D_0}^2}{8 \,.\, \rho_g \,.\, \mathcal{D}_g \,.\, ln(1+B)} \qquad \text{(II.1.1)}$$

où D_0 est le diamètre initial de la particule, B correspond au nombre de Spalding caractérisant les transports diffusifs dans la phase gazeuse, ρ_g et $\mathcal{D}_g$ sont respectivement la masse volumique et la diffusivité des gaz ambiants et ρ_l représente la masse volumique de la goutte liquide. Néanmoins, la présence d'oxyde métallique à la surface des particules d'aluminium joue un rôle majeur dans la combustion de celles-ci et engendre des écarts notables dans la phénoménologie de l'oxydation. Plusieurs modes de combustion existent à l'échelle de la particule et son processus d'oxydation peut évoluer significativement durant la combustion.

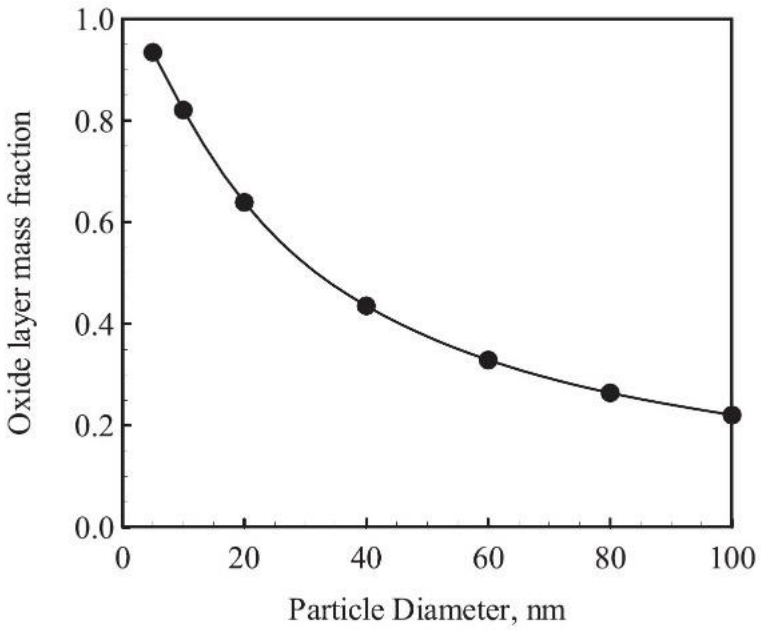


FIGURE II.1.1 – *Impact de la taille des particules d'aluminium sur la fraction massique de la couche d'oxyde naturellement présente sur la particule métallique (Sundaram, 2017)*

Cette couche d'oxydation passive naturellement présente à la surface des particules métalliques est constituée d'alumine amorphe et devient métastable au-delà d'une épaisseur critique (Jeurgens, 2000). Ainsi, son épaisseur est globalement constante quel que soit la taille de la particule d'aluminium et celle-ci a été estimée entre 2 et 4 nm pour des particules nanométriques (Risha, 2007) ou micrométriques (Campbell, 1999). Comme illustré sur la figure II.1.1, ce phénomène induit une composition chimique différente de la particule selon sa taille, avec un impact particulièrement important pour les particules nanométriques. À titre de comparaison, une particule d'aluminium avec un diamètre d'environ 7 µm possède une fraction massique d'alumine inférieure à 0,5 % (Lomba, 2016). La première conséquence directe de cette couche d'alumine réside dans la dégradation des propriétés énergétiques de la poudre d'aluminium avec la diminution en taille des particules. L'autre caractéristique liée à ce phénomène correspond à l'existence de plusieurs modes d'allumage pour ces particules.

II.2 Cas d'une particule isolée

L'étude de la combustion de l'aluminium à l'échelle particulaire remonte aux origines des travaux expérimentaux dans le domaine. Une seule particule micrométrique était injectée dans les gaz brûlés reconstituant les produits de décomposition d'un propergol à travers un brûleur à flamme plate (Maček, 1967). Ensuite, les dispositifs expérimentaux se sont complexifiés davantage afin de permettre l'analyse des phénomènes physico-chimiques mis en jeu durant l'oxydation de la particule métallique, notamment grâce à l'utilisation de systèmes comme l'enceinte de combustion à chute libre (Bucher, 1999) ou le lévitateur aérodynamique (Marion, 1996). Dans le but de s'affranchir de ces effets convectifs supplémentaires, la combustion d'une particule micrométrique a également été observée en microgravité (Assovskiy, 1999) ou à l'aide d'un lévitateur électrostatique (Braconnier, 2018). D'autres études plus atypiques existent sur l'aluminium comme la caractérisation de la

combustion d'un échantillon du métal disposé sur un support physique (Feng, 2016), d'un cylindre millimétrique dans l'air (Yuasa, 1997) ou encore d'un fil micrométrique sous un flux laminaire d'oxydant (Merzhanov, 1967).

II.2.1 Processus d'allumage

Toutes les particules d'aluminium possèdent donc naturellement une couche d'alumine passive à leur surface, empêchant la réaction chimique entre le métal pur et le milieu oxydant ambiant. Ainsi, pour des conditions de pression standards dans l'air, l'élévation en température de la particule est nécessaire pour amorcer le processus d'oxydation. Ce phénomène d'allumage dépend alors de la température de fusion et de vaporisation de l'aluminium, respectivement à 933 K et 2791 K (Steinberg, 1992), et de la température de fusion de l'alumine estimée à 2320 K (Kreith, 1967). L'autre paramètre majeur durant la phase de chauffage de la particule concerne la masse volumique du métal. En effet, celle-ci évolue de 2700 kg/m^3, pour l'aluminium solide à 298 K, à 2370 kg/m^3 pour l'aluminium liquide à 933 K et varie ensuite selon les relations approchées suivantes (Metals Handbook, 1979) :

$$\underline{\text{Pour } 933\ K\ > T > 2500\ K:} \qquad \rho_{Al} = 2462 + 0{,}0322\,.T - 0{,}00013\,.T^2 \qquad \text{(II.2.1)}$$

$$\underline{\text{Pour } 2500\ K\ > T > 2793\ K:} \qquad \rho_{Al} = 3236 - 0{,}604\,.T \qquad \text{(II.2.2)}$$

où ρ_{Al} est la masse volumique de l'aluminium exprimée en kg/m^3 et T correspond à la température moyenne du métal en Kelvin. La différence entre les températures de fusion de l'aluminium et de son oxyde, couplée à la dilatation du métal pur dans une coque sphérique solide, engendre alors des contraintes au sein de la particule durant sa phase de chauffage.

Le dernier élément impactant la phénoménologie d'amorçage de la combustion est la fraction massique d'alumine en surface dans la composition chimique globale de la particule. La figure II.2.1 présente les différents modes d'allumage possibles pour une particule d'aluminium recouverte par son oxyde métallique et les mécanismes d'oxydation associés.

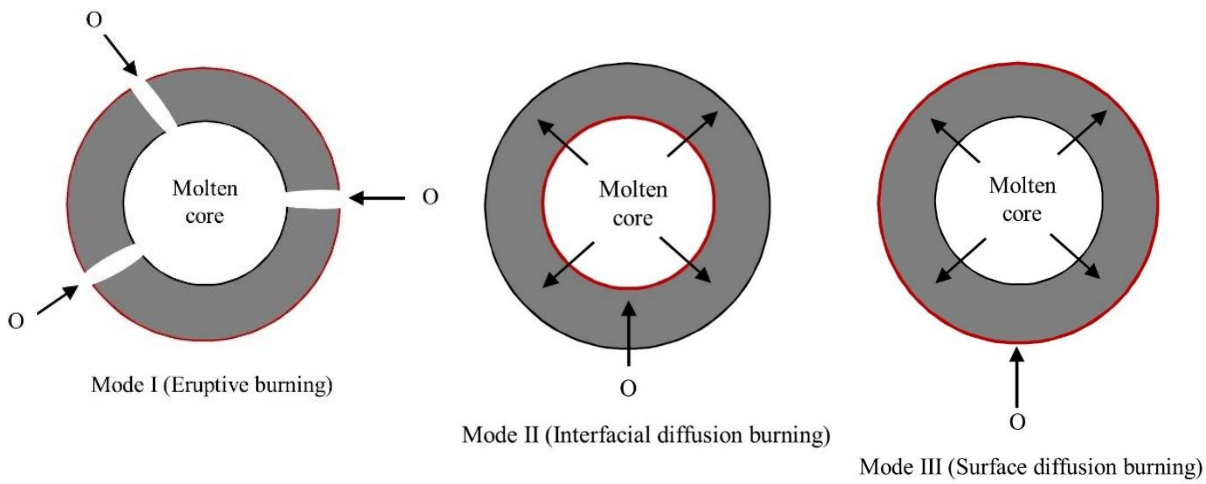


FIGURE II.2.1 – *Schématisation des différents modes d'oxydation possibles durant la phase d'allumage d'une particule d'aluminium (Sundaram, 2016)*

Le premier mode d'allumage d'une particule d'aluminium consiste à supposer que sa couche d'oxyde métallique est rigide et cassante. Le relâchement des contraintes internes générées par la dilatation du cœur d'aluminium fondu n'est pas suffisant et la couche d'alumine se fracture à la surface de la particule. Sous l'effet de la pression, l'aluminium liquide se répand alors à travers les fissures / ouvertures créées dans la couche d'oxyde pour atteindre la surface de la particule (Parr, 2003). L'exposition du métal pur à un environnement oxydant engendre ainsi des réactions chimiques et le dégagement de chaleur associé peut entraîner l'inflammation des particules d'aluminium nanométriques en raison de leurs faibles masses à chauffer.

A contrario, les deux autres modes d'allumage d'une particule d'aluminium consistent à supposer que sa couche d'alumine est flexible et relâche les contraintes de pression interne soit par déformation, soit par diffusion de l'aluminium à travers la couche d'oxyde métallique. Dans ces deux configurations, la couche d'alumine ne craque pas et l'oxydation de la particule se caractérise uniquement par la diffusion massique des espèces à travers cette couche non réactive. En fonction des coefficients de diffusion des molécules oxydantes et de l'aluminium, les réactions chimiques peuvent s'établir à la surface externe de la particule ou alors à l'interface entre le cœur d'aluminium liquide et l'enveloppe solide de l'alumine. Cependant, le processus de diffusion de l'aluminium à travers la couche d'oxyde métallique s'accélère lors de la fusion du cœur d'aluminium, où ce paramètre augmente de deux ordres de grandeur entre 600 K et 2000 K (Henz, 2010), correspondant également à une hausse considérable du taux d'oxydation de la particule d'aluminium.

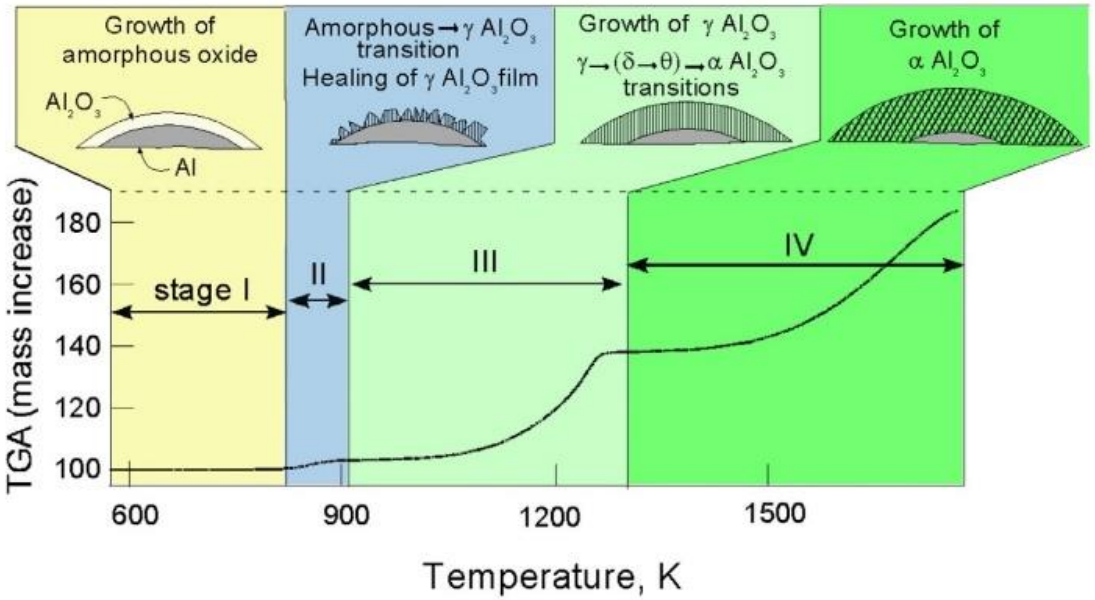


FIGURE II.2.2 – *Caractérisation des étapes d'oxydation d'une particule d'aluminium, possédant un diamètre entre 10 et 14 µm, par mesure thermogravimétrique (Trunov, 2006)*

Néanmoins, la diffusion massique des éléments à travers la couche d'alumine limite les réactions chimiques et ne permet pas d'initier l'allumage des particules d'aluminium micrométriques en raison d'une masse à chauffer trop importante. La figure II.2.2 présente le processus d'oxydation d'une de ces particules, possédant un diamètre entre 10 et 14 µm, durant des analyses thermogravimétriques. Malgré une oxydation totale de l'aluminium dans

l'air, la puissance thermique libérée par les réactions chimiques n'est pas suffisante pour initier une combustion autoentretenue de la particule métallique. Son oxydation est alors lente, progressivement pilotée par des changements de phases de la couche d'alumine solide et les taux de diffusion des différentes espèces en présence.

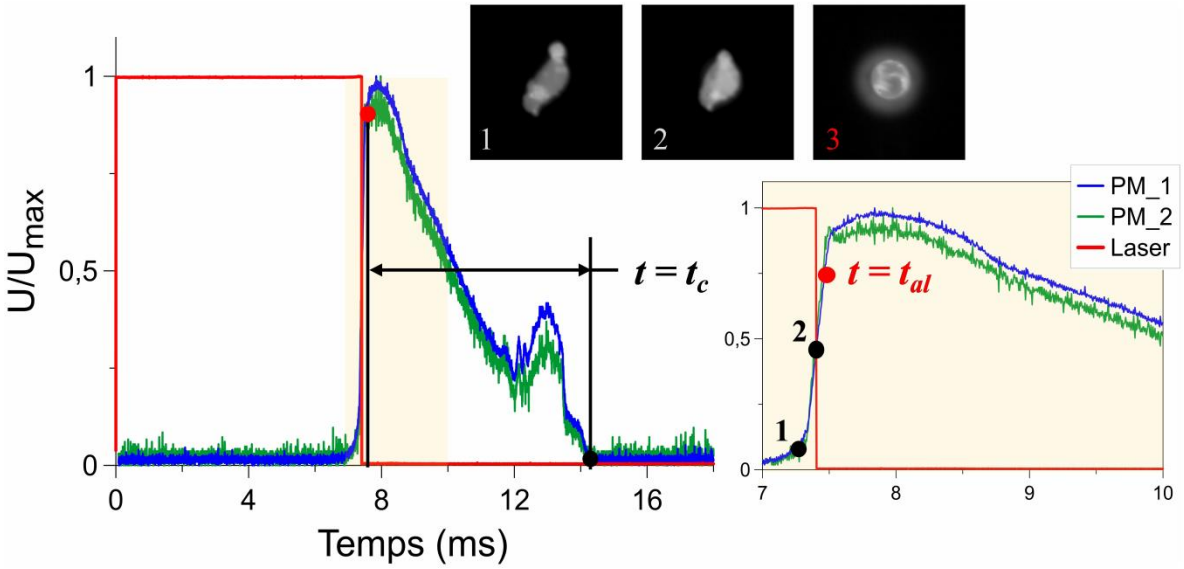


FIGURE II.2.3 – *Séquence d'allumage d'une particule micrométrique en lévitation dans l'air grâce à l'utilisation d'un laser CO_2 (Braconnier, 2020)*

Une dernière possibilité existe concernant le phénomène d'allumage d'une particule d'aluminium et repose sur un mixte de différents mécanismes d'oxydation précédemment introduits. Dans cette configuration, certaines parties de la couche d'alumine peuvent se déformer, permettant ainsi une atténuation des contraintes internes, alors que d'autres régions conduisent à la création de fissures dans cette couche d'oxyde métallique solide. La figure II.2.3 présente la séquence d'allumage d'une particule d'aluminium micrométrique, en lévitation dans de l'air à 293 K et sous une pression ambiante de 1 bar, grâce à l'utilisation d'un laser CO_2. Initialement patatoïde, cette particule possède un diamètre équivalent de 65 µm. Le laser apporte une puissance de chauffage suffisante pour enclencher les premières réactions d'oxydation et accroît la température de la particule d'aluminium pour atteindre la deuxième image présentée sur la figure II.2.3. À cette étape, l'alumine semble toujours solide, mais la particule a déjà subi des déformations importantes sous l'effet de la fusion du cœur d'aluminium, suggérant également la création de fissures / ouvertures dans la couche d'oxyde métallique. Une fois le laser coupé et sans apport d'énergie supplémentaire, seules les réactions hétérogènes de surface permettent alors de poursuivre l'élévation en température de la particule jusqu'au point de fusion de l'alumine, où la particule devient parfaitement sphérique. L'aluminium et son oxyde n'étant pas miscibles à l'état liquide, l'alumine se rétracte ensuite pour former un lobe à la surface de la particule sous les effets de la tension superficielle, estimée à 0,606 N/m à son point de fusion (Ikemiya, 1993).

Dans le processus d'allumage d'une particule d'aluminium, la contribution relative entre le mode par craquelage de la couche d'alumine et celui par diffusion d'espèces semble dépendre de différents facteurs tels que la taille de la particule, impactant directement le rapport entre la couche d'oxyde métallique et le volume du noyau d'aluminium pur, la

composition chimique du milieu oxydant ou encore la vitesse de chauffage. La figure II.2.4 présente une synthèse des résultats expérimentaux portant sur la température d'allumage d'une particule dans l'air en fonction de sa taille. Ainsi, la température d'allumage des particules nanométriques tend vers la température de fusion de l'aluminium, où le passage de l'état solide à liquide du métal est suffisant pour provoquer des fissures dans la couche d'alumine et amorcer une combustion autoentretenue. A contrario, pour l'allumage des grosses particules micrométriques possédant un diamètre supérieur à 100 µm, les premières réactions d'oxydation ne sont pas assez importantes pour élever la température de la particule et cela nécessite de la chauffer jusqu'au point de fusion de l'alumine.

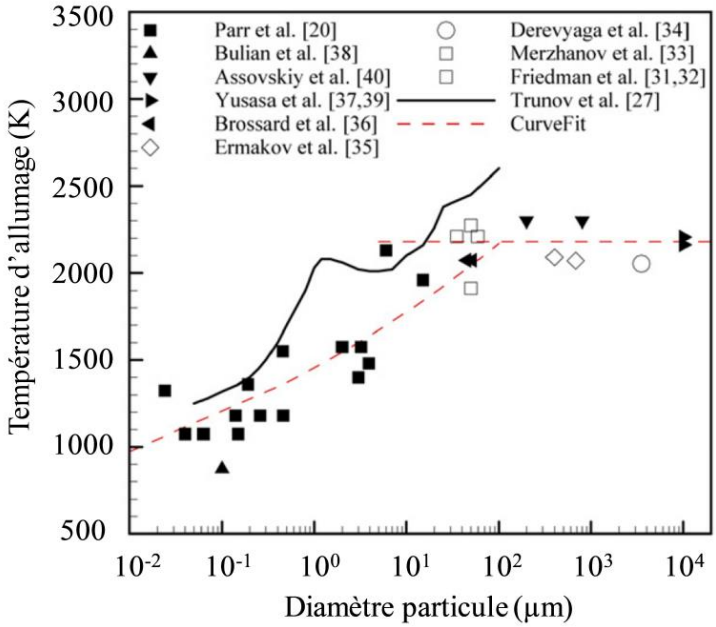


FIGURE II.2.4 – *Synthèse des résultats expérimentaux portant sur la température d'allumage d'une particule d'aluminium en fonction de sa taille (Huang, 2009)*

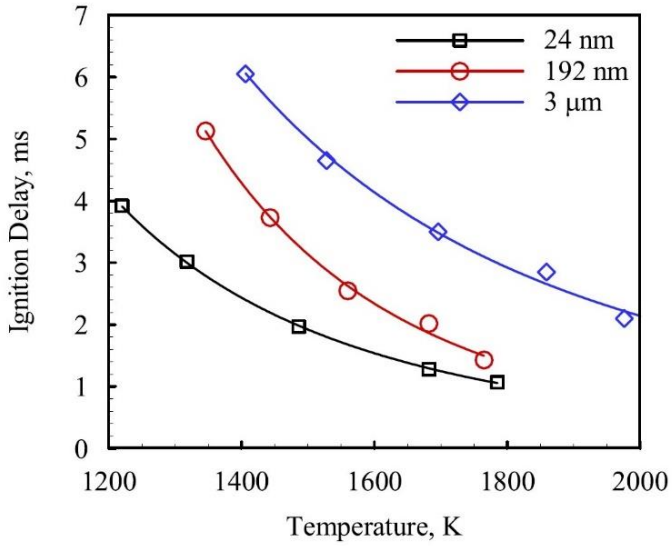


FIGURE II.2.5 – *Influence de la température de l'oxydant gazeux sur le délai d'allumage d'une particule d'aluminium pour différentes tailles (Parr, 2003)*

Néanmoins, les différentes températures d'allumage présentées ci-dessus restent à modérer et dépendent également du délai d'allumage souhaité pour les particules d'aluminium. La figure II.2.5 présente l'influence de la température du milieu ambiant sur le délai d'allumage de ces particules pour différentes granulométries. L'augmentation de cette température génère davantage de contraintes thermomécaniques au sein de la particule et favorise l'émergence simultanée des différents modes d'oxydation, entraînant alors des réactions chimiques accrues afin d'amorcer plus rapidement une combustion autoentretenue.

II.2.2 Régimes de combustion

Le processus de combustion d'une particule métallique produit généralement un seul oxyde métallique majoritaire. Les modes d'oxydation possibles durant cette phase de combustion dépendent alors directement des propriétés physiques et thermodynamiques du métal et de son oxyde généré. Ainsi, lorsque la température de la zone de réaction est inférieure à celle de vaporisation du métal pur, l'oxydation de la particule se limite exclusivement à des réactions hétérogènes de surface comme pour la combustion du Zirconium (Ewald, 2000). Dans l'hypothèse contraire, le métal pur se vaporise et la combustion de la particule peut être pilotée par la diffusion des espèces gazeuses, générant alors une flamme détachée de la surface de la particule métallique. Néanmoins, la température de cette flamme peut être conditionnée par l'oxyde métallique produit par la réaction chimique et résulte de l'équation suivante (Glassman, 2014) :

$$\Delta H_{vap}^{Ox} + \left(H_{T_{vap}}^{0} - H_{T_{réf}}^{0}\right) > \Delta H_{comb,T_{réf}}^{0} \qquad \text{(II.2.3)}$$

où ΔH_{vap}^{Ox} est l'enthalpie de vaporisation / dissociation de l'oxyde métallique formé, $\left(H_{T_{vap}}^{0} - H_{T_{réf}}^{0}\right)$ équivaut à l'enthalpie nécessaire pour amener cet oxyde d'une température de référence à sa température de vaporisation et $\Delta H_{comb,T_{réf}}^{0}$ correspond à l'énergie libérée par la combustion du métal avec le retour des produits de réaction à $T_{réf}$. Si le critère de Glassman est respecté, alors la température régnant au sein de la zone de réaction T_f est bornée simultanément par la température de vaporisation du métal $T_{vap}^{métal}$ et celle de l'oxyde métallique formé T_{vap}^{Ox} :

$$T_{vap}^{Ox} > T_f > T_{vap}^{métal} \qquad \text{(II.2.4)}$$

Concernant la combustion d'une particule d'aluminium, le principal oxyde métallique formé lors des réactions d'oxydation est l'alumine alpha (α-Al_2O_3). En considérant un milieu oxydant composé d'air à la température de 298 K et à pression atmosphérique, l'enthalpie standard de formation de ce type d'alumine est de 1676 kJ/mol alors que $\Delta H_{vap}^{Al_2O_3} + \left(H_{T_{vap}}^{0} - H_{298\,K}^{0}\right) = 2550$ kJ/mol (Glassman, 2014). Ainsi, lors de la combustion d'une particule d'aluminium, la température au sein de la zone de réaction sera toujours inférieure à la température de vaporisation / dissociation de l'alumine.

Néanmoins, ce critère ne suffit pas pour caractériser les phénomènes complexes mis en jeu durant la phase de combustion d'une particule métallique. La figure II.2.6 schématise

les différents modes d'oxydation possibles pour l'aluminium, ainsi que leur impact sur la phénoménologie de combustion et les niveaux de température associés.

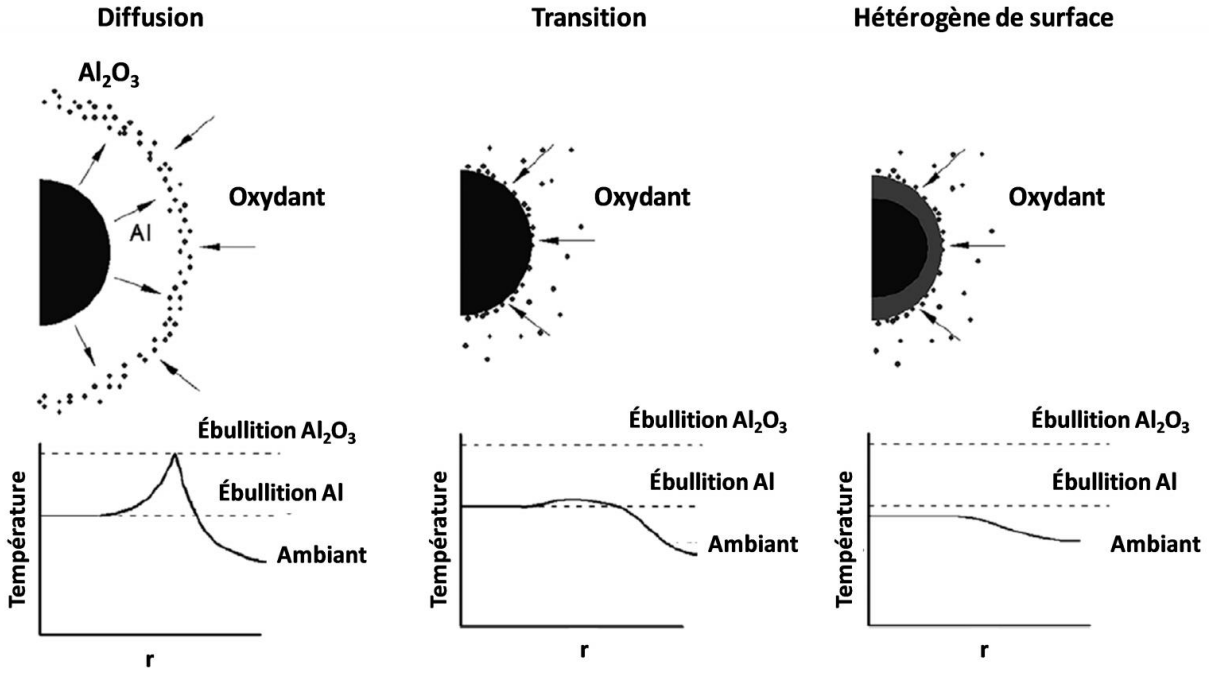


FIGURE II.2.6 – *Schématisation des modes d'oxydation possibles durant la phase de combustion d'une particule d'aluminium (Bazyn, 2007)*

Malgré des énergies d'activation faibles lorsque le métal est à l'état gazeux dans un milieu oxydant (Catoire, 2003), il est possible que la combustion soit contrôlée par la diffusion massique des espèces gazeuses. Ainsi, dans l'hypothèse où le lobe d'alumine reste négligeable sur le taux d'évaporation de l'aluminium, le temps caractéristique de combustion lié aux phénomènes de diffusion $\tau_{b,diff}$ se traduit par l'expression suivante (Glassman, 2014) :

$$\tau_{b,diff} = \frac{\rho_p \,.\, D_p^2}{8 \,.\, \rho_g \,.\, \mathcal{D}_g \,.\, \ln(1 + i \,.\, m_{Ox})} \tag{II.2.5}$$

où ρ_p et D_p correspondent respectivement à la masse volumique et au diamètre initial de la goutte métallique, ρ_g et $\mathcal{D}_g$ sont la masse volumique et la diffusivité massique du milieu ambiant, i équivaut au coefficient stœchiométrique massique et m_{Ox} correspond à la fraction massique d'oxygène dans les gaz environnants.

A contrario, le temps caractéristique de combustion est piloté par la cinétique chimique $\tau_{b,cin}$ lorsque le temps de diffusion massique des espèces gazeuses est largement inférieur à celui de réaction. Dans l'hypothèse où les réactions hétérogènes de surface sont au premier ordre dans la consommation massique de la goutte d'aluminium, et que le temps de diffusion est négligeable par rapport au taux de réaction chimique, alors ce temps caractéristique de combustion est décrit par la relation suivante (Glassman, 2014) :

$$\tau_{b,cin} = \frac{\rho_p \,.\, D_p}{2 \,.\, i \,.\, \rho \,.\, k_s \,.\, m_{Ox}} \tag{II.2.6}$$

où k_s correspond au taux de réaction hétérogène par unité de surface suivant une loi d'Arrhénius. Cependant, cette équation reste valable uniquement si l'effet du lobe d'alumine est négligeable sur le taux de réaction chimique à l'échelle de la goutte d'aluminium. Dans le cas d'un nombre de Lewis unitaire, le nombre de Damköler Da traduit alors directement cette compétition entre les mécanismes cinétiques réactionnels et ceux issus des phénomènes diffusifs durant la phase de combustion :

$$Da = \frac{\tau_{b,diff}}{\tau_{b,cin}} = \frac{D_p \,.\, i \,.\, k_s \,.\, m_{Ox}}{4 \,.\, \mathcal{D}_g \,.\, \ln(1 + i \,.\, m_{Ox})} \tag{II.2.7}$$

Au-delà de la température, de la pression et de la composition chimique du milieu oxydant, la taille de la particule d'aluminium influence fatalement le taux de réaction et le régime de combustion associé. Ainsi, l'oxydation de l'aluminium a lieu en phase vapeur lorsque que le diamètre de la particule est suffisamment grand, c'est-à-dire $Da \gg 1$. Dans cette configuration, la particule se présente sous la forme d'une goutte d'aluminium avec un lobe d'alumine liquide à sa surface provenant de la couche initiale d'oxyde métallique. À l'instar de l'image présentée sur la figure II.2.7, une microflamme de diffusion s'établit de manière concentrique à la particule. Cette zone de réaction est alors détachée de la surface de la goutte et l'oxydation finale des sous-oxydes d'aluminium conduit à la formation d'un nuage de particules d'alumine liquide nanométriques, où la température adiabatique régnant dans cette région tend vers la température de vaporisation / dissociation de l'oxyde métallique. Lors de la combustion d'une particule d'aluminium micrométrique sous ce régime d'oxydation dans l'air à pression atmosphérique, le diamètre de cette microflamme est environ 3,6 fois plus important que celui de la goutte métallique (Braconnier, 2020).

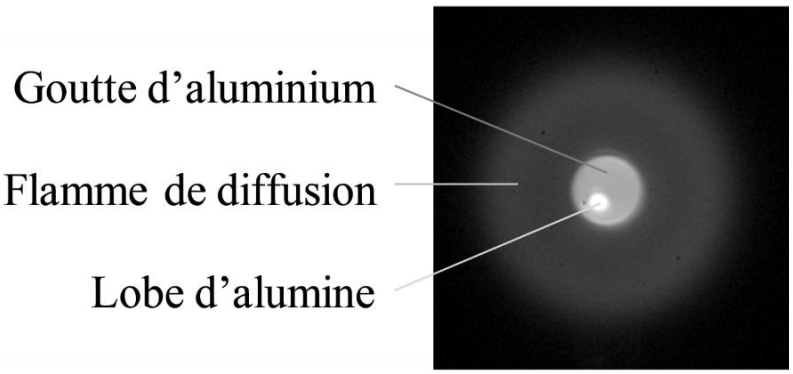


FIGURE II.2.7 – *Image d'une particule d'aluminium micrométrique, en combustion dans l'air à pression atmosphérique, obtenue par visualisation directe (Braconnier, 2020)*

A contrario, l'oxydation de l'aluminium est contrôlée par la cinétique chimique lorsque le diamètre de la particule est suffisamment petit, c'est-à-dire $Da \ll 1$. Dans cette configuration, la particule d'aluminium se trouve à l'état liquide avec l'alumine également sous la forme d'un lobe à sa surface. En effet, une couche d'oxyde métallique solide induirait des réactions chimiques peu nombreuses et la combustion de la particule ne pourrait pas être maintenue sans apport d'énergie extérieur. Ainsi, sans cette couche d'alumine protectrice, le métal pur est directement exposé au milieu oxydant et favorise les réactions hétérogènes de surface sur l'ensemble de la goutte. La température de flamme régnant à la surface de la particule est alors inférieure à celle de vaporisation de l'aluminium, soit entre 2320 et 2971 K,

et le produit de combustion généré par l'oxydation est de l'ordre de grandeur de la particule initiale. La figure II.2.8 présente une séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium micrométrique dans un environnement 100% CO à pression atmosphérique, subissant une oxydation contrôlée uniquement par des réactions hétérogènes de surface.

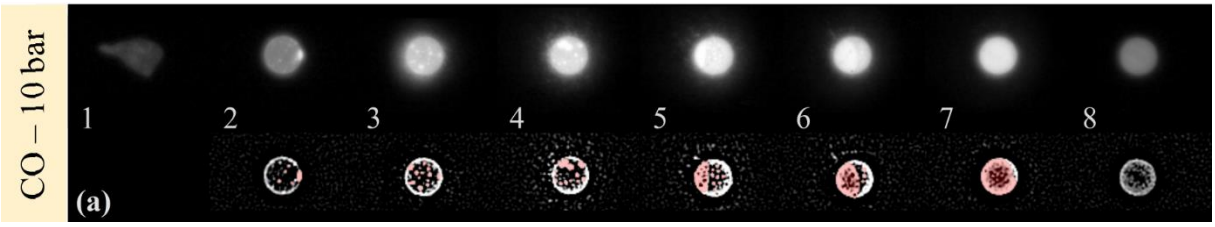


FIGURE II.2.8 – *Séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium micrométrique dans un environnement CO à pression atmosphérique (Braconnier, 2020)*

Le dernier mode d'oxydation durant la phase de combustion d'une particule d'aluminium consiste en un mode de transition lorsque $Da \sim 1$. Celui-ci se traduit par une combinaison des phénomènes observés lors des réactions en phase vapeur et hétérogènes à la surface de la goutte. Pour des particules isolées brûlant dans l'air à pression atmosphérique, des simulations numériques ont montrées que la microflamme de diffusion ne peut subsister uniquement grâce à un dégagement de chaleur supplémentaire provenant de réactions hétérogènes de surface pour des gouttes d'aluminium avec un diamètre inférieur à 10 µm (Bojko, 2014). La température de flamme est alors légèrement supérieure à celle de vaporisation de l'aluminium pur et les produits de combustion résultant de l'oxydation sont un mélange de particules nanométriques et micrométriques.

Néanmoins, l'échelle caractéristique du libre parcours moyen dans le gaz environnant l doit être prise en compte afin d'obtenir une représentation plus fidèle des phénomènes mis en jeu lors du processus de combustion. Celle-ci s'exprime selon l'équation suivante :

$$l = \frac{k_B \,.\, T_\infty}{\sqrt{2} \,.\, \pi \,.\, D_m^2 \,.\, P_\infty} \tag{II.2.8}$$

où P_∞ et T_∞ sont respectivement la pression et la température du milieu ambiant, k_B est la constante de Boltzmann et D_m correspond au diamètre moléculaire des éléments constituant le gaz environnant. La comparaison entre la taille de la particule d'aluminium et cette longueur du libre parcours moyen permet alors de définir plus précisément la transition entre un régime d'oxydation par diffusion et celui contrôlé par des réactions hétérogènes de surface (Mohan, 2009). Le paramètre résultant de cette comparaison correspond au nombre de Knudsen Kn et se caractérise par la relation suivante :

$$Kn = \frac{2 \,.\, l}{D_p} \tag{II.2.9}$$

Lorsque le diamètre de la goutte d'aluminium est largement supérieur à l'échelle caractéristique du libre parcours moyen, c'est-à-dire $Kn \ll 1$, la particule peut être considérée comme un élément macroscopique dans l'environnement gazeux et son régime d'oxydation contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses dépend du modèle continu. La

figure II.2.9 schématise, dans un environnement oxygéné, la combustion d'une particule d'aluminium sous ce régime d'oxydation. Ce modèle simplifié suppose alors un effet négligeable du lobe d'alumine présent à la surface de la goutte. L'équation de conservation de la masse établie au niveau de la microflamme conduit à la relation suivante :

$$\dot{m}_{Al_2O_3} = \dot{m}_{evap} + \dot{m}_{O_2} \cong 1{,}89 \,.\, \dot{m}_{evap} \qquad \text{(II.2.10)}$$

où $\dot{m}_{Al_2O_3}$ est le débit massique d'alumine produit au sein de la microflamme, $\dot{m}_{evap}$ équivaut au débit massique d'aluminium perdu par évaporation au niveau de la goutte métallique et $\dot{m}_{O_2}$ correspond au débit massique d'oxygène consommé pour une réaction stœchiométrique. Ainsi, l'énergie libérée par les réactions chimiques dans cette microflamme de diffusion est distribuée, dont une partie est absorbée par la goutte d'aluminium et le reste est dissipé vers l'environnement extérieur. Dans l'hypothèse où le rayonnement de la goutte serait négligé, l'équilibre thermodynamique de la combustion se traduit par l'équation suivante :

$$\dot{m}_{evap} = \frac{b \,.\, \dot{q}_{comb}}{\Delta H_{vap}^{Al}} = \frac{b \,.\, \dot{m}_{comb} \,.\, \Delta H_{comb,T_{réf}}^{0}}{\Delta H_{vap}^{Al}} \qquad \text{(II.2.11)}$$

où b est la part d'énergie absorbée par la goutte métallique, $\dot{q}_{comb}$ correspond à la puissance libérée par les réactions chimiques au sein de la microflamme et $\dot{m}_{comb}$ équivaut au débit massique d'aluminium réagissant avec l'oxygène du milieu oxydant. Puisque $\Delta H_{comb,2791K}^{0} = 42{,}3\ MJ/kg$ (*Han, 2019*) et $\Delta H_{vap}^{Al} = 10{,}78\ MJ/kg$ (Steinberg, 1992), cela signifie que la goutte d'aluminium doit d'absorber au minimum 25,5% de l'énergie totale libérée par l'oxydation pour garantir une combustion autoentretenue stable avec un taux d'oxydation de 100% dans la zone de réaction, c'est-à-dire $\dot{m}_{evap} = \dot{m}_{comb}$.

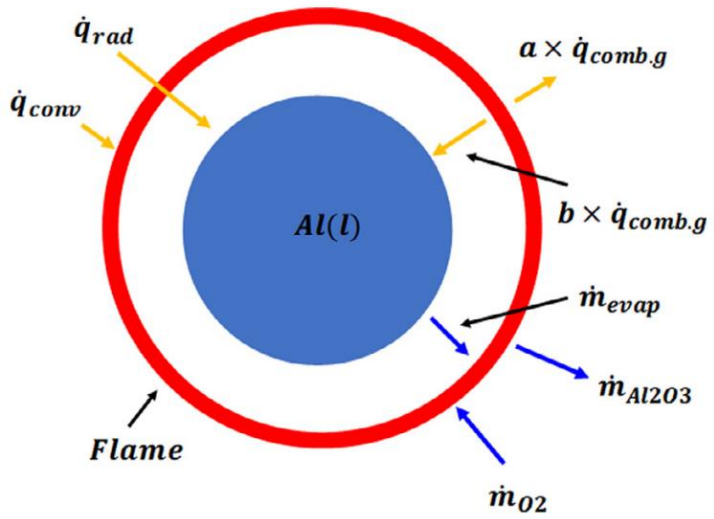


FIGURE II.2.9 – *Schématisation simplifiée d'une particule d'aluminium en combustion dans un milieu oxygéné et sous un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion (Han, 2019)*

Lorsque le diamètre de la goutte d'aluminium se rapproche de l'échelle caractéristique du libre parcours moyen, c'est-à-dire $0{,}01 < Kn < 10$, le système décrit précédemment n'est plus représentatif et doit s'appuyer sur des théories alternatives provenant du modèle Fuchs

(Fuchs, 1963). Ainsi, un régime d'oxydation transitoire, défini entre le modèle continu et le domaine raréfié, introduit une couche de Langmuir autour de la particule en combustion. Cette couche possède alors une épaisseur similaire à la longueur du libre parcours moyen dans le milieu gazeux environnant et se caractérise par une forte discontinuité de température (Kullmer, 1996). La modélisation des transferts thermiques dans cette couche est corrigée par des équations basées sur le libre parcours moléculaire. La diminution du nombre de Nusselt dans la couche de Langmuir entraîne directement la réduction des transferts de chaleur par échanges convectifs (Filippov, 2000). Par conséquent, la goutte se comporte comme un puits de chaleur et modifie le mode d'oxydation durant la phase de combustion de la particule d'aluminium, où des réactions hétérogènes de surface deviennent alors nécessaires pour garantir l'équilibre thermodynamique du système.

II.2.3 Fin d'oxydation

Dans certaines conditions (pression, température, composition chimique du milieu ambiant), la fin du cycle d'oxydation pour une particule d'aluminium soumise à une combustion pilotée par la diffusion des espèces gazeuses peut être un phénomène complexe et chaotique. Cette observation a pu être constatée dès les premières études, où les trajectoires de ces particules micrométriques possédaient des changements brusques de direction pendant la réaction chimique (Wilson Jr, 1971).

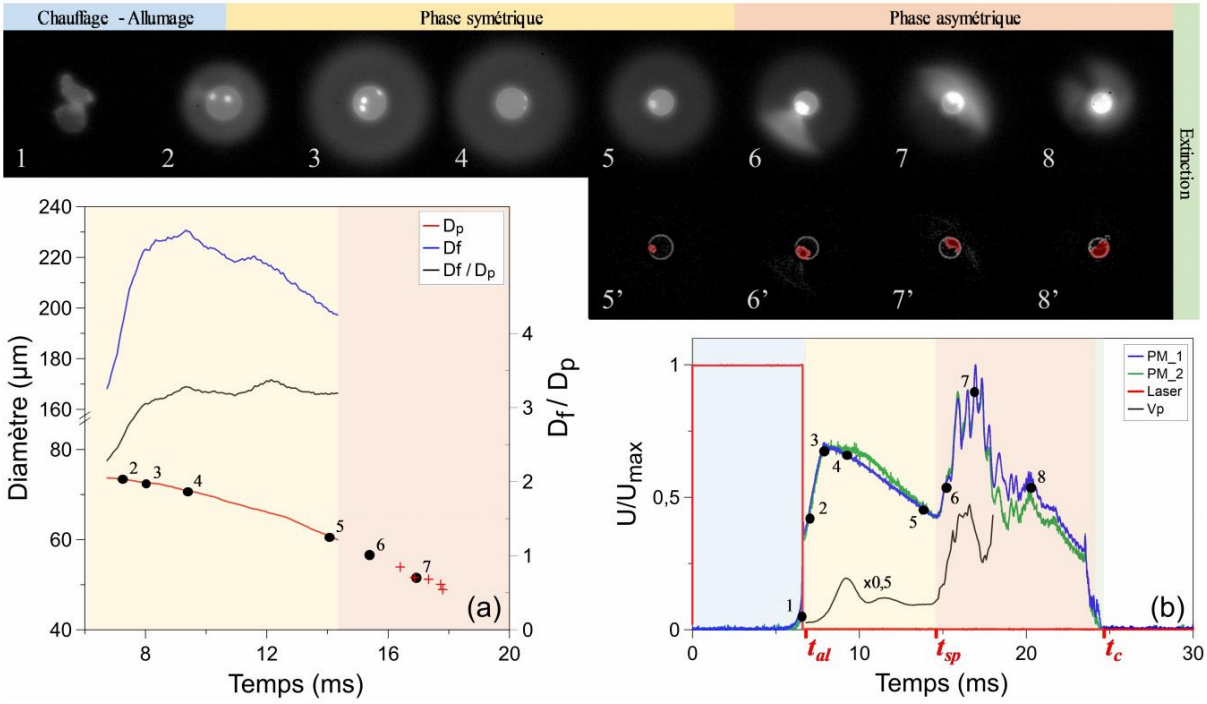


FIGURE II.2.10 – *Illustration d'une séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium micrométrique dans l'air à pression atmosphérique (Braconnier, 2020)*

Après l'étape d'allumage, plusieurs phases de combustion autoentretenue peuvent exister durant le cycle d'oxydation de la particule et dépendent de l'accumulation d'oxydes condensés à la surface de la goutte d'aluminium (Dreizin, 1996). La figure II.2.10 illustre

l'intégralité du cycle de combustion pour une particule d'aluminium micrométrique réagissant dans l'air, c'est-à-dire depuis le début de son étape de chauffage jusqu'à la fin de son oxydation. Dans la configuration présentée ci-dessus, une fois l'équilibre thermodynamique atteint, la particule d'aluminium isolée réagit à travers un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses et la flamme se trouve détachée de la goutte métallique. Cette microflamme de diffusion apparaît alors sphérique et stable au début de la combustion, sans perturbations provoquées par le lobe d'alumine en surface de la goutte métallique, formant la phase symétrique de l'oxydation. Durant cette phase de combustion, la microflamme rétrécit progressivement en raison d'une réduction du diamètre de la goutte métallique induit par l'évaporation de l'aluminium. Cette microflamme se déforme ensuite brusquement au niveau du lobe d'alumine et marque le passage à la phase asymétrique de l'oxydation. Contrairement à la précédente phase de combustion, la quantité de mouvement générée par les flux gazeux n'est plus distribuée de manière homogène et la particule subit des effets de poussée (jetting) et de rotation (spinning) conduisant à de vifs changements de direction.

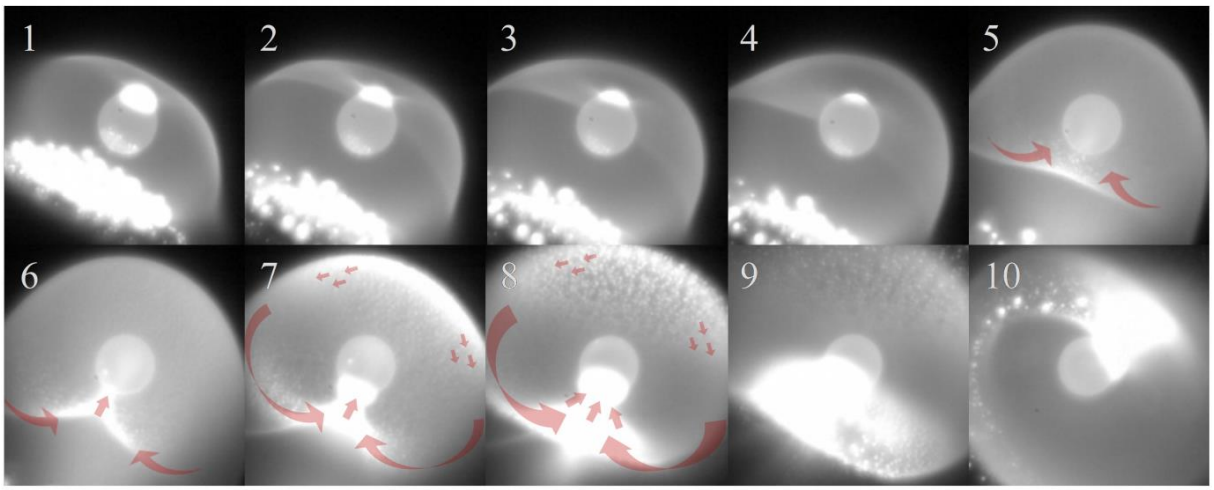


FIGURE II.2.11 – *Migration de l'alumine liquide nanométrique présent dans la flamme durant la combustion d'une particule d'aluminium micrométrique évoluant dans un mélange 40% CO_2 / 60% O_2 à pression atmosphérique (Braconnier, 2020)*

Durant la phase de combustion symétrique, la taille du lobe d'alumine reste globalement inchangée et aucun oxyde métallique supplémentaire ne semble se former à la surface de la goutte d'aluminium (Braconnier, 2020). La transition brutale entre la combustion homogène et la phase d'oxydation asymétrique de la particule ne traduit donc pas un processus d'accumulation lent, mais apparaît plutôt résulter d'une interaction soudaine entre les produits de réaction nanométriques condensés dans la microflamme et le lobe d'alumine. La figure II.2.11 présente une séquence d'images typiques obtenues par visualisation directe au moment de ce changement de phase de combustion. Une migration des espèces oxydées s'organise dans la microflamme et parvient jusqu'au lobe d'alumine en surface de la goutte métallique, modifiant alors directement la géométrie de la flamme et initiant des phénomènes de jetting / spinning sur la particule. Des observations similaires ont été constatées lors d'expériences en microgravité et, par conséquent, dédouanent les effets convectifs dans l'apparition de cette transition (Dreizin, 1999). Ce changement brutal de phase de combustion lié à cette migration d'espèces oxydées résiderait plutôt sur des effets de thermophorèse et

de diffusiophorèse (Dreizin, 1999). La principale hypothèse sur l'apparition de cette migration d'espèces soudaine repose sur un rapprochement entre la microflamme et le lobe d'alumine induit par la réduction de la goutte métallique lors de la combustion.

Pour une goutte d'aluminium possédant un diamètre de 50 µm et réagissant dans l'air à pression atmosphérique, la phase d'oxydation symétrique représente environ 60% du temps de combustion observable et correspond à une réduction de près de 30% du diamètre initial de la particule (Braconnier, 2020). En raison d'une phénoménologie de plus en plus chaotique durant la phase asymétrique de l'oxydation, la réaction chimique pourrait finir par être inhibée et conduire à la présence d'une fraction d'aluminium imbrûlé dans les résidus de combustion.

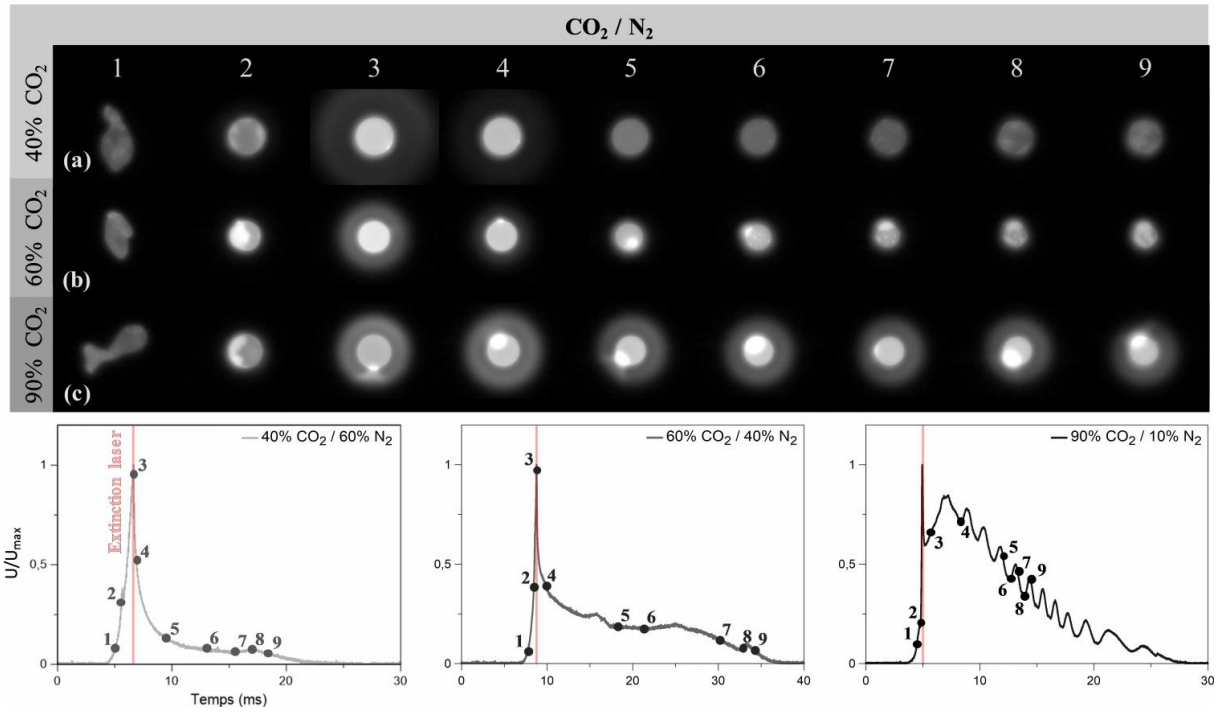


FIGURE II.2.12 – *Séquences de combustions caractéristiques d'une particule d'aluminium micrométrique évoluant dans différents mélanges oxydants CO_2 / N_2 à pression atmosphérique (Braconnier, 2020)*

Néanmoins, la fin du cycle d'oxydation pour une particule d'aluminium isolée n'est pas forcément chaotique et dépend également de la composition chimique du milieu environnant. La figure II.2.12 illustre l'intégralité du cycle de combustion pour une particule d'aluminium micrométrique réagissant dans différents mélanges oxydants CO_2 / N_2, c'est-à-dire depuis le début de son étape de chauffage jusqu'à la fin de son oxydation. Dans un environnement composé à 90% de CO_2 et 10% de N_2, la combustion de la particule d'aluminium ressemble à la phénoménologie décrite précédemment. Une microflamme s'établit à environ 2,2 fois le diamètre de la goutte métallique et induit uniquement une phase asymétrique de l'oxydation en raison de sa proximité avec le lobe d'alumine. Durant la combustion, la migration d'espèces oxydées dans la flamme alimente le lobe d'alumine et la particule subit un effet de rotation. En revanche, les réactions chimiques en surface de la goutte prennent rapidement l'ascendant lorsque la part de N_2 augmente dans la composition du milieu oxydant, passant d'un mode de combustion piloté par la diffusion des espèces gazeuses à un mode de combustion transitoire.

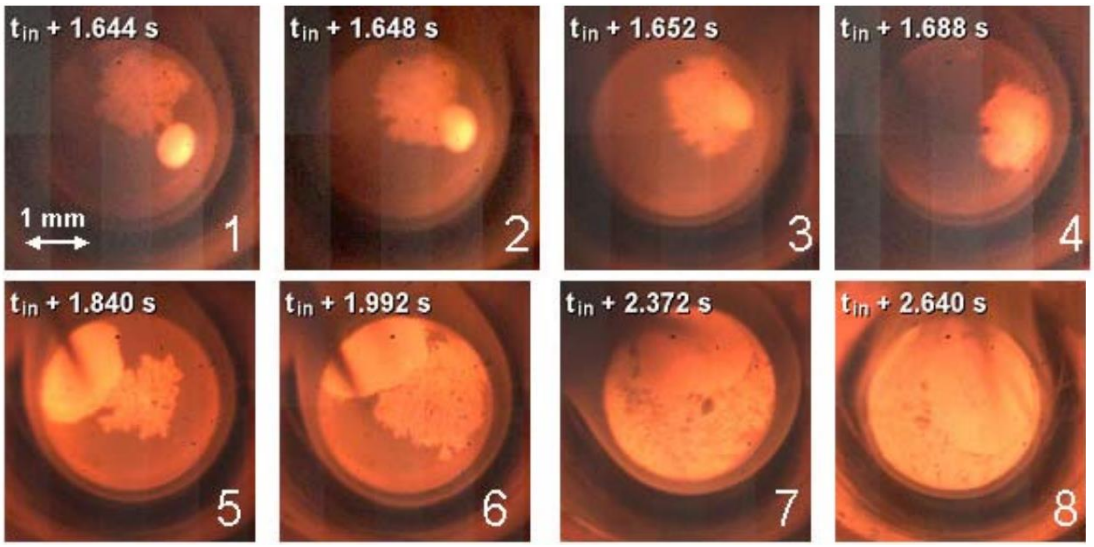


FIGURE II.2.13 – *Création d'une couche solide de $Al_xO_yN_z$ en surface lors de la combustion en phase vapeur d'une particule d'aluminium millimétrique dans un mélange 50% H_2O / 50% N_2 à pression atmosphérique (Sarou-Kanian, 2003)*

Cette oxydation de surface est possible en raison de la faible cinétique de réaction entre le N_2 et l'aluminium, conduisant ainsi à la création d'une phase AlN solide sur la goutte métallique. La figure II.2.13 illustre la formation de cette phase solide lors de la combustion d'une particule d'aluminium millimétrique en lévitation aérodynamique dans un mélange gazeux 50% H2O / 50% N2. Apparaissant sous la forme de cristaux à la surface de la goutte métallique au début de la combustion, la phase AlN solide s'accroît alors progressivement pendant l'oxydation et finit par interagir avec le lobe d'alumine liquide pour former un composé $Al_xO_yN_z$ solide. À travers le diagramme de phase simplifié du pseudo-binaire AlN – Al_2O_3, la figure II.2.14 présente le changement d'état du lobe d'alumine en fonction de son enrichissement en nitrure d'aluminium. Une fois la surface de la goutte totalement recouverte par cette couche d'oxynitrure d'aluminium solide, la réaction chimique s'interrompt et le métal pur encore présent reste sous la forme d'imbrûlés dans les résidus de combustion.

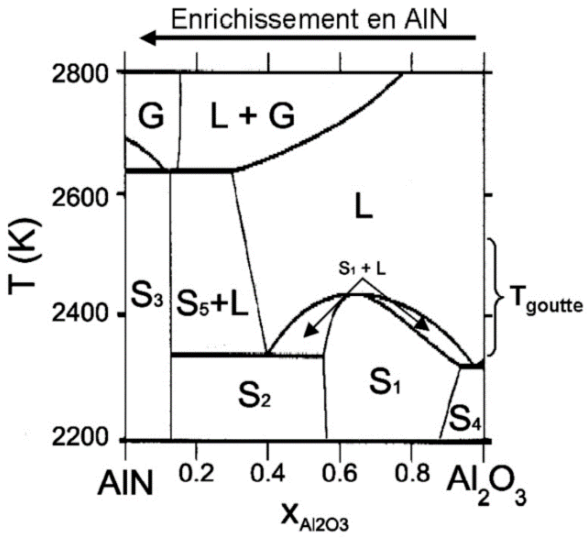


FIGURE II.2.14 – *Diagramme de phase simplifié du pseudo-binaire AlN – Al_2O_3 (Hillert, 1992)*

II.3 Cas d'une poudre en suspension

Les premiers travaux référencés sur la combustion d'une poudre d'aluminium utilisaient des particules micrométriques en suspension dans un gaz oxydant et portaient sur la mesure de la vitesse de flamme laminaire à l'échelle macroscopique (Cassel, 1964).

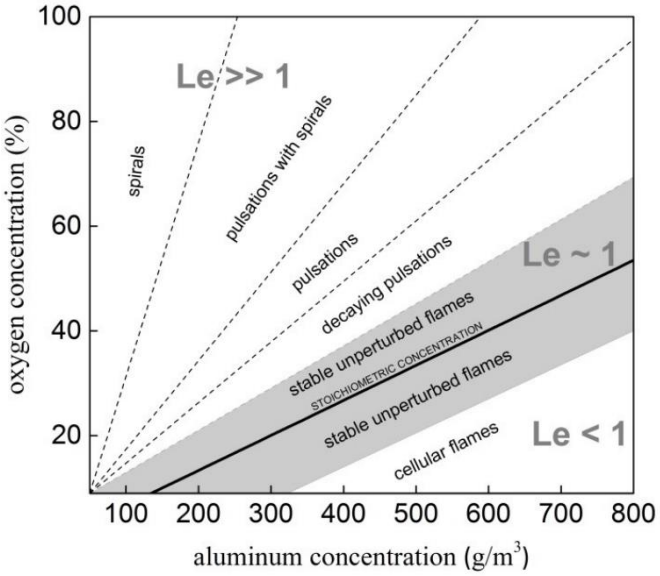


FIGURE II.3.1 – *Cartographie des régimes de propagation d'une flamme prémélangée en fonction de la proportion en oxygène et de la concentration en aluminium (Julien, 2015)*

Grâce à l'utilisation de moyens d'essai servant traditionnellement à caractériser des flammes d'hydrocarbure, la compréhension macroscopique de la combustion d'aluminium sous forme dispersée s'est améliorée. Ces principaux dispositifs sont basés sur la propagation d'une flamme dans un tube (Aslanov, 1993), l'usage d'un réacteur de laboratoire (Malinin, 2002), la mise en œuvre d'un mélange dans une enceinte sphérique à volume constant (Eapen, 2004) ou encore l'utilisation d'un tube à choc (Servaites, 2001). La figure II.3.1 illustre une de ces caractéristiques macroscopiques étudiées. Ainsi, dans un milieu sans turbulence, le front de flamme issu d'un mélange Al / air est stable pour une richesse variant entre 0,65 et 1,60.

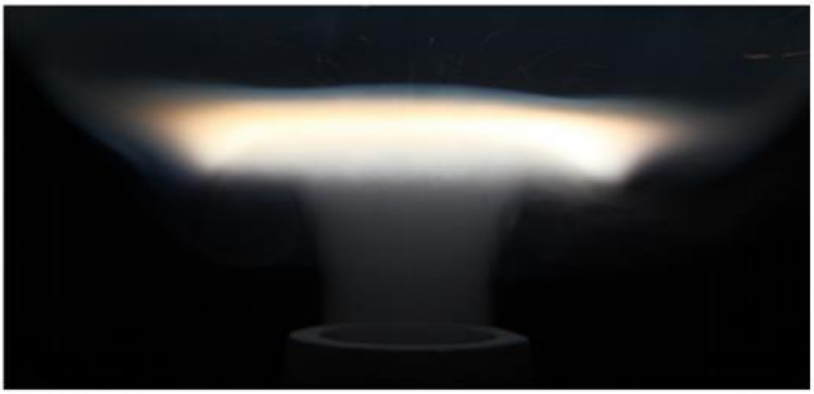


FIGURE II.3.2 – *Visualisation directe d'une flamme plate générée à la sortie d'un brûleur et issue d'un prémélange Al / air possédant une richesse de 1,30 (Julien, 2017)*

L'emploi d'un brûleur permet d'étudier plus aisément la zone de combustion en générant une flamme de poudres métalliques avec une position maîtrisée. Les principales solutions reposent sur l'établissement d'un écoulement prémélangé issu de particules d'aluminium dispersées dans un milieu gazeux oxydant. Plusieurs types de flamme peuvent être stabilisés à la sortie du brûleur selon les propriétés de cet écoulement, comme une flamme laminaire conique (Goroshin, 1996), une flamme liftée (Shoshin, 2004), ou encore une flamme turbulente (Wang, 2016). La figure II.3.2 présente la visualisation directe d'une flamme plate générée par un prémélange Al / air avec une richesse de 1,30. Celle-ci est obtenue grâce à l'utilisation d'un flux gazeux à contre-courant permettant de caractériser la combustion métallique avec un très faible étirement (Julien, 2017). L'étude d'une flamme de diffusion est également possible à travers l'utilisation d'un brûleur, où les particules d'aluminium sont véhiculées par un gaz neutre et réagissent avec l'oxydant injecté en périphérie de celui-ci (Vovchuk, 1994).

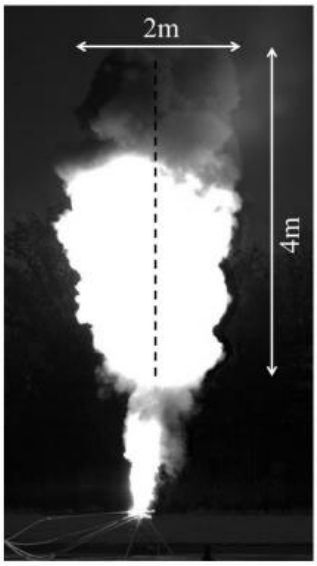


FIGURE II.3.3 – *Visualisation directe d'une flamme se propageant dans un nuage de particules d'aluminium micrométriques 200 ms après l'allumage à sa base (Julien, 2015)*

D'autres études bibliographiques sont basées sur des dispositifs expérimentaux plus atypiques, comme la combustion d'un nuage de particules en condition de microgravité (Ballal, 1983), l'oxydation d'un amas de particules en suspension par un effet aérodynamique (Sun, 2006), la combustion en surface d'un propergol enrichi en particules d'aluminium (Devillers, 2017), ou encore la combustion de particules injectées dans un ballon souple permettant une réaction quasiment isobare (Julien, 2015). La figure II.3.3 illustre ce type d'études avec la visualisation directe d'une flamme se propageant dans un nuage de particules d'aluminium à l'échelle métrique, 200 ms après son allumage, où l'objectif consiste à analyser l'impact des grandes échelles sur les propriétés macroscopiques de la flamme métallique.

II.3.1 Mode d'oxydation et produits de combustion

Outre les aspects fondamentaux investigués au travers des travaux utilisant une seule particule d'aluminium, l'application de la combustion métallique à un procédé industriel

nécessite également d'étudier l'impact de l'effet de groupe sur l'oxydation des particules. Ainsi, après avoir détaillé les différents régimes de combustion possibles pour une particule isolée dans la sous-section II.2.2, l'intérêt se porte sur le mode d'oxydation des particules métalliques pour une combustion de poudre d'aluminium en suspension dans un milieu oxydant. La combustion de particules nanométriques et micrométriques y est abordée.

Dès lors que la combustion à l'échelle particulaire n'est pas exclusivement contrôlée par des réactions hétérogènes de surface, l'environnement proche de la goutte métallique est partiellement constitué d'aluminium et d'intermédiaires de réaction gazeux. La fraction molaire de ces espèces dépend alors du régime de combustion subi par la particule et se maximise pour une oxydation purement réalisée en phase vapeur. Pour une combustion de poudre d'aluminium, la présence et la concentration de ces composés gazeux dans la flamme métallique peuvent donc être un indicateur macroscopique du mode d'oxydation existant à l'échelle de ces particules. La figure II.3.4 présente une estimation de la composition radiale en espèces gazeuses, depuis la surface d'une goutte d'aluminium, pour une combustion simulée en régime de diffusion dans un environnement constitué à 21% de dioxygène et à 79% d'argon. En raison d'une consommation intensive, la fraction molaire des oxydants (O / O_2) diminue en se rapprochant de la surface de la goutte métallique, laissant progressivement place à l'aluminium et à ses intermédiaires de réaction gazeux (AlO / AlO_2 / Al_2O / Al_2O_2).

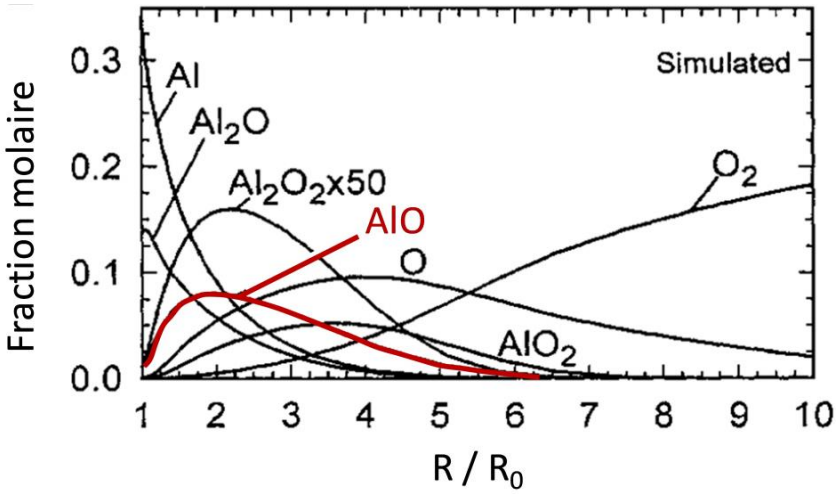


FIGURE II.3.4 – *Composition radiale des espèces gazeuses lors de la combustion en phase vapeur d'une particule d'aluminium avec un milieu oxydant 21% O_2 / 79% Ar (Bucher, 2000)*

Parmi les composés gazeux présents lors de réactions en phase vapeur, $Al_{(g)}$ et $AlO_{(g)}$ sont facilement identifiables dans l'environnement proche des particules à travers la lumière générée par leur excitation thermique. Les deux spectres d'émission résultants sont alors respectivement définis par les raies atomiques de l'élément et les transitions rotationnelles – vibrationnelles de la molécule. La décomposition spectrale du rayonnement émis par la flamme métallique dans le domaine visible permet ainsi de déterminer la présence de ces composés gazeux, dont leurs spectres se distinguent du fond d'émission continue induit par la température de la phase condensée dans la zone de réaction. La figure II.3.5 présente un exemple du spectre d'émission acquis lors de la propagation d'une flamme dans un mélange de particules d'aluminium nanométriques / air avec une richesse de 0,70. Ce spectre est brut et ne comprend pas de correction basée sur la calibration spectrale de la chaîne de mesure.

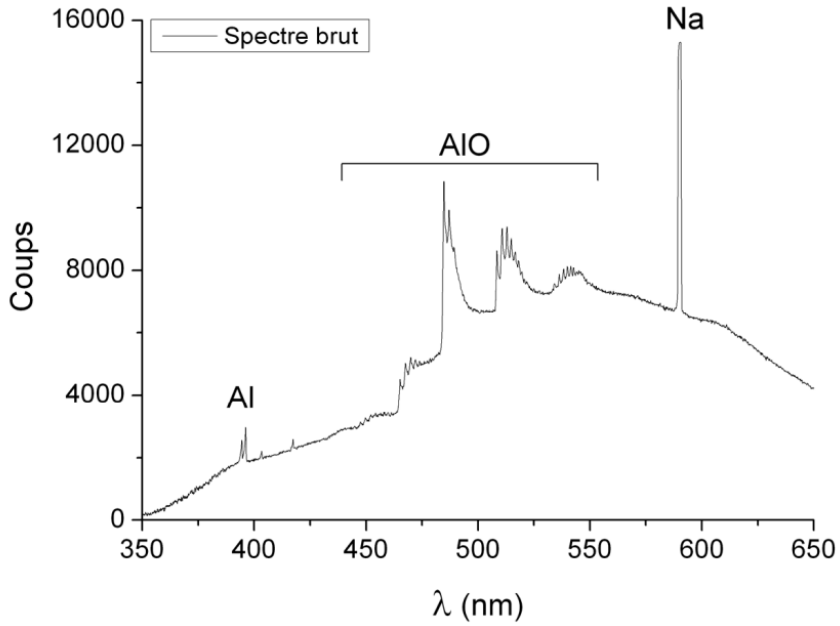


FIGURE II.3.5 – *Exemple du spectre d'émission brut d'une flamme se propageant à travers des particules d'aluminium nanométriques en suspension dans l'air (Bocanegra, 2007)*

Le principal pic observable sur ce spectre d'émission brut est issu du sodium, initialement présent dans la poudre d'aluminium, possédant une forte capacité à émettre sur ses raies atomiques à 589,00 nm et 589,59 nm malgré une quantité extrêmement faible. À travers le marquage des raies à 394,40 nm et 396,15 nm, cette décomposition spectrale révèle la présence d'aluminium gazeux dans l'environnement proche des particules métalliques. La présence de son intermédiaire de réaction est également identifiée via l'émission générée par les transitions électroniques $\Delta v = 0$ du système $B^2\Sigma^+ - X^2\Sigma^+$ de l'$AlO_{(g)}$, dont la principale bande d'émission se situe autour de 486 nm. L'observation de ces deux composés gazeux n'était pas attendue en raison du diamètre initial moyen des particules d'aluminium, soit environ 187 nm. D'après les travaux sur les particules isolées, le régime d'oxydation à l'échelle particulaire aurait dû être celui contrôlé exclusivement par des réactions hétérogènes de surface.

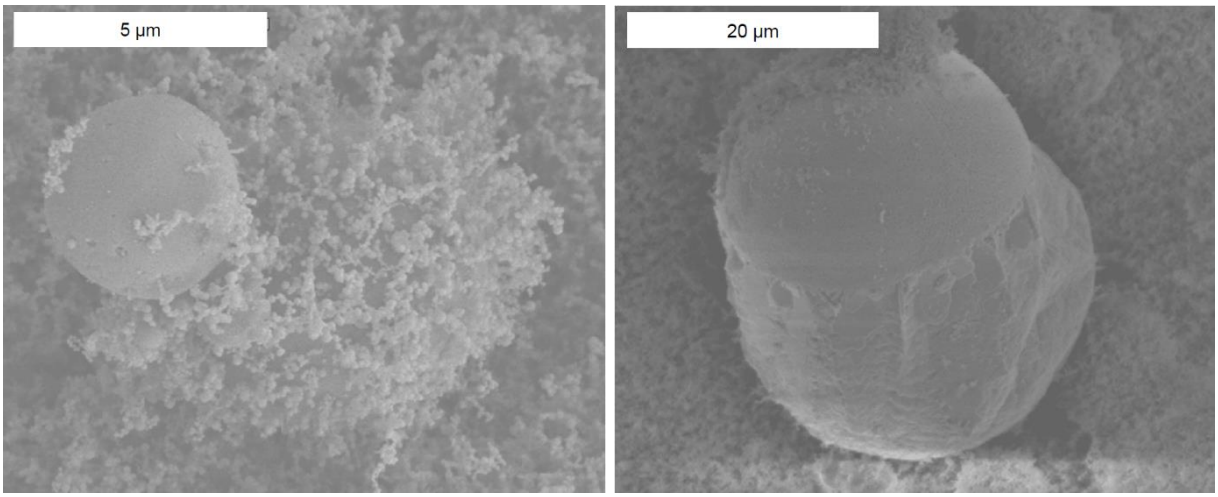


FIGURE II.3.6 – *Clichés MEB des produits de réaction obtenus après la combustion d'un mélange particules Al nanométriques / air avec une richesse proche de 3 (Bocanegra, 2007)*

Lors de cette étude, des produits de combustion solides ont pu être collectés sur un disque de cuivre afin de caractériser plus précisément le régime d'oxydation subi par ces particules métalliques. La figure II.3.6 présente des clichés MEB (Microscope Électronique à Balayage) des produits de réaction résultant de la combustion du nuage de particules d'aluminium nanométriques en suspension dans l'air avec une richesse proche de 3. Après une analyse complémentaire par spectrométrie à dispersion d'énergie, ceux-ci sont majoritairement constitués de sphères d'alumine nanométriques possédant un diamètre de Sauter de 94 nm, soit une valeur deux fois plus faible que le diamètre initial de la poudre métallique utilisée. Quelques particules micrométriques sont également visibles sur ces clichés et démontrent l'agglomération des particules avant ou pendant la combustion.

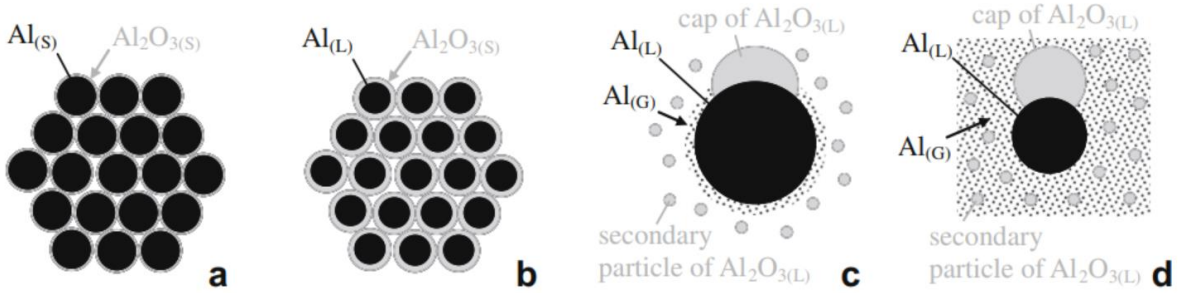
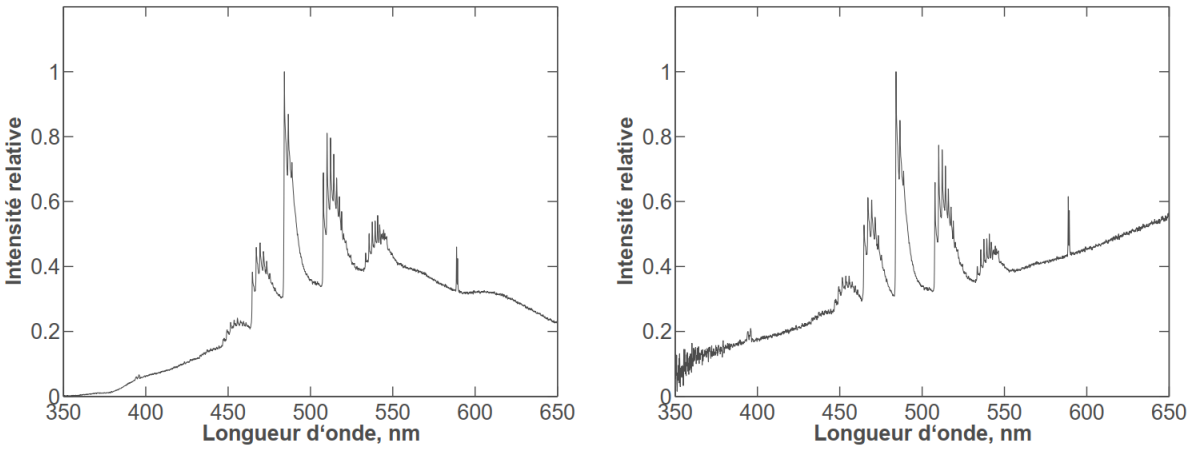


FIGURE II.3.7 – *Schématisation du processus de combustion d'un nuage de particules Al nanométriques en suspension dans l'air à l'échelle d'un agglomérat (Bocanegra, 2010)*

L'analyse de ces produits de combustion solides indique que les réactions d'oxydation se réalisent principalement à travers la diffusion des espèces gazeuses et demeure cohérente avec l'acquisition du spectre d'émission de la flamme métallique. La figure II.3.7 schématise alors ce processus de combustion à l'échelle d'un agglomérat de particules d'aluminium nanométriques. Cette hypothèse est également vérifiée à travers la découverte de particules micrométriques possédant une hétérogénéité structurelle. Sur la figure II.3.6, le cliché MEB de droite présente une particule d'aluminium micrométrique, recouverte d'une fine couche d'oxyde métallique, possédant une calotte hémisphérique d'alumine en partie supérieure.



(a) Spectre brut. (b) Spectre corrigé.

FIGURE II.3.8 – *Exemple d'un spectre d'émission d'une flamme métallique générée par un mélange particules Al micrométriques / air avec une richesse de 1,30 (Lomba, 2016)*

Comme détaillée dans la sous-section II.2.2, différentes études basées sur la combustion de particules d'aluminium isolées indiquent une transition du régime d'oxydation pour un diamètre initial d'environ 10 µm. La combustion d'un nuage de particules micrométriques, possédant une granulométrie moyenne inférieure à ce diamètre critique, permet ainsi d'étudier l'impact d'un effet de groupe sur le régime d'oxydation à l'échelle particulaire. La figure II.3.8 illustre un exemple d'un spectre d'émission acquis pour une flamme prémélangée Al / air conique, stabilisée à la sortie d'un brûleur avec une richesse de 1,30. Cette flamme métallique a été générée par la combustion d'une poudre d'aluminium dont le diamètre moyen en volume des particules était de 7,1 µm. La différence entre le spectre d'émission brut et celui corrigé correspond uniquement à la prise en compte de la calibration spectrale de l'ensemble de la chaîne optique permettant l'acquisition. Suite aux procédés industriels d'extraction de l'aluminium à partir de la bauxite, une quantité résiduelle de sodium est présente dans la poudre métallique et ses deux principales raies d'émission sont visibles sur le spectre. À l'image de la figure II.3.5 présentant le spectre brut d'une flamme métallique issue de la combustion de particules nanométriques, la présence d'aluminium gazeux et celle de son intermédiaire de réaction $AlO_{(g)}$ sont également confirmées dans la zone de réaction. Par ailleurs, les rapports d'intensité aux différentes longueurs d'onde d'émission de ces deux composés sont globalement similaires entre les deux flammes métalliques. Cette observation milite donc pour un régime d'oxydation à l'échelle particulaire qui serait contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses, même si l'analyse du spectre d'émission ne permet pas d'exclure la présence de réactions hétérogènes de surface.

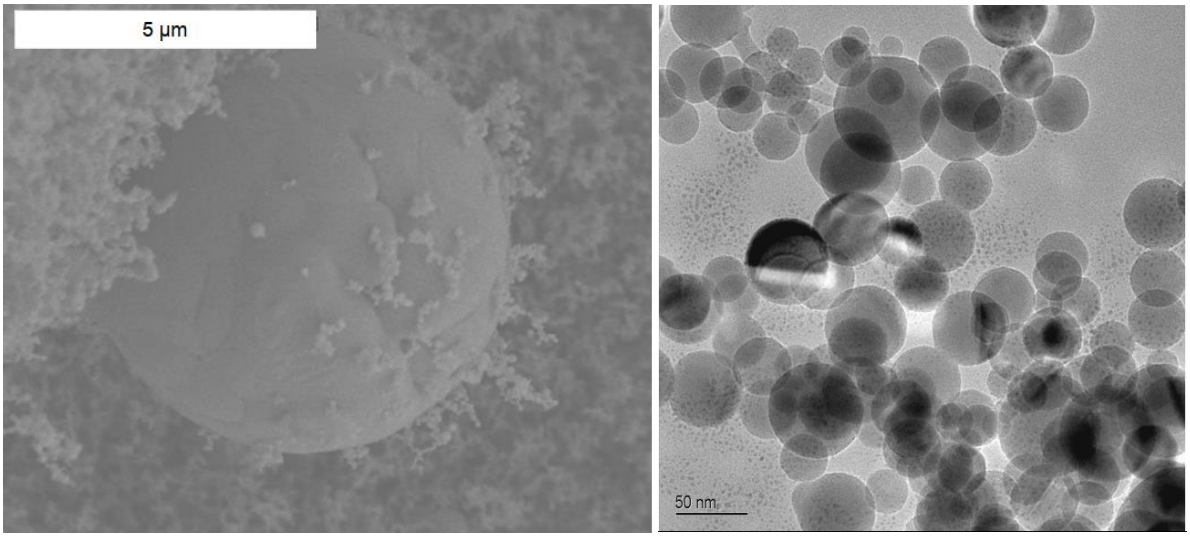


FIGURE II.3.9 – *Clichés MEB et MET des produits de réaction obtenus après la combustion d'un mélange particules Al micrométriques / air avec une richesse de 3 (Bocanegra, 2007)*

La figure II.3.9 présente des clichés MEB (image de gauche) et MET (image de droite) des produits de réaction solides résultant de la combustion d'un nuage de particules d'aluminium micrométriques en suspension dans l'air avec une richesse proche de 3. D'après une analyse par spectrométrie à dispersion d'énergie, ceux-ci sont majoritairement constitués de sphères d'alumine nanométriques possédant un diamètre de Sauter de 58 nm, soit une valeur 93 fois plus faible que le diamètre initial de la poudre métallique utilisée. De manière identique à la combustion d'agglomérats de particules d'aluminium nanométriques en suspension dans l'air, la combustion d'un nuage constitué de particules micrométriques avec

un diamètre inférieur à 10 µm induit un régime d'oxydation à l'échelle particulaire qui est contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses. Cette hypothèse demeure cohérente avec le spectre d'émission de la flamme métallique présentée sur la figure II.3.8 et pourrait s'expliquer par la modification des conditions limites vues par chacune des particules d'aluminium, limitant alors les pertes thermiques vers l'extérieur et favorisant une montée en température de celles-ci par rapport à la combustion de particules isolées. Quelques sphères micrométriques sont également visibles sur les clichés MEB des produits de réaction solides et possèdent un diamètre semblable aux particules initiales d'aluminium. Celles-ci restent encore principalement métalliques et ne présentent qu'une fine couche d'alumine répartie à leur surface. Dans ces conditions d'essai, le processus d'oxydation des particules d'aluminium n'est donc pas total et fait intervenir un rendement de combustion inférieur à 100%.

Lot	Granulométrie (µm)	Taux d'oxydation initial (%wt)	Quantité d'Al_2O_3 (%wt)
lot a	Non tamisé	0,48	44,4
lot b	< 25	0,48	47,7
lot c	25-30	0,48	non disponible
lot d	30-50	0,48	43,5
lot 1	< 50	1,44	45,1
lot 2	< 50	2,3	38,8
lot 3	< 50	6,3	13,4

TABLEAU II.3.1 – *Influence de la granulométrie des poudres sur les produits de réaction solides obtenus après la combustion d'un mélange Al / air stœchiométrique (Baudry, 2007)*

Le rendement de combustion reste un paramètre complexe à déterminer pour des flammes multiphasiques. Une estimation de celui-ci a été réalisée durant une étude sur la combustion de particules d'aluminium en suspension dans un tube d'inflammation de type Hartmann (Baudry, 2007). La récupération des produits de réaction solides, qui se sont déposés sur les parois du dispositif expérimental après la combustion, et l'évaluation de la fraction massique en alumine dans ceux-ci permettent de calculer théoriquement ce rendement de combustion. Le tableau II.3.1 illustre l'influence de la granulométrie et du taux d'oxydation initial des particules métalliques sur la quantité finale d'alumine présente dans les produits de réaction après la combustion d'un mélange Al / air stœchiométrique. L'alumine produite lors de l'oxydation de ces particules est alors déterminée à travers une analyse thermogravimétrique de la poudre d'aluminium utilisée et des produits de réaction solides collectés. Dans ces conditions expérimentales, le taux d'oxydation des produits de réaction dépend directement de la taille des particules métalliques et de la couche d'oxyde initialement présente à leurs surfaces. En considérant le niveau d'oxydation initial de ces particules métalliques, une fraction massique d'alumine comprise entre 13,4% et 47,7% au sein des produits de réaction correspond à un rendement de combustion variant respectivement entre 4,3% et 32,4%. Néanmoins, cette méthode est légèrement biaisée par la formation d'un dépôt de particules d'aluminium sur les parois du dispositif lors de la création de l'aérosol, diminuant le taux moyen d'oxydation dans les produits de réaction collectés. L'estimation du rendement de combustion est alors directement impactée et les valeurs présentées restent minimisées.

Afin d'estimer plus fidèlement le rendement de combustion pour des particules d'aluminium réagissant avec un gaz porteur, une deuxième méthodologie existe dans la littérature. Celle-ci consiste à effectuer la combustion dans un milieu clos, en générant un

nuage de particules d'aluminium dans une enceinte à volume constant (Lomba, 2016). Après la combustion de ces particules en suspension, la masse d'aluminium imbrûlée est alors estimée via la richesse initiale du mélange, la quantité d'oxygène restante dans la phase gazeuse une fois l'enceinte revenue à température ambiante et l'hypothèse d'une réaction d'oxydation unique entre l'aluminium et le dioxygène définie par $4\,Al + 3\,O_2 \rightarrow\ 2\,Al_2O_3$.

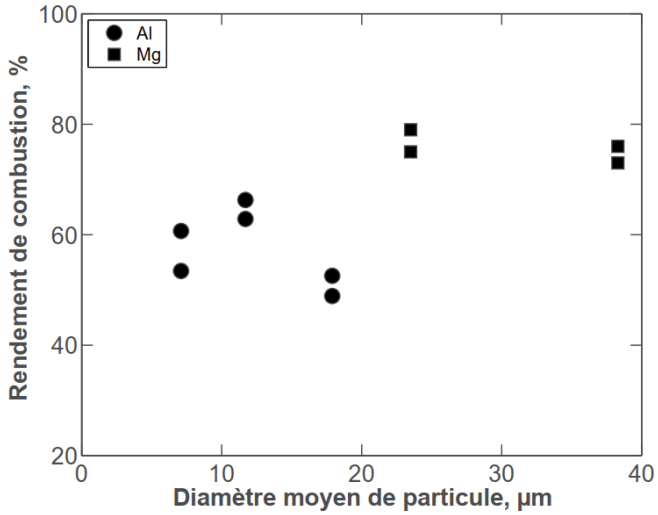


FIGURE II.3.10 – *Influence de la taille des particules sur le rendement de combustion des poudres d'aluminium et de magnésium en enceinte à volume constant (Lomba, 2016)*

La figure II.3.10 présente l'influence de la granulométrie des poudres métalliques sur le rendement de combustion, obtenu dans une enceinte à volume constant, pour un mélange initial stœchiométrique Al / air. Dans ces conditions expérimentales, le rendement de combustion est évalué entre 49% et 66% pour un diamètre moyen des particules d'aluminium utilisées allant de 7,1 µm à 17,9 µm. En revanche, cette méthodologie ne prend pas en compte la capacité de dispersion du système d'injection, induisant alors des variations locales de richesse au sein de l'aérosol généré et une variabilité du taux d'oxydation de ces particules métalliques selon leur position dans l'enceinte. Ces valeurs ne représentent donc pas le rendement de réaction au sens strict du terme, mais plutôt une efficacité globale sur l'essai de combustion réalisé. L'estimation du rendement de combustion reste également minimisée avec cette méthode, dont la valeur associée dépendra du dispositif expérimental utilisé, de l'efficacité de dispersion et des dépôts de particules métalliques sur les parois.

II.3.2 Température de flamme

La combustion d'aluminium sous la forme d'un aérosol est un processus multiphysique complexe, où plusieurs états de la matière interagissent ensemble. La structure de flamme associée dépend alors de la distribution granulométrique de la poudre métallique utilisée. En revanche, à l'échelle macroscopique, la température de flamme reste encore une notion mal définie dans la littérature. Celle-ci peut être assimilée à la température du gaz porteur, à la température de la phase condensée, ou encore à la température des intermédiaires de réactions gazeux. La figure II.3.11 illustre ainsi l'évolution de la température du gaz porteur et l'état de matière des particules d'aluminium dans l'épaisseur d'une flamme métallique.

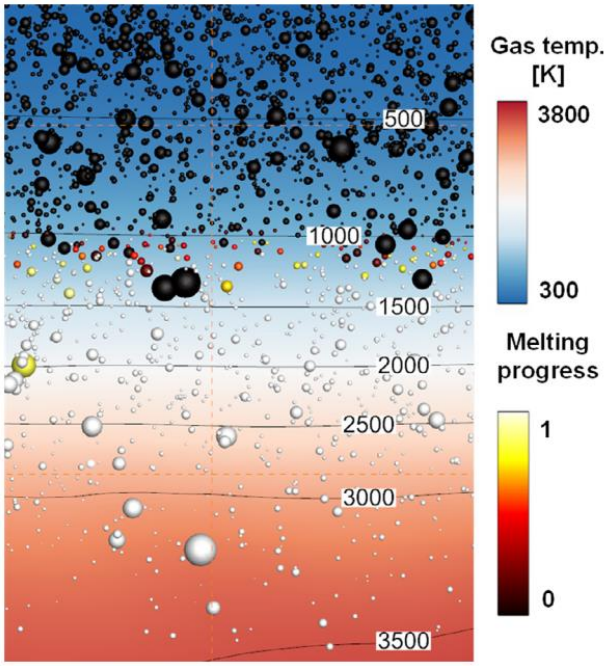


FIGURE II.3.11 – Schématisation de l'élévation en température du gaz porteur et de l'état de matière des particules dans l'épaisseur d'une flamme prémélangée Al / air *(Han, 2019)*

Une flamme prémélangée se compose d'une zone de préchauffage et d'une zone de réaction, où la frontière entre celles-ci est définie par l'apparition des premières réactions d'oxydation. La température du gaz porteur et celle des particules métalliques augmentent alors progressivement grâce aux différents transferts thermiques provenant de la combustion située en aval des gaz frais. Le cycle de combustion s'initie donc au niveau d'une particule lorsque celle-ci atteint la température suffisante pour rompre la protection générée par sa couche d'oxyde passive. En raison de la forte capacité calorifique de l'aluminium, une dispersion sur la granulométrie de la poudre utilisée entraîne des disparités dans l'allumage des particules et élargit naturellement l'épaisseur de la flamme métallique, contribuant à une répartition de la chaleur dans la zone de réaction.

Dans la littérature, la principale technique permettant d'estimer la température de flamme pour un mélange Al / air réside dans l'utilisation du spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$. Cette méthode peut être employée dès lors que le régime d'oxydation est, totalement ou en partie, contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire. Le rayonnement de cet intermédiaire de réaction est induit par les transitions électroniques rotationnelles – vibrationnelles de la molécule et se situe principalement dans le domaine spectral du visible, plus précisément dans les bandes issues du système $B^2\Sigma^+$ - $X^2\Sigma^+$. La luminance générée à ces différentes longueurs d'onde dépend alors de la température, de la pression et de la fraction molaire de l'$AlO_{(g)}$ en périphérie des particules métalliques. Pour une espèce gazeuse simple, telle qu'une molécule diatomique, les équations du transfert radiatif sont suffisamment robustes pour être appliquées dans un milieu optiquement mince. Dans des conditions standards de pression, le spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$ est simulable numériquement à travers les constantes spectroscopiques existantes (Partridge, 1983 ; Coxon, 1985). La température de l'$AlO_{(g)}$ durant la combustion peut alors être déterminée via une méthode inverse, où la partie du spectre réel issue de l'émission de la phase gazeuse est comparée au spectre de synthèse de la molécule pour différentes températures jusqu'à converger vers une solution.

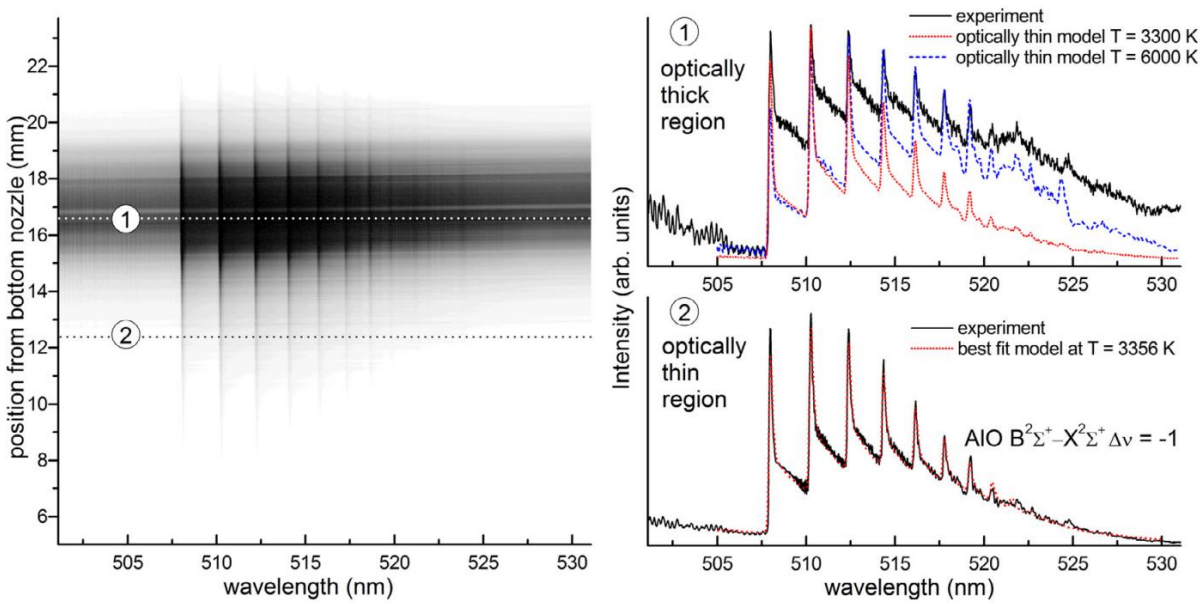


FIGURE II.3.12 – Spectrogramme inversé en nuances de gris d'une flamme Al / air plate et comparaison de deux spectres acquis avec l'émission théorique de l'$AlO_{(g)}$ *(Soo, 2017)*

La figure II.3.12 synthétise la méthodologie décrite ci-dessous. De manière similaire à la figure II.3.2, cette étude utilise une flamme plate issue d'un écoulement prémélangé avec des particules d'aluminium micrométriques en suspension dans de l'air. Une cartographie spatiale du spectre d'émission est obtenue grâce à un spectromètre à réseau de diffraction équipé d'une caméra CCD, se focalisant sur le domaine 505 - 530 nm pour analyser la bande $\Delta v = -1$ du système $B^2\Sigma^+ - X^2\Sigma^+$ de l'$AlO_{(g)}$. Avec une ligne de visée radiale à l'écoulement, le centre de la flamme métallique équivaut à un milieu optiquement épais. Dans ces conditions, le spectre de synthèse n'est pas représentatif de la partie du spectre réel issue de l'émission de la phase gazeuse, convergeant vers une température non physique. En revanche, à la base de la flamme métallique, le milieu peut être considéré comme optiquement mince et le spectre de synthèse de l'$AlO_{(g)}$ concorde avec le spectre réel pour une température cohérente.

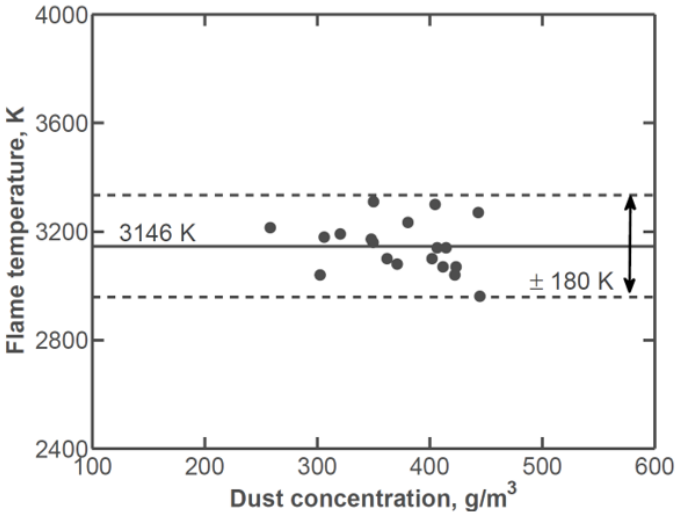


FIGURE II.3.13 – Évolution de la température de flamme obtenue via le spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$ selon la richesse d'un mélange particules Al microscopiques / air *(Lomba, 2019)*

En utilisant la méthodologie basée sur l'exploitation du spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$, la figure II.3.13 présente l'évolution de la température de flamme en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais. Durant cette étude, la flamme pré-mélangée Al / air conique est générée grâce à un brûleur de type Bunsen et celle-ci provient de la combustion d'une poudre métallique possédant un diamètre moyen d'environ 7 µm (Lomba, 2016). La température de l'$AlO_{(g)}$ dans la zone de réaction est alors globalement constante sur une plage de richesse allant de 0,80 à 1,45, soit une concentration en particules comprise entre 250 et 450 g/m^3. Cette observation est légèrement en écart par rapport au profil attendu provenant du calcul théorique de la température de flamme adiabatique pour ces différentes conditions de richesse. La température de flamme moyenne est estimée expérimentalement à 3146 K, soit environ 400 K en dessous de la valeur de la température de flamme adiabatique pour un mélange stœchiométrique Al / air (McBride, 1996).

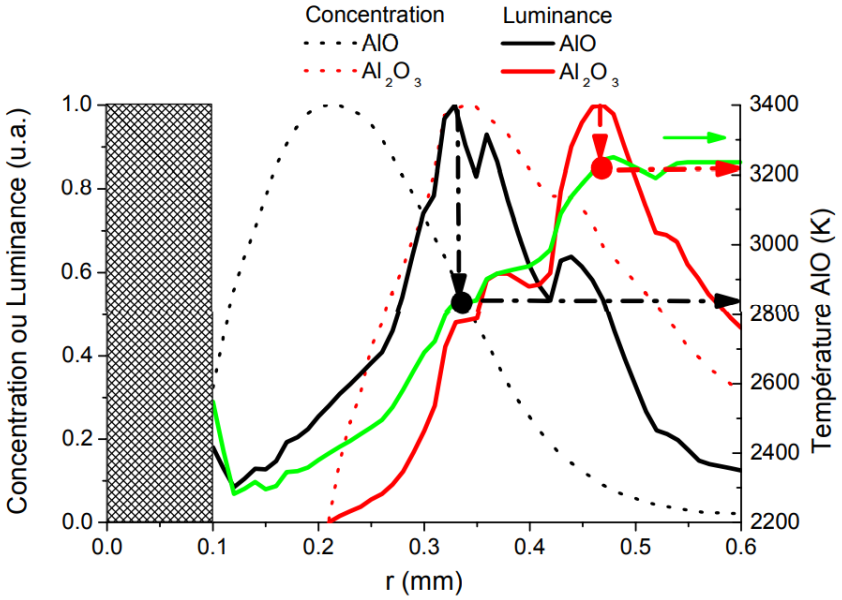


FIGURE II.3.14 – Profil de température, concentration et luminance de l'$AlO_{(g)}$ et l'$Al_2O_{3(l)}$ pour une particule d'aluminium d = 200 µm en combustion dans l'air *(Bocanegra, 2007)*

Néanmoins, le monoxyde d'aluminium à l'état gazeux reste un simple intermédiaire de réaction lorsque la goutte métallique subit une combustion en phase vapeur. Cette molécule diatomique réagit très rapidement avec l'oxygène provenant du milieu gazeux ambiant pour générer de l'alumine sous forme condensée, libérant ainsi la principale quantité de chaleur dans le schéma global d'oxydation de l'aluminium. À l'échelle particulaire, cette zone de condensation correspond à l'appellation de « micro-flamme » dans la littérature et se situe à la périphérie de la goutte métallique en étant détachée de la surface de celle-ci. La figure II.3.14 présente le profil de concentration en $AlO_{(g)}$ et celui en $Al_2O_{3(l)}$ à proximité de la surface de la goutte d'aluminium pendant la combustion dans l'air d'une particule isolée possédant un diamètre de 200 µm. En cohérence avec le schéma réactionnel pour une combustion en phase vapeur, ces deux profils sont similaires, mais spatialement décalés. La figure II.3.14 présente également le profil de luminance générée par l'$AlO_{(g)}$, celui issu de l'$Al_2O_{3(l)}$ et l'évolution radiale en température de l'$AlO_{(g)}$. La luminance produite par chaque composé dépend, au premier ordre, du couplage entre sa température et sa concentration. Ainsi, en raison d'une augmentation de la température dans la direction normale à la surface de la

goutte métallique, l'évolution de la luminance générée par l'$AlO_{(g)}$ et celle induite par l'$Al_2O_{3(l)}$ sont désynchronisées par rapport à leur profil de concentration respectif. Le maximum de ces deux profils de luminance n'est donc pas situé à la même position radiale et, par conséquent, ne correspond pas à la même valeur de température. L'étude du spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$ ne semble pas être en mesure d'estimer la température maximale autour d'une goutte métallique et une analyse basée sur les particules d'alumine semblerait plus cohérente.

Une autre solution consiste à analyser le fond continu du spectre d'émission généré par la zone de réaction pour déterminer la température de flamme. Cette émission radiative est directement liée au rayonnement thermique de la phase condensée présente dans l'épaisseur de flamme et peut être observée dans le domaine spectral du visible en raison des fortes températures en jeu lors de la combustion métallique. La luminance spectrale produite par un corps réel $L(\lambda, T)$ est alors définie via la loi de Planck selon l'équation suivante :

$$L(\lambda, T) = \varepsilon(\lambda, T) \times \frac{C_1}{\lambda^5} \times \left(e^{\frac{C_2}{\lambda.T}} - 1\right)^{-1} \qquad \text{(II.3.1)}$$

où $C_1 = 2hc^2$ et $C_2 = \frac{hc}{k}$, avec c la vitesse de la lumière, h la constante de Planck, k la constante de Boltzmam, ε et T respectivement l'émissivité et la température du corps et λ la longueur d'onde observée. Pour des longueurs d'onde petites comme celles du domaine visible, le terme $e^{\frac{C_2}{\lambda.T}}$ est largement supérieur à 1 et l'approximation de Wien peut être appliquée à l'équation II.3.1 afin d'aboutir à la simplification suivante sur la luminance spectrale :

$$L(\lambda, T) = \varepsilon(\lambda, T) \times \frac{C_1}{\lambda^5} \times e^{-\frac{C_2}{\lambda.T}} \qquad \text{(II.3.2)}$$

Lorsque la matière peut être assimilée à un corps gris, l'émissivité ne dépend que de la température et la luminance spectrale générée est proportionnelle à λ^{-5} pour une température fixée. Les sphères d'alumine possèdent un diamètre généralement compris entre 50 nm et 250 nm dans les microflammes, soit une taille plus faible que la longueur d'onde observée dans le domaine du visible. La section transversale d'émission de ces particules est alors proportionnelle à λ^{-1}. L'indice d'absorption de l'alumine décroît également avec la longueur d'onde sur une plage allant de 200 nm à 1000 nm (Parry, 1991) et ce phénomène induit une dépendance proportionnelle à λ^{-1}. Pour des particules d'alumine nanométriques, la littérature propose donc $\varepsilon(\lambda) \propto 1/\lambda^2$ (Goroshin, 2007) induisant une luminance spectrale produite proportionnelle à λ^{-7} lorsque la température est fixée.

Une fois la contribution de la phase gazeuse déduite du spectre d'émission de la flamme métallique, l'intensité spectrale I_λ résultant uniquement du rayonnement thermique des particules sous la forme condensée peut s'exprimer par l'équation suivante :

$$I_\lambda = \frac{a}{\lambda^b} \times e^{-\frac{C_2}{\lambda.T}} \qquad \equiv \qquad \ln(I_\lambda \times \lambda^b) = \ln(a) - \frac{c_2}{\lambda.T} \qquad \text{(II.3.3)}$$

où a correspond à une constante et b vaut 5 ou 7 selon l'hypothèse considérée sur l'émissivité des particules dans la zone de réaction. L'équation (II.3.3) peut alors être assimilée à une fonction affine du type $Y = AX + B$, où $\mathrm{Y} = \ln(I_\lambda \times \lambda^b)$, $A = -\frac{C_2}{T}$, $X = 1/\lambda$ et $B = \ln(a)$.

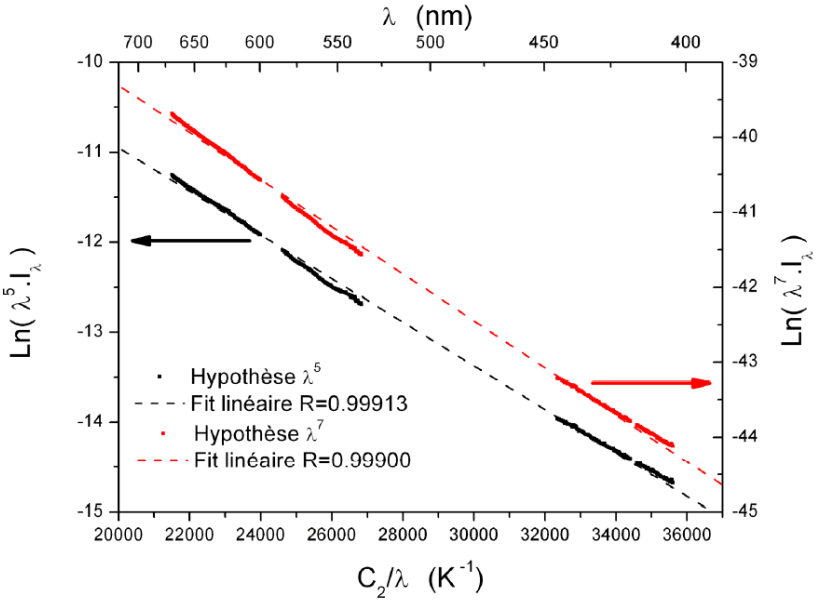


FIGURE II.3.15 – Comparaison des données spectrales acquises lors de la combustion d'un nuage de particules avec le modèle radiatif utilisant deux hypothèses *(Bocanegra, 2007)*

La figure II.3.15 présente un exemple de spectre d'émission issu de la combustion d'un nuage de particules d'aluminium en suspension dans de l'air. Son intensité spectrale y est représentée sous la forme $\ln(I_\lambda \times \lambda^5)$ et $\ln(I_\lambda \times \lambda^7)$ en fonction de C_2/λ, où toutes les valeurs du spectre impactées par l'émission radiative d'un composé gazeux sont volontairement évincées afin de conserver uniquement la partie provenant du rayonnement thermique des particules condensées. Dans ces conditions, la régression linéaire induite par l'équation (II.3.3) fournit une bonne représentativité du spectre d'émission de la flamme métallique pour les deux hypothèses envisageables sur l'émissivité des particules, avec un léger avantage mathématique pour l'hypothèse d'un comportement de type corps gris. Cette observation semble indiquer que la représentation de l'intensité spectrale par $\ln(I_\lambda \times \lambda^b)$ est peu sensible à l'hypothèse sur l'émissivité des particules en raison d'un tassement des valeurs induit par la fonction logarithmique et cela doit être considéré dans l'interprétation des températures.

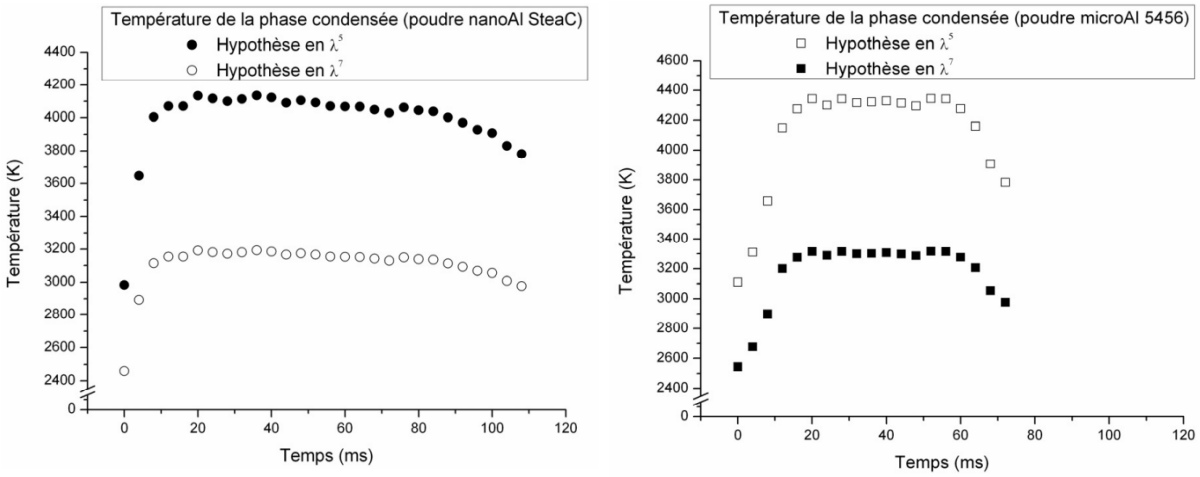


FIGURE II.3.16 – Estimation de la température de la phase condensée selon l'hypothèse d'émissivité des particules lors de la combustion d'un mélange Al / air (*Bocanegra, 2007)*

Le coefficient directeur de ces deux régressions linéaires permet alors de déterminer la température associée à l'équation (II.3.3) selon l'hypothèse choisie sur l'émissivité des particules. La figure II.3.16 présente ainsi l'évolution temporelle de la température des particules sous la forme condensée lors de la propagation d'une flamme dans un tube rempli avec un mélange Al / air. Deux poudres d'aluminium sont utilisées durant ces travaux, une poudre nanométrique et une autre micrométrique possédant des particules métalliques avec un diamètre moyen respectivement de 187 nm et 4,8 µm. En assimilant les particules à un corps gris dans la zone de réaction, la température de la phase condensée est estimée à environ 4100 K pour la poudre nanométrique et à 4300 K pour la poudre micrométrique. Ces deux températures étant au-dessus du point d'ébullition connu de l'alumine, cette hypothèse apparaît physiquement impossible et celle-ci n'est pas retenue.

Concernant l'hypothèse d'un rayonnement thermique piloté par les particules d'alumine nanométriques suivant une émissivité proportionnelle à λ^{-2}, la température de la phase condensée est estimée à environ 3200 K pour la poudre nanométrique et à 3300 K pour la poudre micrométrique. Avec un ordre de grandeur des températures cohérent avec la phénoménologie de combustion des particules d'aluminium, cette hypothèse est présentée comme la plus réaliste dans la littérature. En revanche, celle-ci ne traduit pas les observations faites par visualisation directe durant la combustion d'une particule isolée, où la goutte d'aluminium émet également un rayonnement thermique non négligeable. L'inconvénient de cette méthodologie réside dans l'absence d'une comparaison entre le rayonnement qui serait engendré par des particules à la température estimée et le spectre d'émission de la flamme métallique réellement mesuré afin d'en évaluer sa représentativité globale.

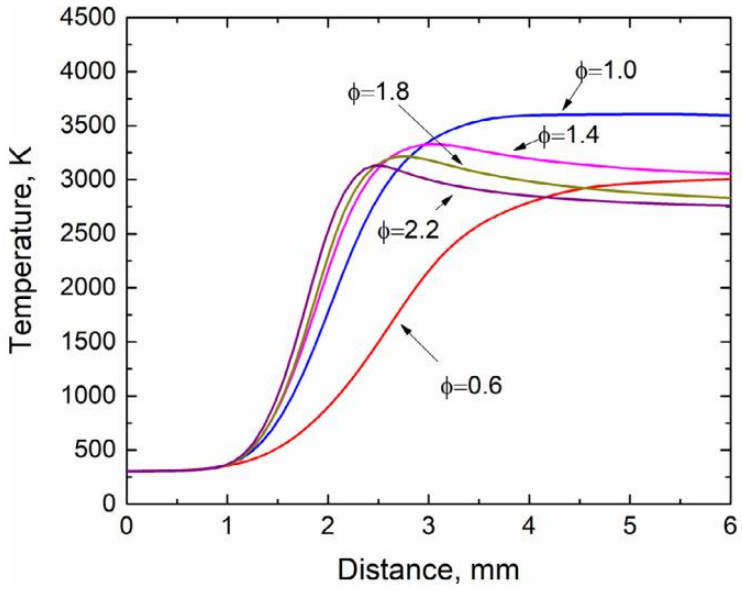


FIGURE II.3.17 – Estimation numérique de l'évolution en température de la phase gazeuse au sein d'une flamme prémélangée Al / air selon la richesse des gaz frais *(Han, 2019)*

Dans la littérature, la température de flamme peut également être assimilée à la température du gaz porteur des particules dans la zone de réaction. De manière générale, ce gaz correspond à de l'argon, du diazote, ou de l'hélium, et l'estimation de sa température reste expérimentalement difficile pour ces niveaux de pression et de température. Celle-ci

intervient plutôt dans les simulations numériques et peut être déterminée par un bilan énergétique global, dépendant alors de plusieurs hypothèses fortes sur l'interaction des particules entre-elles et sur les transferts thermiques en jeu. La figure II.3.17 présente un exemple de résultats obtenus à travers la simulation numérique de la combustion d'un mélange d'air et de particules d'aluminium possédant un diamètre moyen de 5,4 µm. La répartition spatiale de la température du gaz porteur varie alors selon la richesse du mélange en raison des transferts thermiques changeant avec la distance moyenne entre les particules métalliques et la disponibilité de l'oxygène pour réagir. La température maximale au sein de la phase gazeuse est atteinte pour un mélange stœchiométrique, correspondant à la valeur de la température de flamme adiabatique, et diminue progressivement avec l'augmentation de la richesse ou de la pauvreté du mélange. Ces observations doivent cependant être modérées en raison d'une fiabilité induite par la représentativité des lois implémentées dans le modèle numérique, nécessitant alors une validation expérimentale.

II.3.3 Vitesse de flamme laminaire

Au-delà de l'apport scientifique, la connaissance de la vitesse de flamme laminaire est indispensable pour concevoir des systèmes industriels. La caractérisation de ce paramètre macroscopique a du sens uniquement pour des flammes prémélangées, correspondant alors à la vitesse de propagation du front de flamme dans les gaz frais. Lors d'une combustion issue de particules métalliques en suspension, la vitesse de flamme laminaire fournit une indication sur la stabilité du front de flamme et sur la puissance potentiellement libérable par la flamme.

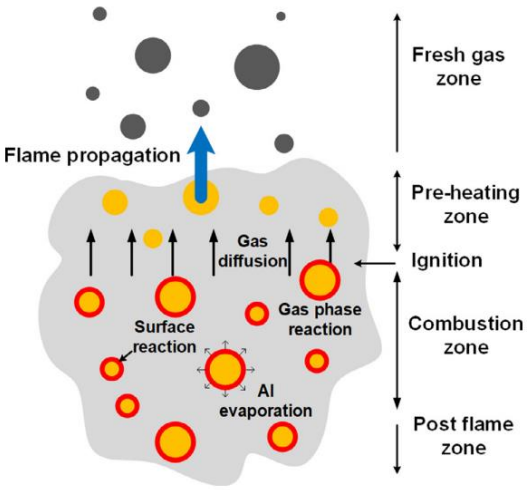


FIGURE II.3.18 – Schématisation à l'échelle microscopique d'une flamme métallique et de sa propagation dans les gaz frais prémélangés *(Han, 2019)*

La figure II.3.18 présente une schématisation à l'échelle microscopique de la structure d'une flamme métallique issue de particules d'aluminium en suspension dans un gaz oxydant. L'épaisseur d'une flamme prémélangée se compose d'une zone de préchauffage et d'une zone de réaction, où celles-ci sont séparées physiquement par les premières réactions chimiques des particules métalliques. Ce type de flamme se propage des gaz brûlés vers les gaz frais et sa vitesse de flamme laminaire est définie comme étant la vitesse de propagation normale au front de flamme, soit l'isotherme séparant les gaz frais et la zone de préchauffage.

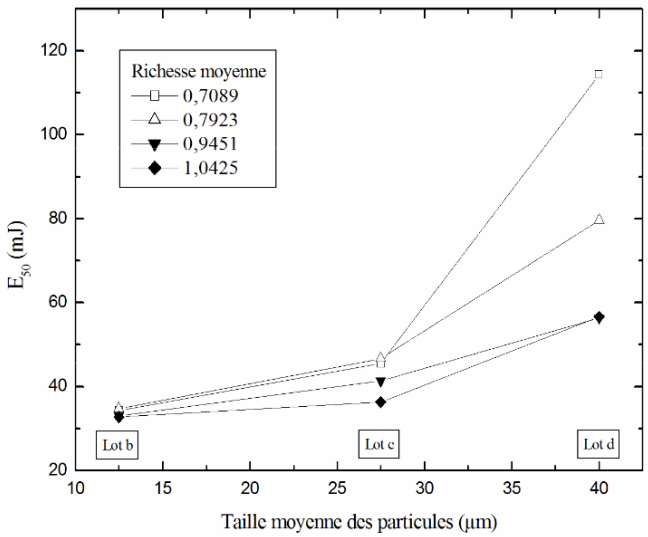


FIGURE II.3.19 – Évolution du seuil d'énergie amorçant la combustion d'un nuage de particules d'aluminium selon la richesse et la granulométrie de la poudre *(Baudry, 2007)*

D'une manière générale, la vitesse de flamme laminaire dépend de la température initiale du mélange, de la nature de l'oxydant, de la pression et de la richesse des gaz frais. Lors d'une combustion métallique, la nature du métal, le taux d'oxyde recouvrant les particules, la granulométrie de la poudre et la distance entre les particules influencent également la vitesse de propagation du front de flamme. La figure II.3.19 présente le seuil d'énergie nécessaire pour amorcer la combustion d'un nuage de particules d'aluminium en fonction de la granulométrie de la poudre utilisée et de la richesse du mélange initial. Ce paramètre illustre directement la réactivité du mélange, soit la facilité avec laquelle celui-ci peut s'enflammer. La vitesse de flamme laminaire est donc plus élevée lorsque ce seuil d'énergie diminue. Pour un mélange Al / air, ce seuil d'énergie augmente avec la taille des particules métalliques et la pauvreté des gaz frais, l'effet de la richesse s'estompant avec la diminution du diamètre des particules en raison d'une distance interparticulaire déjà plus faible. Une poudre métallique possédant une faible granulométrie permet alors d'augmenter la réactivité du mélange et de réduire les impacts liés à des hétérogénéités de richesse locale ou de taille de particules sur la vitesse de flamme laminaire, contribuant ainsi à une meilleure stabilité du front de flamme.

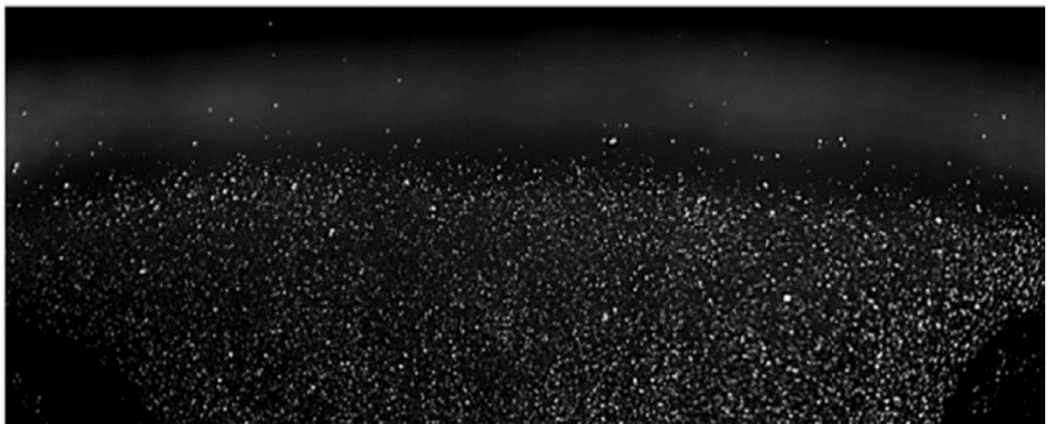


FIGURE II.3.20 – Image d'une tomographie laser réalisée sur une flamme plate issue d'un écoulement composé d'air et de particules d'aluminium micrométriques *(Julien, 2017)*

Dans le cas des flammes issues de la combustion de particules métalliques, la vitesse de flamme laminaire peut être estimée de manière microscopique. La figure II.3.20 présente l'image d'une tomographie laser réalisée sur une flamme Al / air plate, celle-ci étant stabilisée à la sortie d'un brûleur de type Bunsen. La création d'une nappe laser de faible épaisseur permet ainsi d'apercevoir les particules solides dans l'écoulement grâce à leur diffusion de Mie. La vitesse des particules, et par conséquent celle de l'écoulement, peut être déterminée via la méthode PIV (Particle Image Velocimetry) en utilisant deux images de tomographie laser acquises successivement sur un temps très court. L'isotherme séparant les gaz frais de la zone de préchauffage, c'est-à-dire la position du front de flamme, est identifiée au niveau de l'augmentation en vitesse des particules suite à la dilatation du gaz porteur sous l'effet de son élévation en température. La vitesse de flamme laminaire équivaut ainsi à la composante normale de la vitesse des particules sur ce front de flamme.

La vitesse de flamme laminaire peut également être déterminée de manière plus macroscopique. L'utilisation d'une enceinte à volume constant facilite la création d'un nuage de particules métalliques dans des conditions prémélangées. L'allumage de ce nuage en son centre génère la propagation d'une flamme sphérique et une élévation de la pression liée à la dilatation thermique des gaz. Le profil de cette pression permet alors de calculer la vitesse de flamme laminaire S_L selon la corrélation semi-empirique suivante (Silvestrini, 2008) :

$$S_L = \frac{0{,}11\,.\,K_{st}}{P_m - P_0} \times \left(\frac{P_0}{P_m}\right)^{0{,}14+\,1/\gamma} \qquad \text{(II.3.4)}$$

où P_0 est la pression initiale dans l'enceinte, P_m correspond à la pression maximale mesurée durant la combustion, reflétant la quantité totale de chaleur libérée, et γ est l'indice adiabatique du mélange initial. L'indice de déflagration K_{st} équivaut au taux de dégagement de chaleur durant la combustion et celui-ci est défini par l'équation suivante pour des essais en enceinte à volume constant V :

$$K_{st} = \left(\frac{dP}{dt}\right)_{max} \times V^{1/3} \qquad \text{(II.3.5)}$$

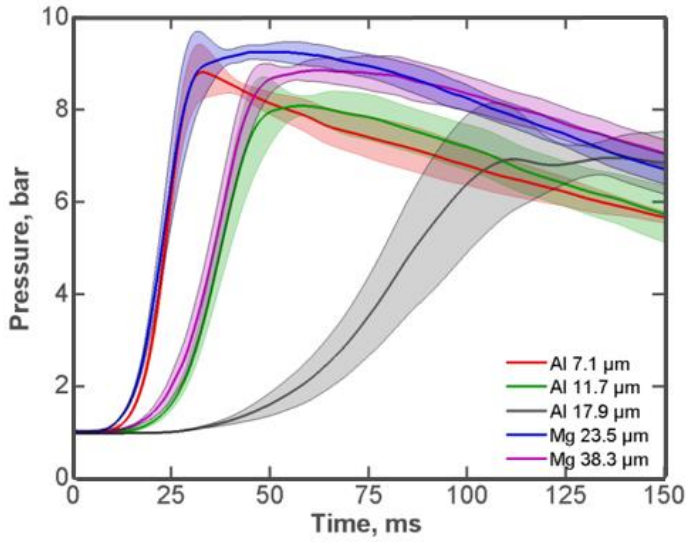


FIGURE II.3.21 – Traces de pression relevées lors d'essais de combustion Al / air réalisés en enceinte à volume constant pour différentes granulométries de poudre *(Lomba, 2016)*

La figure II.3.21 présente des profils de pression obtenus durant des essais de combustion effectués en enceinte à volume constant. Le mélange initial est généré à température ambiante et dans des conditions stœchiométriques, reposant sur des particules métalliques micrométriques en suspension dans de l'air. Lors de cette étude, plusieurs granulométries ont été testées durant les essais de combustion Al / air. Les traces de pression issues de ces essais montrent une augmentation de l'indice de déflagration et de la pression maximale lorsque la taille des particules d'aluminium diminue. Cette observation indique une meilleure réactivité du mélange pour de faibles granulométries et confirme les résultats précédemment cités sur le seuil d'énergie pour amorcer la combustion métallique. Lors de ces essais de combustion Al / air, la granulométrie moyenne varie entre 7,1 µm et 17,9 µm et la vitesse de flamme laminaire associée aux traces de pression vaut entre 10 cm/s et 44 cm/s.

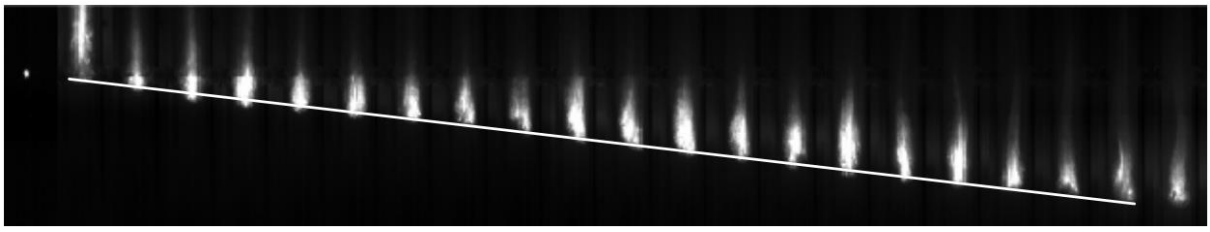


FIGURE II.3.22 – Série d'images illustrant la propagation d'une flamme métallique dans un tube lors de la combustion d'un nuage de nanoparticules d'aluminium *(Bocanegra, 2007)*

La vitesse de flamme laminaire est un paramètre pouvant également être estimé via des méthodes simplifiées comme la visualisation directe de la combustion. La figure II.3.22 présente une séquence d'images obtenues lors de la propagation d'une flamme dans un tube possédant des particules d'aluminium nanométriques en suspension dans de l'air. Le suivi temporel de la position macroscopique de la flamme permet alors d'évaluer sa vitesse de propagation. Lorsque la distance de combustion est suffisamment grande, cette approche reste acceptable pour obtenir une valeur moyenne de la vitesse de flamme laminaire.

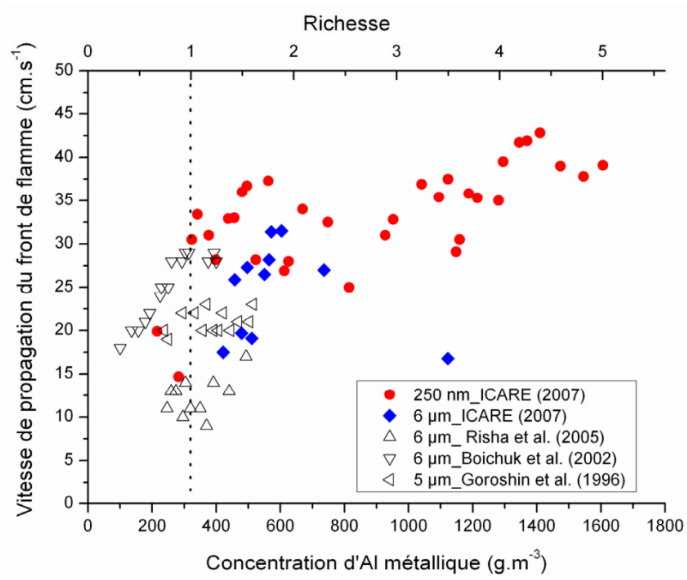


FIGURE II.3.23 – Comparaison de la vitesse de flamme laminaire lors d'une combustion Al / air selon la richesse du mélange et la taille des particules métalliques *(Bocanegra, 2010)*

La figure II.3.23 présente la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la granulométrie de la poudre métallique utilisée et de la richesse du mélange Al / air. Ces valeurs expérimentales sont estimées à travers la méthodologie décrite précédemment et celles-ci sont comparées à des données bibliographiques issues de la combustion de particules d'aluminium possédant un diamètre moyen similaire à la poudre micrométrique étudiée. D'une manière générale, l'utilisation de particules nanométriques induit une vitesse de flamme laminaire plus importante et la combustion métallique peut se maintenir sur une plage de richesse plus conséquente. Pour des particules d'aluminium possédant un diamètre moyen de 250 nm, la vitesse de propagation du front de flamme augmente avec la richesse des gaz frais en atteignant une valeur estimée à 43 cm/s pour une richesse d'environ 4,4. Pour des particules dont le diamètre moyen est de 6 µm, la vitesse de flamme laminaire est largement dispersée et oscille entre 11 et 33 cm.s^{-1} dans des conditions stœchiométriques, soit un facteur de 3 sur ce paramètre. La valeur de la vitesse de flamme laminaire reste donc complexe à déterminer et dépend de la méthode de mesure mise en place, de la distribution de la granulométrie de la poudre métallique utilisée et du dispositif expérimental employé.

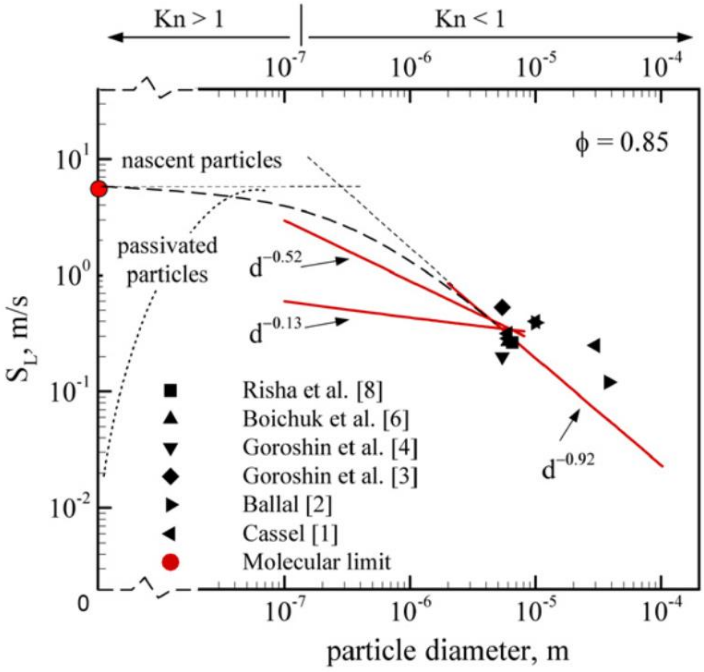


FIGURE II.3.24 – Influence de la taille des particules sur la vitesse de flamme laminaire pour la combustion d'un mélange Al / air avec une richesse de 0,85 *(Huang, 2009)*

De manière similaire à la température de flamme, la vitesse de flamme laminaire peut être estimée à travers un modèle numérique basé sur le bilan d'énergie au sein de l'épaisseur de flamme. La figure II.3.24 présente les corrélations numériques de ce paramètre en fonction de la taille des particules métalliques et des hypothèses considérées. Une comparaison avec les données expérimentales existantes est également présentée pour la combustion d'un mélange Al / air possédant une richesse de 0,85. Les valeurs de la vitesse de flamme laminaire obtenues numériquement sont calculées grâce à la température des gaz frais et la loi de combustion établie à l'échelle particulaire, soit directement liée au diamètre des particules. Pour la combustion de particules d'aluminium micrométriques, ces calculs suggèrent que la vitesse de propagation du front de flamme est proportionnelle au diamètre moyen des

particules selon $d^{-0,92}$. Pour la combustion de particules nanométriques, la corrélation proposée dépend de la loi de combustion intégrée dans le modèle numérique, donnant une régression linaire en fonction de $d^{-0,13}$ ou $d^{-0,52}$. Ces corrélations sur la vitesse de flamme laminaire sont cependant à utiliser avec précaution puisque la loi de combustion est assez peu documentée dans la littérature pour des particules métalliques. Afin d'augmenter la fiabilité de ces résultats numériques, la loi de combustion nécessiterait plus de données expérimentales sur la combustion de particules isolées et sur l'impact de l'effet de groupe lors de la combustion d'un aérosol. Globalement, même si une poudre très fine induit une vitesse de flamme accrue, l'utilisation de particules d'aluminium nanométriques présente peu d'intérêt dans les systèmes énergétiques en raison des phénomènes accrus d'agglomération rencontrés lors de la dispersion et du ratio important entre la couche d'oxyde protectrice et le métal pur contenu dans ces particules.

II.4 Bilan bibliographique

Au-delà du rendement de combustion, la capacité énergétique des poudres d'aluminium décroît avec la réduction de leur granulométrie. Intrinsèquement liée à une importante fraction massique d'alumine dans la composition chimique globale des particules métalliques, l'utilisation d'une poudre d'aluminium nanométrique perdrait tout son sens pour une application comme vecteur énergétique métallique appliqué au domaine du transport. L'emploi de particules possédant un diamètre moyen de l'ordre de 5 µm est à privilégier pour maximiser les propriétés énergétiques d'une poudre d'aluminium en conservant une bonne réactivité avec un mélange Al / air.

Le processus d'allumage de ces particules d'aluminium reste une combinaison de plusieurs phénomènes complexes, notamment en raison de la couche d'oxyde métallique présente à la surface de celles-ci. La température nécessaire pour amorcer la combustion d'une poudre en suspension dans de l'air demeure encore approximative et dépend de la taille des particules d'aluminium, de la richesse de l'aérosol et du délai d'allumage souhaité. Néanmoins, la quantité de chaleur dégagée par la combustion d'un mélange CH_4 / air dans des conditions stœchiométriques, produisant une température de flamme adiabatique estimée à environ 2230 K (Movileanu, 2011), serait suffisante pour enflammer des particules d'aluminium micrométriques avec un diamètre d'environ 10 µm. Cette solution permettrait de faciliter l'allumage d'une flamme métallique en réduisant la création d'instabilités. micrométriques avec un diamètre d'environ 10 µm.

Les différentes observations constatées sur des particules isolées révèlent que la fin de leur cycle de combustion dépend de phénomènes multiphysiques complexes encore méconnus et peut conduire à un reste d'aluminium imbrûlé. Durant ce type de combustion, la formation d'oxynitrure d'aluminium engendrée par la croissance du lobe d'alumine en surface de la goutte métallique pourrait jouer un rôle dans la fin d'oxydation chaotique de celles-ci. Cependant, ce comportement reste difficilement identifiable pour la combustion d'un aérosol en raison de la complexité à étudier une seule particule dans l'épaisseur d'une flamme métallique. L'effet de groupe sur la combustion est peu documenté dans la littérature, mais celui-ci impacte directement le mode d'oxydation à l'échelle particulaire, passant d'un régime piloté par les réactions hétérogènes de surface pour la combustion d'une seule

particule nanométrique à un régime contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses lors de la combustion d'une poudre nanométrique en suspension. Les données existantes sur le rendement de combustion associée à l'oxydation d'un nuage de particules d'aluminium indiquent des valeurs assez faibles qui pourraient être liées à la fin d'oxydation observée sur les particules isolées. Néanmoins, pour une potentielle application industrielle, ce paramètre doit être déterminé avec des dispositifs expérimentaux où la flamme métallique est temporellement stabilisée comme avec l'utilisation d'un brûleur de type Bunsen.

La stabilisation temporelle d'une flamme métallique reste assez complexe en raison du caractère diphasique de l'écoulement prémélangé généré en amont de la combustion. L'emploi d'une poudre micrométrique possédant une faible granulométrie permet d'augmenter la réactivité des gaz frais et de réduire les impacts liés à des hétérogénéités de richesse locale ou de taille de particules sur la vitesse de flamme laminaire, favorisant alors une meilleure stabilité du front de flamme. Cependant, la valeur de la vitesse de propagation du front de flamme peut variée d'un facteur 3 selon les données bibliographiques et cette dispersion ne permet pas un dimensionnement automatique de l'écoulement prémélangé. Ce paramètre doit donc être évalué pour chaque dispositif expérimental et chaque poudre métallique utilisée, où l'utilisation de la technique PIV semble être la plus fiable.

La température de flamme est également un paramètre important pour des applications énergétiques et plusieurs méthodes permettent de l'estimer lors d'une combustion d'un aérosol. L'utilisation du spectre d'émission de la flamme métallique semble être la solution la plus viable pour estimer la température de flamme, mais les hypothèses actuellement utilisées ne sont pas cohérentes avec la visualisation directe de la combustion d'une particule d'aluminium isolée. Considérer deux températures distinctes pour la goutte d'aluminium et pour les particules d'alumine nanométriques en périphérie de celle-ci permettrait éventuellement de gagner en cohérence. Au-delà de la température de flamme, estimer la répartition énergétique entre la partie rayonnée et celle convectée dans les gaz brûlés est indispensable pour récupérer correctement l'énergie issue de la combustion métallique et dimensionner des systèmes industriels.

Chapitre III

Dispositif expérimental

III.1 Principe de fonctionnement

L'objectif de cette thèse consiste à étudier, de manière microscopique et macroscopique, la combustion d'une poudre d'aluminium dispersée dans l'air afin d'améliorer notre compréhension physique de ce phénomène complexe et de contribuer à l'estimation des premiers éléments nécessaires à la validation du concept de vecteur énergétique métallique appliqué au secteur industriel.

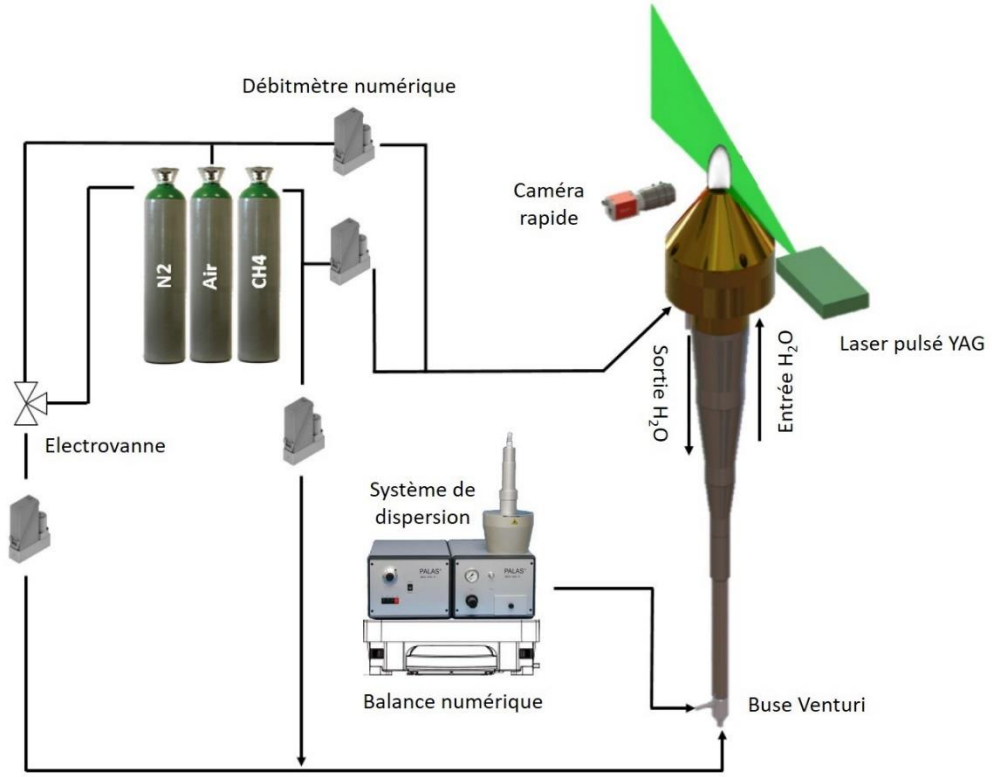


FIGURE III.1.1 – *Représentation schématique du dispositif expérimental*

Le challenge est alors de réussir à stabiliser spatialement et temporellement une flamme prémélangée alimentée par des particules d'aluminium en suspension dans l'air. La solution retenue pour cette étude se base sur un brûleur de type Bunsen afin de tendre vers l'obtention d'une flamme Al / air laminaire, conique et immobile, évoluant en champ libre. Cette configuration expérimentale permet également de maîtriser et de contrôler les conditions rencontrées par le front de flamme métallique. Le brûleur utilisé a été conçu et réalisé lors d'une précédente thèse (Lomba, 2016) et le dispositif a été modifié afin d'accroître la fiabilité du système et de permettre une caractérisation plus complète des phénomènes mis en jeu.

La figure III.1.1 présente schématiquement les différents éléments constituant le dispositif expérimental et son fonctionnement général. Celui-ci se décompose alors en 3 parties distinctes :

- La zone de gestion des fluides servant à contrôler les débits volumiques en gaz sur l'ensemble du banc d'essai, avec notamment la régulation de l'air dans l'écoulement principal employé comme support pour transporter les particules d'aluminium et comme oxydant pour la combustion
- Le système de dispersion permettant à la fois de réguler le débit massique en poudre d'aluminium et de mettre les particules métalliques en suspension
- Le conditionnement de l'écoulement principal déterminant les propriétés physiques du mélange Al / air telles que sa vitesse, son niveau de turbulence ou encore son homogénéité en particules à la sortie du dispositif

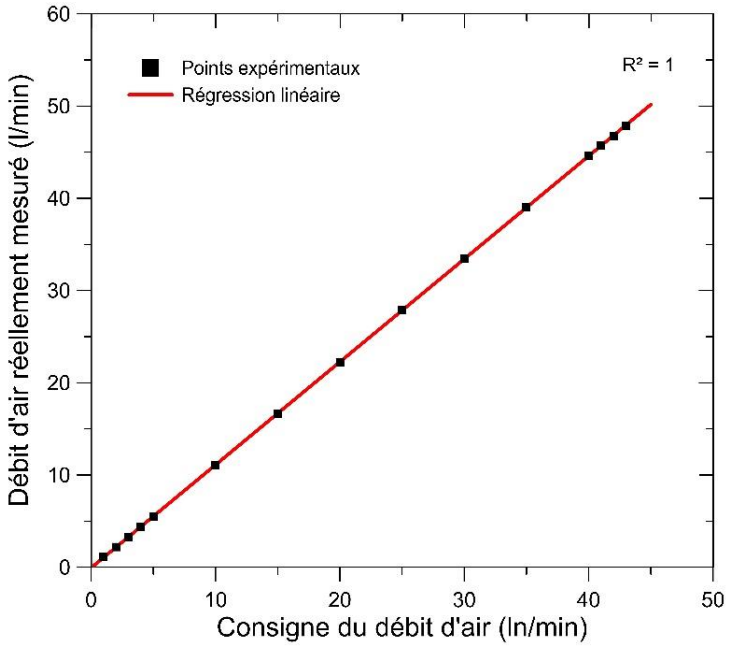


FIGURE III.1.2 – *Calibration du débitmètre numérique pilotant le flux d'air injecté au niveau de la buse Venturi (T_{amb} = 19,5 °C et P_{amb} = 99,75 kPa)*

L'air provient du réseau basse pression du bâtiment après avoir subi une déshumidification. Les autres gaz utilisés pour ces travaux sont fournis au moyen de bouteilles B50 louées à Air Liquide et raccordées à des détendeurs haute pression. Ainsi, le débit de chaque composé gazeux alimentant le banc d'essai est piloté par un débitmètre numérique

Bronkhorst. Le débit en air injecté peut être régulé jusqu'à un débit volumique maximal de 50 Nl/min. Comme illustré sur la figure III.1.2, les débitmètres ont tous été étalonnés dans les conditions opératoires grâce à une colonne DryCal ML-800, permettant alors de définir précisément le débit d'air injecté au niveau de la buse Venturi située à l'entrée du brûleur.

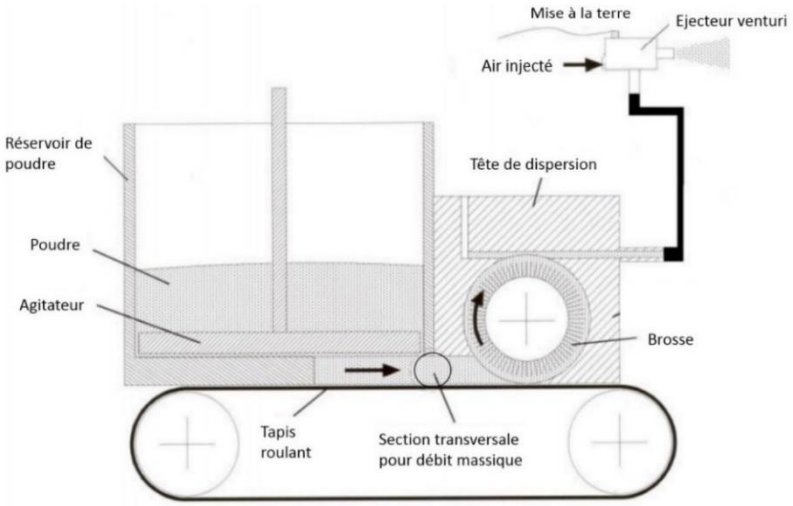


FIGURE III.1.3 – *Schématisation du système de dispersion utilisé (adapté de la description du fonctionnement par le constructeur (https://www.palas.de/en/product/beg1000)*

Concernant la mise en suspension des particules d'aluminium, le système de dispersion retenu pour le banc expérimental est un générateur d'aérosol commercial Palas BEG 1000. La figure III.1.3 présente de manière schématique le fonctionnement de ce dispositif. Celui-ci est composé des éléments suivants : un réservoir avec un agitateur en étoile dans le fond, un tapis roulant, une brosse et un éjecteur Venturi positionné directement à l'entrée du brûleur.

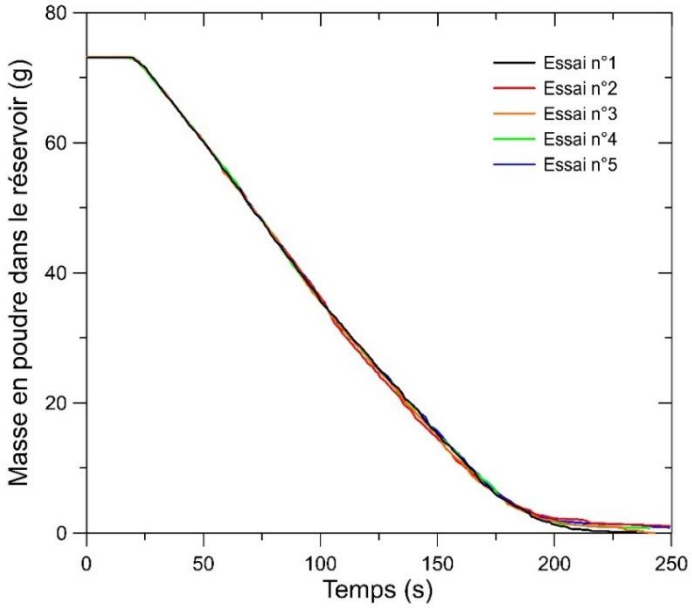


FIGURE III.1.4 – *Répétabilité du système de dispersion pour une vitesse du tapis roulant à 2,1 mm/s et un débit en air injecté de 30 l/min*

L'agitateur mécanique alimente continuellement le tapis roulant en poudre d'aluminium issue du réservoir. À l'extrémité de ce tapis, une brosse tournant dans le sens inverse récupère la poudre et met les particules en suspension au niveau de la tête de dispersion. Le débit d'air injecté au niveau de la buse Venturi induit alors une dépression qui aspire l'aluminium en suspension. Une balance à enregistrement numérique Ohaus Explorer, dont la précision et le temps de réponse sont respectivement de 0,1 g et 1 s, a été installée sous le générateur d'aérosol afin de quantifier temporellement la masse de poudre dispersée. La figure III.1.4 présente l'évolution de la masse de particules mesurée par la balance électronique lors de plusieurs essais dans des conditions opératoires identiques. Pendant le fonctionnement du système de dispersion, le débit massique de poudre d'aluminium est alors globalement constant à la sortie du générateur et celui-ci possède une très bonne répétabilité entre les différents essais.

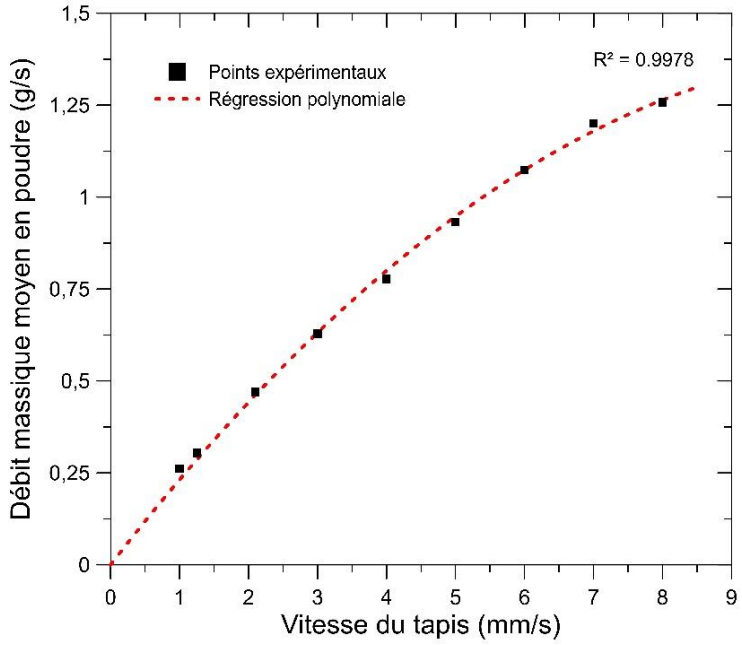


FIGURE III.1.5 – *Évolution du débit massique en poudre d'aluminium à la sortie du Palas selon la vitesse du tapis roulant ($\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min)*

Néanmoins, la présence d'une section de passage transversale de 170 mm^2 au niveau du tapis roulant conditionne la quantité de poudre pouvant être acheminée jusqu'à la brosse. Le débit de particules d'aluminium au niveau de l'éjecteur Venturi dépend alors directement de la vitesse de ce tapis. Pour un débit volumique d'air injecté constant à 30 l/min, la figure III.1.5 illustre l'évolution du débit massique moyen de poudre à la sortie du système de dispersion par rapport à la vitesse du tapis roulant. Cette évolution est non linéaire et pourrait s'expliquer par la modification de la répartition des pertes de charge associée à l'écoulement du flux aspiré, issu de la dépression induite par la buse Venturi, avec la variation du débit de particules d'aluminium. Par conséquent, pour un débit d'air injecté constant au niveau de la buse Venturi, le rendement de dispersion du générateur d'aérosol décroît avec la vitesse du tapis roulant.

L'écoulement principal dans le corps du brûleur est alors un mélange d'air chargé en particules d'aluminium, issu de deux flux dépendant respectivement du pilotage des

débitmètres numériques et de la vitesse du tapis roulant du système de dispersion. Le débit total d'air à la sortie du brûleur résulte donc de la somme du débit d'air injecté et de celui venant de l'air aspiré par la buse Venturi. Pour garantir la tenue thermomécanique du dispositif expérimental durant la phase de combustion Al / air de l'écoulement principal, la tête du brûleur illustrée sur la figure III.1.6 est refroidie par une circulation d'eau interne. Néanmoins, une flamme pilote annuaire est nécessaire en périphérie de l'écoulement principal afin de limiter les instabilités provenant des pertes thermiques de la base de la flamme métallique vers le brûleur. Ainsi, cette petite flamme CH_4 / air stœchiométrique est stabilisée à la sortie du dispositif expérimental grâce à un écoulement prémélangé qui est laminarisé au passage d'un corps poreux placé dans la tête du brûleur.

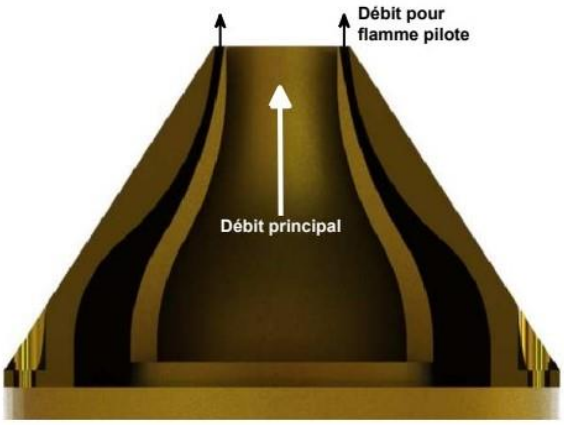


FIGURE III.1.6 – *Image CAO d'une vue en coupe de la tête du brûleur (Lomba, 2016)*

FIGURE III.1.7 – *Photo de la flamme prémélangée CH_4 / air au début de la phase d'ensemencement en particules*

L'obtention d'une flamme purement métallique à la sortie du brûleur est alors possible après l'enchaînement de plusieurs étapes :

1) La flamme pilote annulaire située à la base du brûleur est allumée manuellement.
2) Un mélange CH_4 / air stœchiométrique est également injecté au niveau de l'écoulement principal et une flamme conique se stabilise à la sortie du brûleur. La quantité de chaleur dégagée par la réaction chimique au sein de cette flamme est alors suffisante pour amorcer la combustion des particules d'aluminium.
3) Le système de dispersion est mis en fonctionnement et un ensemencement de la flamme principale CH_4 / air s'opère progressivement avec les particules d'aluminium, donnant ainsi une configuration semblable à la figure III.1.7.
4) Une fois la concentration en poudre adéquate dans la zone de réaction, l'alimentation en méthane est lentement coupée dans l'écoulement principal, passant alors d'une flamme hybride CH_4 / Al / air à une flamme purement Al / air autoentretenue.

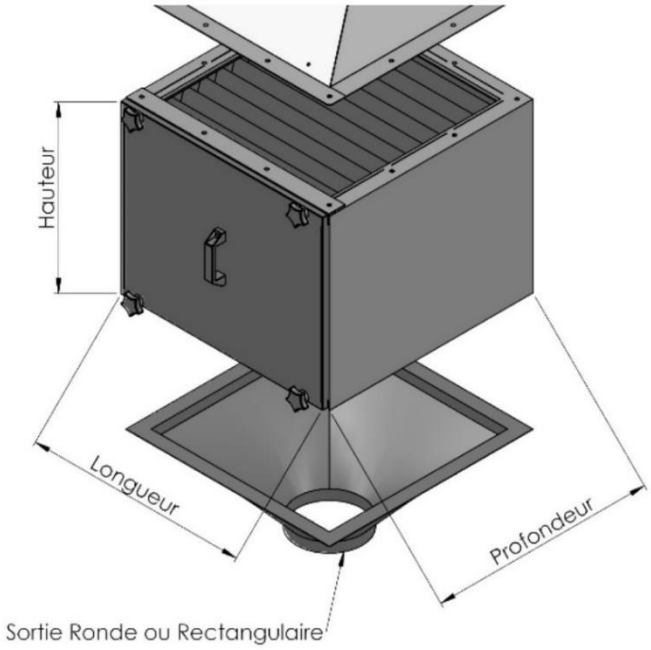


FIGURE III.1.8 – *Image CAO du système de filtration complétant le dispositif expérimental*

Afin de respecter les normes du laboratoire et de tendre vers le vecteur énergétique métallique proposé, un système complémentaire d'extraction et de filtration des gaz brûlés a été conçu et installé au-dessus du dispositif expérimental. Les données bibliographiques introduites précédemment sur la combustion de l'aluminium dans l'air présageaient la création de produits de combustion solides submicroniques. Après avoir étudié différents systèmes de filtration, la solution finalement retenue est présentée sur la figure III.1.8 et consiste en un filtre HEPA de classe H13 pouvant fonctionner jusqu'à une température continue de 300 °C. L'efficacité globale de cette classe de filtration est alors supérieure à 99,95 % pour des particules possédant un diamètre de 0,3 µm (normes européennes : EN1822-1:2009 et ISO29463-1). Avec une surface projetée de 0,186 m², le filtre à particules génère des pertes de charge de 280 Pa pour un débit volumique global d'aspiration de 1300 m^3/h. La jonction entre le panache des gaz brûlés et le système de filtration est assurée par un tuyau en acier galvanisé avec un diamètre de 250 mm, induisant alors une vitesse moyenne de 7,4 m/s au niveau du point d'aspiration. Évoluant dans une configuration en champ libre, cette vitesse d'aspiration permet de contraindre localement le panache des gaz brûlés pour récupérer l'ensemble des produits de combustion solides. Néanmoins, afin de limiter l'impact de la ventilation sur la flamme métallique, l'extrémité du tuyau est positionnée 400 mm au-dessus de la sortie du dispositif expérimental et coaxialement au brûleur.

Une solution cyclonique a également été étudiée par simulation numérique en utilisant le modèle de Muschelknautz, avec la prise en compte des phénomènes d'accroche à la paroi et de réentraînement des particules (Muschelknautz, 2012). Il en résulte que des vitesses considérables sont alors nécessaires pour éjecter les particules submicroniques présentes dans les gaz brûlés vers la paroi du cyclone et génèrent des pertes de charge conséquentes. En comparaison avec la solution décrite précédemment, une efficacité de filtration de seulement 50 % sur des particules possédant un diamètre de 0,3 µm engendre des pertes de charge d'environ 25 kPa au niveau du cyclone. Ce système de filtration n'est donc pas adapté pour un usage en champ libre similaire à nos conditions d'étude.

III.2 Caractérisation de la poudre d'aluminium

La poudre métallique utilisée pour ces travaux provient d'une fabrication industrielle afin de s'inscrire dans le cadre d'une application générale. La gamme Al ULTE 0665 fournie par Poudres Hermillon spécifie une grande pureté de l'aluminium et un diamètre moyen de Sauter des particules d'environ 7,1 µm. La morphologie et la distribution en taille de cette poudre à l'état initial ont été analysées avec un Microscope Electronique à Balayage (MEB). La figure III.2.1 présente un exemple de clichés MEB obtenus à travers les électrons secondaires pour différents grossissements. Cette poudre d'aluminium est alors majoritairement constituée de particules sphériques, sans agglomération particulière. Malgré une dispersion constatée dans la taille des particules, l'ordre de grandeur du diamètre moyen de la poudre initiale semble en accord avec la valeur indiquée par le fabricant.

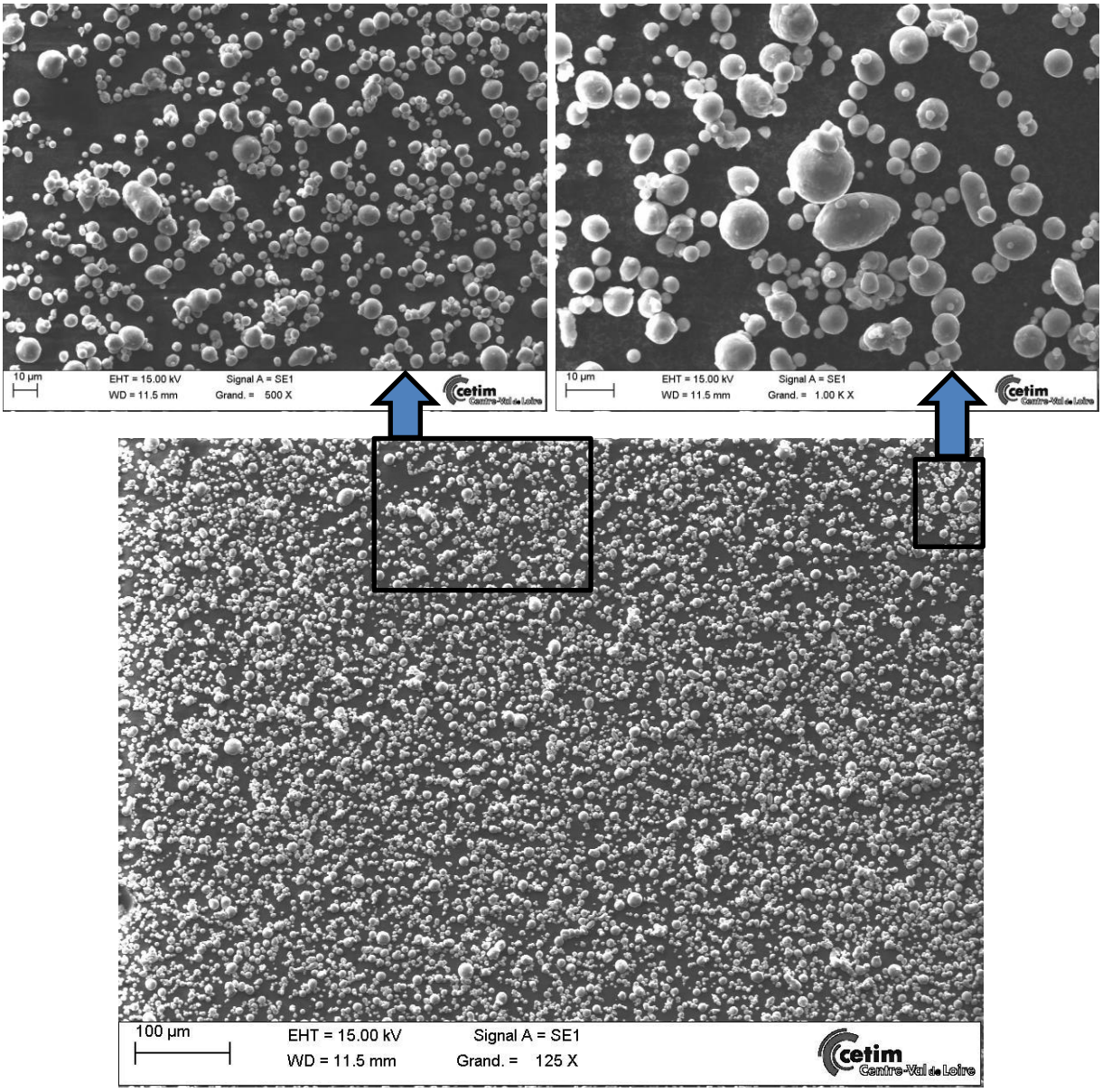


FIGURE III.2.1 – *Clichés MEB de la poudre d'aluminium obtenus à travers les électrons secondaires pour différents grossissements*

La caractérisation de la poudre d'aluminium consiste également à évaluer la quantité moyenne d'alumine enrobant initialement les particules afin d'en ajuster les propriétés énergétiques. En plus de renseigner sur la qualité de la poudre industrielle livrée, ce paramètre permet d'estimer la proportion de matière non réactive dans l'écoulement principal pour déterminer correctement la richesse du mélange à la sortie du brûleur. En raison d'une très faible fraction massique en oxygène dans la poudre initiale, la quantité moyenne d'oxyde d'aluminium présente naturellement à la surface des particules ne peut pas être mesurée par spectroscopie à dispersion d'énergie des rayons X (EDS).

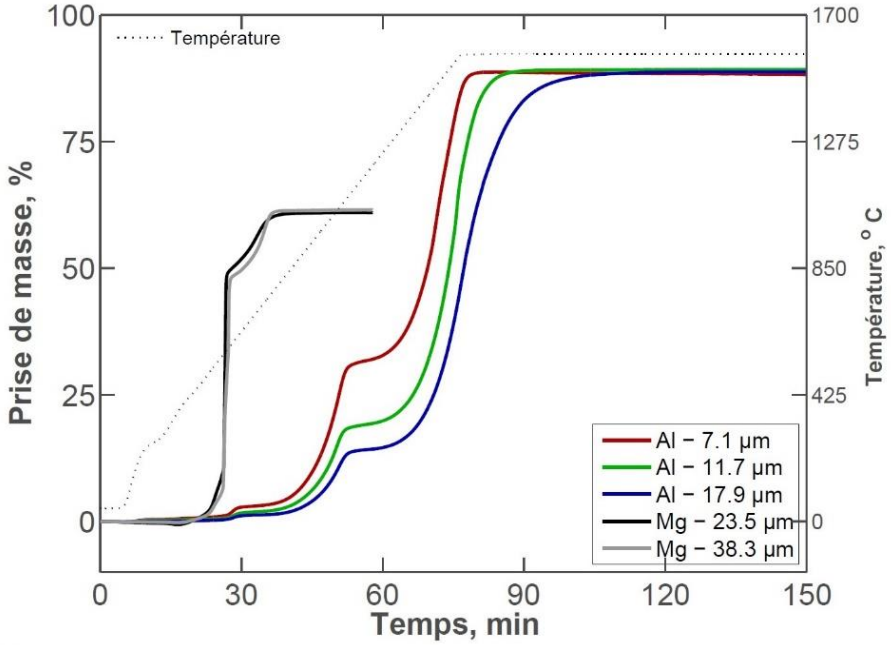


FIGURE III.2.2 – *Évolution temporelle de la prise de masse des particules d'aluminium étudiées en thermogravimétrie selon le gabarit de température présenté (Lomba, 2016)*

Néanmoins, des données sur cette poudre d'aluminium ont déjà été obtenues par analyse thermogravimétrique lors de précédents travaux (Lomba, 2016) et sont présentées sur la figure III.2.2. Grâce à une balance Setaram Setsys 16/18, il s'agissait d'étudier macroscopiquement la prise en masse de 10 mg de poudre pendant son oxydation progressive dans le four. Ces échantillons étaient alors placés dans une nacelle en alumine et chauffés par un balayage d'air suivant un gabarit spécifique de température. La figure III.2.2 présente également le profil de température pilotant l'oxydation des particules métalliques et indique une augmentation de 20 °C à 1570 °C avec une montée en température de 20 °C/min. Afin de s'assurer d'une oxydation totale de l'échantillon, l'essai se finalisait par un maintien thermique à 1570 °C pendant une durée minimale de 1h30.

La figure III.2.3 présente les dérivées temporelles de la prise de masse des différents échantillons de poudre selon la température du four. Ces courbes montrent que la masse d'eau évaporée durant ces analyses thermogravimétriques est négligeable devant celle des échantillons lorsque la poudre métallique est étuvée au préalable. Fidèlement à d'autres résultats de la littérature (Trunov, 2005), 3 pics dans la prise de masse des échantillons sont distinctement constatés selon le niveau de température subi par les particules et sont issus des phénomènes de transformation et de production des phases γ–Al_2O_3, θ–Al_2O_3 et α–Al_2O_3.

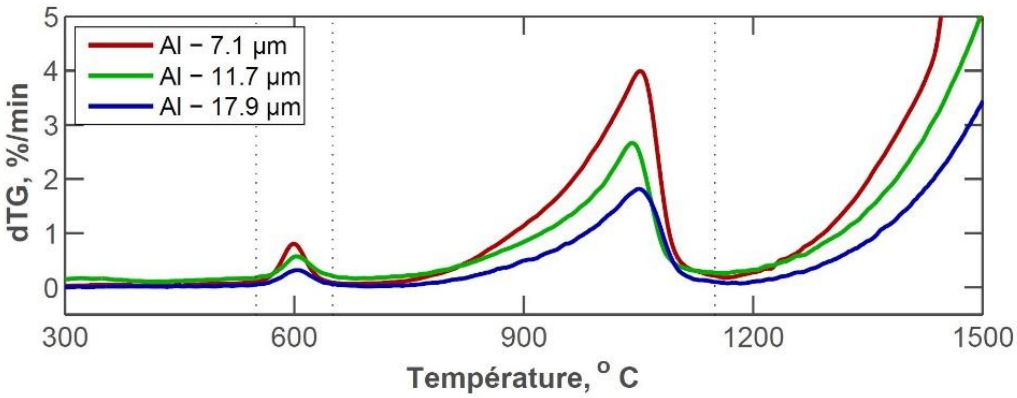


FIGURE III.2.3 – *Dérivées de l'évolution en masse des poudres d'aluminium étudiées durant les analyses thermogravimétriques présentées sur la figure III.2.2 (Lomba, 2016)*

Lorsque des particules d'aluminium pur sont totalement oxydées dans l'air pour des conditions standards de pression et de température, l'élément préférentiellement formé par la réaction chimique correspond à l'alumine et se traduit par l'équation suivante :

$$dm_{Al} = 0{,}89 \,.\, m_0^{Al} \qquad \text{(III.2.1)}$$

où m_0^{Al} est la masse initiale de l'aluminium et dm_{Al} correspond au gain massique issu de l'oxydation du métal. Ainsi, puisque la poudre a été étuvée auparavant, la seule différence entre l'équation théorique (III.2.1) et la mesure expérimentale équivaut directement à la masse d'oxyde métallique initialement présente dans la poudre d'aluminium utilisée (Baudry, 2007). Pour la poudre Al ULTE 0665 possédant un diamètre moyen de Sauter de 7,1 µm, la fraction massique moyenne d'alumine naturellement en surface des particules est d'environ 0,23 %.

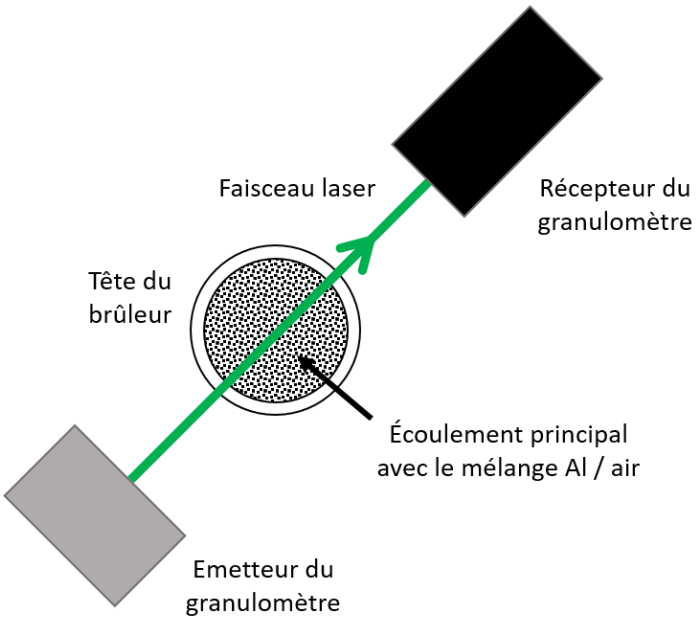


FIGURE III.2.4 – *Schématisation du montage du granulomètre à la sortie du dispositif expérimental durant les essais sans combustion*

Afin de connaître précisément la distribution en taille des particules d'aluminium traversant le front de flamme métallique, un granulomètre HELOS Sympatec est utilisé lors d'essais sans combustion et positionné à la sortie du dispositif expérimental suivant la configuration schématisée sur la figure III.2.4. Son module émetteur est constitué d'un laser HeNe de 5 mW générant un faisceau collimaté d'un diamètre de 4 mm à une longueur d'onde de 632 nm. Le bloc de réception, quant à lui, est composé d'une lentille convergente référencée R5 avec une distance focale de 500 mm et d'un détecteur optique. L'ensemble de ces éléments permet ainsi la mesure de la taille des particules sur une gamme allant d'un diamètre de 0,5 à 875 µm pour une distance de travail pouvant s'étendre jusqu'à 478 mm. Préalablement aux essais, les particules sont placées systématiquement en étuve durant une période minimale de 48 heures à 80 °C afin d'être complètement indépendant de l'humidité présente dans la poudre initiale et, par conséquent, de maîtriser correctement le débit massique d'aluminium dispersé lors des différents essais.

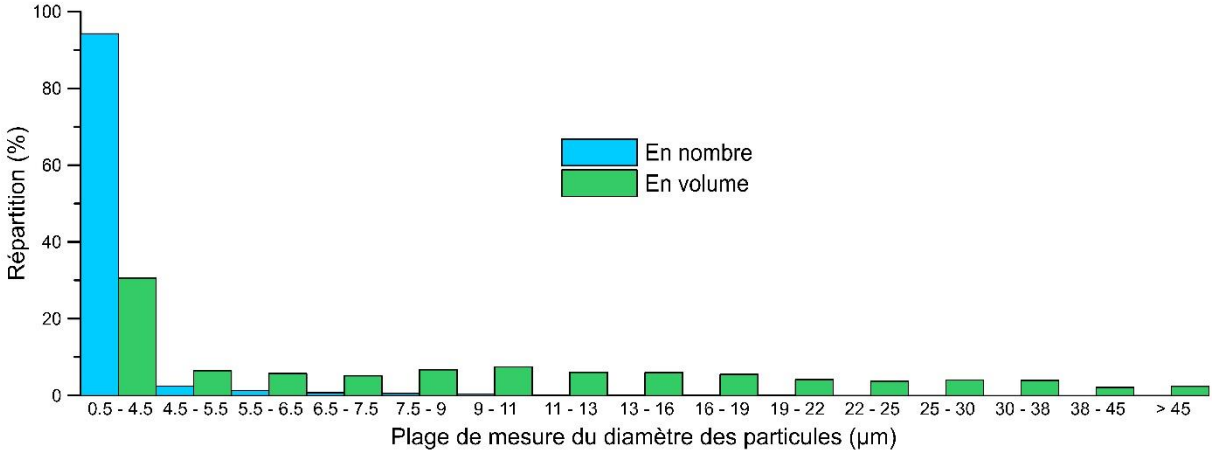


FIGURE III.2.5 – *Distribution moyenne de la taille des particules d'aluminium présentes dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur lors d'essais sans combustion*

Puisque les particules d'aluminium sont opaques et globalement sphériques, la granulométrie de la poudre dispersée dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur est obtenue grâce à la diffraction selon Fraunhofer (Xu, 2001). La figure III.2.5 présente la distribution moyenne de la taille des particules d'aluminium mesurée lors d'essais sans combustion. Cette répartition granulométrique est alors différente selon le critère du nombre ou du volume, traduisant principalement un aérosol en sortie de brûleur composé de petites particules pour un volume équivalent d'aluminium plutôt faible. La distribution en taille selon le volume des particules semble être également légèrement bimodale.

Diamètre caractéristique de la distribution en taille des particules	En nombre	En volume
d_{10} (µm)	0,9	1,8
d_{50} (µm)	2,6	7,6
d_{90} (µm)	4,3	29,4

TABLEAU III.2.1 – *Granulométrie moyenne des particules d'aluminium présentes dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur lors d'essais sans combustion*

Les différents diamètres caractéristiques de la distribution en taille des particules sont résumés dans le tableau III.2.1. Les valeurs d_{10}, d_{50} et d_{90} symbolisent respectivement le diamètre équivalent à partir duquel 10 %, 50 % et 90 % du nombre des particules, ou du volume de matière, sont représentés dans l'aérosol. Ces résultats montrent alors des écarts significatifs selon le critère observé, mais ceux-ci sont en cohérence avec les clichés MEB de la poudre d'aluminium initiale et semblent exclure une agglomération conséquente entre les particules durant la phase de travail sur l'écoulement principal dans le corps du brûleur.

III.3 Propriétés de l'écoulement

Les propriétés des gaz frais à la sortie du brûleur correspondent directement aux conditions initiales rencontrées par le front de flamme métallique. Au-delà de la granulométrie des particules d'aluminium, la stabilisation de la flamme Al / air découle du travail réalisé sur l'aérosol dans le corps du brûleur afin d'obtenir in fine un écoulement laminaire avec une répartition homogène en particules. La poudre métallique employée durant ces travaux étant identique à celle utilisée lors de la conception et de la mise au point du brûleur de type Bunsen, les données historiquement obtenues durant cette précédente thèse sont conservées (Lomba, 2016).

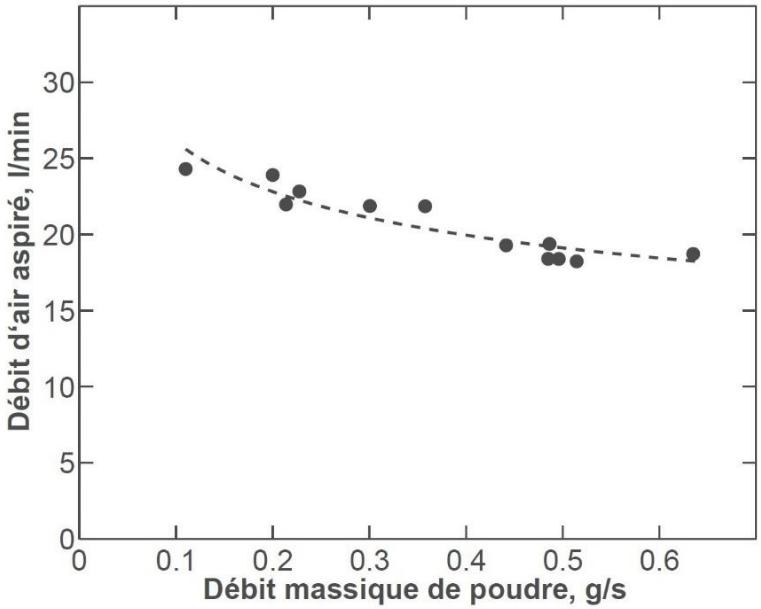


FIGURE III.3.1 – *Évolution du débit d'air aspiré par la buse Venturi en fonction du débit massique en poudre à la sortie du générateur pour* $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ *l/min (Lomba, 2016)*

La figure III.3.1 présente l'évolution du débit d'air aspiré par la buse Venturi, pour un débit volumique en air injecté de 30 l/min, en fonction du débit massique en poudre d'aluminium dispersée à la sortie du générateur. Similairement aux données présentées sur la figure III.1.5, la tendance liant ces ceux paramètres n'est pas linéaire en raison d'une probable modification de la répartition des pertes de charge associée à l'écoulement du flux aspiré. La richesse Al / air dans les gaz frais au niveau du front de flamme métallique devrait

idéalement être pilotée par la modification du débit massique de particules à la sortie du système de dispersion. Dans la pratique, la modulation de la vitesse du tapis contrôlant le débit de poudre d'aluminium influence directement le débit volumique d'air aspiré et, par conséquent, la vitesse de l'écoulement principal de manière non linéaire. Au-delà de la modification de plusieurs paramètres simultanément, c'est la prédiction et la maîtrise des conditions initiales rencontrées par le front de flamme métallique qui se complexifient.

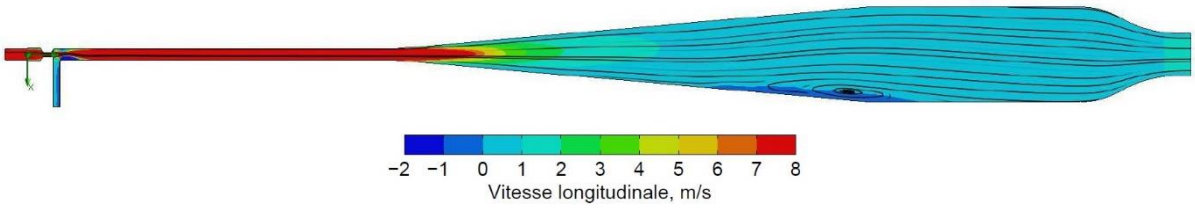


FIGURE III.3.2 – *Analyse numérique des lignes de courant et du champ de vitesse au sein de l'écoulement principal du brûleur pour* $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ *l/min (Lomba, 2016)*

Néanmoins, un inconvénient intrinsèquement lié à la conception du brûleur permet de pallier cette contrainte et d'obtenir, sans interaction avec les paramètres précédemment cités, une variation de la richesse Al / air à la sortie du dispositif expérimental durant l'essai. La figure III.3.2 présente le champ de vitesse et les lignes de courant obtenus par simulation numérique dans le corps du brûleur. L'écoulement principal est turbulent à la sortie de la buse Venturi et commence à se laminariser en raison d'une réduction de la vitesse de l'aérosol engendré par un changement de section de passage dans le corps du brûleur, variant alors de 1,1 à 36,3 cm² grâce à un diffuseur conique de 5°. Dans la zone de tranquillisation située immédiatement après ce diffuseur, la vitesse de l'écoulement prémélangé est de l'ordre de 0,2 m/s et les particules d'aluminium se déposent facilement sur la paroi interne du brûleur. Finalement, l'encrassement du dispositif devient un avantage et induit une variation de la concentration en particules d'aluminium à la sortie du brûleur suffisamment lissée dans le temps pour être exploitée durant un essai. La richesse Al / air de l'aérosol au niveau du front de flamme métallique varie alors naturellement entre 0,7 et 1,1. À défaut de maîtriser parfaitement les différentes fractions massiques dans les gaz frais, la richesse du mélange est mesurée en temps réel à la sortie du brûleur selon la méthodologie présentée dans la sous-section IV.1.1 afin de corréler les données recueillies expérimentalement avec la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais. Par souci de répétabilité des mesures réalisées, le générateur d'aérosol est purgé et le corps du brûleur est entièrement nettoyé entre chaque essai, permettant ainsi de commencer la dispersion des particules avec des conditions initiales identiques.

La caractérisation de l'écoulement principal à la sortie du dispositif expérimental a également été réalisée par des mesures de vélocimétrie par images de particules (PIV) lors de la validation du brûleur de type Bunsen avec des essais sans combustion (Lomba, 2016). Une nappe laser pulsée issue d'un Nd : YAG Continuum Minilite PIV était alors générée dans le plan de symétrie de la tête du brûleur grâce à un jeu de lentilles. L'intervalle temporel entre deux pulses était de 30 µs et la fréquence d'acquisition entre chaque doublet était de 1,81 Hz. Comme illustré sur la figure III.1.1, une caméra TSI PowerView Plus de 11 Mpixels était positionnée perpendiculairement à la nappe laser afin de visualiser le rayonnement généré par les particules d'aluminium présentes dans l'aérosol. La figure III.3.3 présente une image

caractéristique de tomographie laser obtenue avec une résolution de 52 pixels/mm, où le diamètre interne de la tête du brûleur mesurant 32 mm conditionne directement les limites de l'aérosol. La répartition de la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais semble alors être homogène à la sortie du dispositif et traduit l'absence de cellule tourbillonnaire ou de phénomène d'agglomération majeur dans l'écoulement principal.

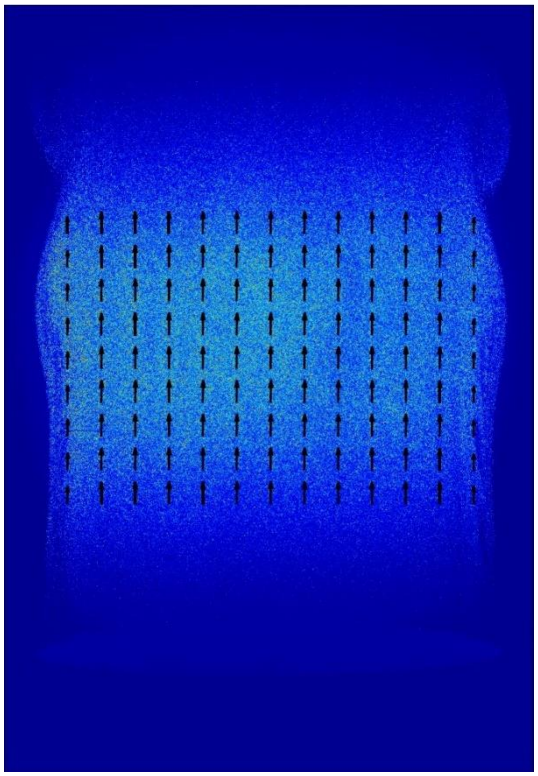


FIGURE III.3.3 – *Image de tomographie rapide à la sortie du brûleur lors d'un essai sans combustion, pour les conditions $V_{tapis} = 2{,}1$ mm/s et $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min (Lomba, 2016)*

La poudre d'aluminium peut également servir de traceur dans l'aérosol si son nombre de Stokes St est très petit devant 1, c'est-à-dire si le temps caractéristique de l'écoulement est nettement supérieur au temps caractéristique de relaxation d'une particule. Ce nombre adimensionnel est défini par la relation suivante (Ferchichi, 2013) :

$$St = \frac{\rho_p \,.\, d_p \,.\, U_f}{18 \,.\, \mu_f} \qquad \text{(III.3.1)}$$

où ρ_p et d_p sont respectivement la masse volumique et le diamètre moyen des particules d'aluminium en suspension dans l'aérosol, μ_f correspond à la viscosité dynamique de l'air et U_f représente la vitesse moyenne du fluide porteur à la sortie du dispositif. Dans nos conditions expérimentales, $St \approx 10^{-3}$ et les particules se trouvent dans un régime dit visqueux. Celles-ci suivent alors fidèlement les lignes de courant de l'écoulement principal avec une erreur relative inférieure à 1% sur la vitesse de la phase gazeuse. La figure III.3.3 présente également le champ de vitesse obtenu à la sortie du brûleur après traitement des données brutes via l'application PIVLab dans MATLAB (Thielicke, 2014).

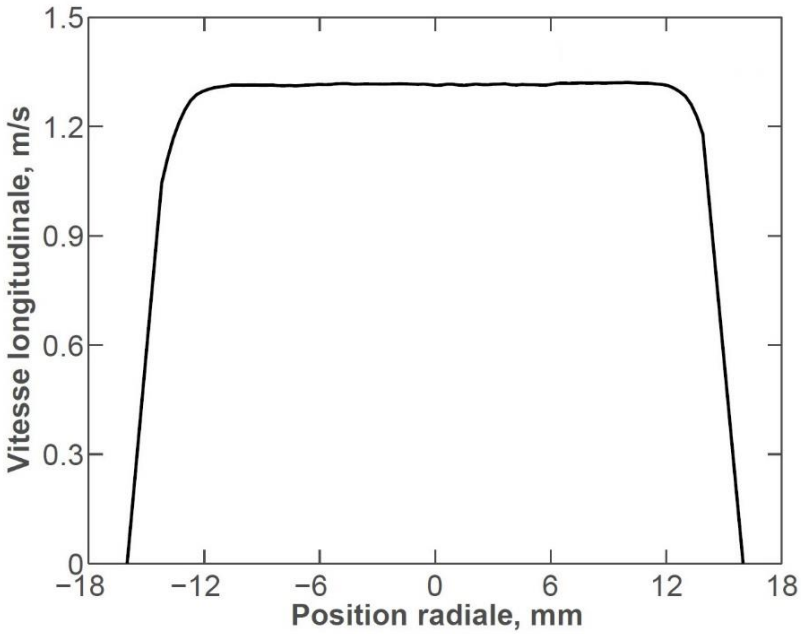


FIGURE III.3.4 – *Profil de vitesse obtenu par PIV à la sortie du brûleur lors d'un essai sans combustion, pour les conditions* $V_{tapis} = 2{,}1$ *mm/s et* $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ *l/min (Lomba, 2016)*

La figure III.3.4 présente un exemple de profil de vitesse obtenu historiquement dans les gaz frais grâce aux mesures PIV réalisées lors d'essais sans combustion. L'écoulement principal possède alors un profil de vitesse plat, homogène et laminaire à la sortie du dispositif, favorisant une stabilisation spatiale et temporelle de la flamme prémélangée Al / air. Pour la suite de l'ensemble des résultats expérimentaux présenté dans cette thèse, le débit volumique d'air injecté au niveau de la buse Venturi est fixé à 30 l/min et la vitesse du tapis roulant du système de dispersion est maintenue à 2,1 mm/s. Par conséquent, le débit volumique total d'air à la sortie du dispositif expérimental est d'environ 49,4 l/min durant la phase de combustion Al / air, avec un débit massique en particules d'aluminium dans les gaz frais variant selon l'encrassement de la paroi interne du corps du brûleur.

III.4 Appareils de mesure et diagnostics

L'étude proposée à travers cette thèse nécessite différents diagnostics afin d'analyser une flamme métallique auto-entretenue issue de la combustion d'un mélange d'air et de particules d'aluminium. Cette sous-section détaille les équipements utilisés lors de la mesure expérimentale de chaque paramètre. La figure III.4.1 schématise l'installation de ces différents appareils de mesure sur le banc d'essai.

<u>Mesure en temps réel de la richesse Al / air dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur :</u> Durant la phase de combustion Al / air, la technique de mesure consiste à évaluer l'atténuation laser provoquée par les particules d'aluminium présentes dans les gaz frais afin d'en déterminer la richesse. Une diode laser Thorlabs LDM670 de 5,5 mW génère un faisceau collimaté de 3,2 × 3,4 mm à une longueur d'onde de 670 nm. Celui-ci traverse alors radialement l'écoulement principal en passant par le centre du dispositif expérimental.

La flamme Al / air étant légèrement détachée du brûleur, la position du faisceau laser a également été ajustée pour passer sous la base de la flamme métallique. La lumière transmise par l'aérosol dans la direction proche avant est ensuite focalisée sur un récepteur grâce à la lentille plan-convexe L_1 en N-BK7 possédant une distance focale de 75,8 mm. Le capteur mesurant cette intensité lumineuse est une photodiode Si polarisée Thorlabs DET100A avec une surface utile de 75,4 mm². Sa gamme spectrale, allant de 350 à 1100 nm, est réduite par le filtre passe-bande F_1 centré à 671 nm et possédant une largeur à mi-hauteur de bande de 10 nm afin de cibler la longueur d'onde caractéristique de la diode laser. En complément de cet élément, une photodiode Si polarisée Thorlabs DET10A avec une surface utile de 0,8 mm² est positionnée à 90° par rapport au faisceau laser afin de servir de référence et de permettre la soustraction du rayonnement induit par de la flamme Al / air sur le premier capteur.

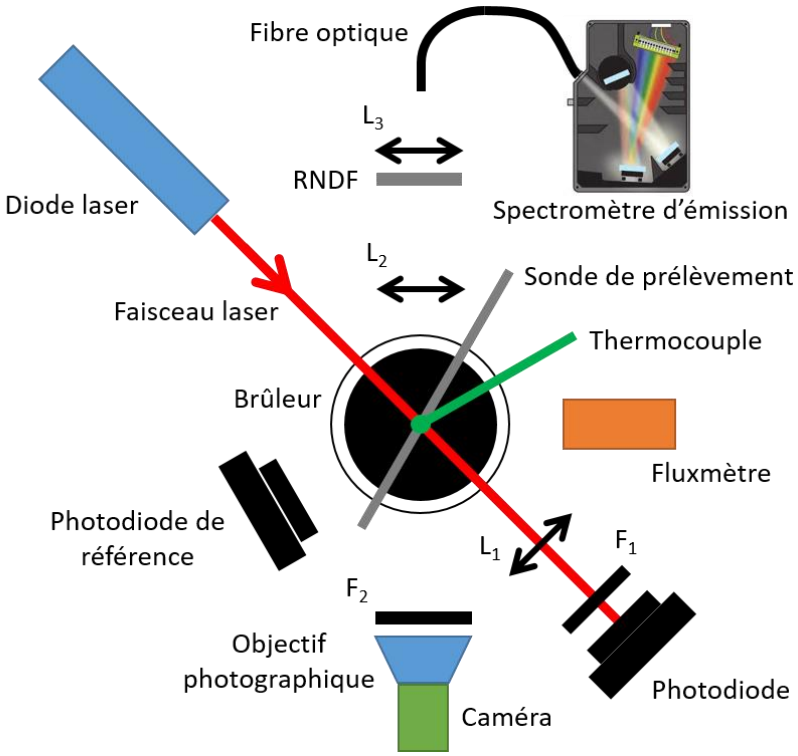


FIGURE III.4.1 – *Schématisation des appareils de mesure montés sur le banc d'essai (F_x : Filtre passe-bande, L_x : lentille plan-convexe, RNDF : Filtre neutre réfléchissant)*

<u>Caractérisation de la structure de la flamme métallique et de sa vitesse de propagation :</u>
Des images de tomographie laser rapide obtenues historiquement lors d'essais de combustion avec une poudre d'aluminium identique (Lomba, 2016) sont utilisées comme données brutes afin de caractériser plus précisément le front de flamme métallique et sa vitesse de propagation laminaire. En parallèle de ces données, la combustion Al / air est suivie par visualisation directe au moyen d'une caméra AVT MAKO G-419B, couplé à un objectif photographique Nikon, fournissant des images avec une résolution spatiale de 20,9 pixels/mm. Malgré l'usage d'un filtre passe-bande F_2 centré à 488 nm et possédant une largeur à mi-hauteur de bande de 6 nm afin de cibler le spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$, le temps d'exposition de la caméra est de 10 µs pour une fréquence d'acquisition à 10 Hz. Une nouvelle méthode permettant l'estimation de cette vitesse de propagation laminaire est proposée par l'analyse de la structure de la flamme métallique en visualisation directe.

Détermination de la température de la phase condensée dans la zone de réaction :
La température de la phase condensée dans la zone de réaction est évaluée grâce au spectre d'émission de la flamme prémélangée Al / air, notamment à travers l'étude du rayonnement thermique de ces particules. Son rayonnement est alors capté par un jeu de deux lentilles plan-convexes en N-BK7, L_2 et L_3, possédant respectivement une distance focale de 125 mm et 53 mm. La dernière lentille focalise alors la lumière sur une fibre optique avec un diamètre de 200 µm qui est relié directement à un spectromètre d'émission OceanOptics HR4000 fonctionnant sur une gamme de 250 à 710 nm. Afin d'éviter la saturation du spectromètre, un filtre réfléchissant neutre avec une densité optique de 2 est utilisé sur la gamme spectrale de 200 à 1200 nm et le temps d'exposition du spectromètre d'émission est descendu à 10 ms.

Analyse des produits de combustion solides et du mode de combustion particulaire :
Grâce à une sonde de prélèvement en acier inoxydable, des produits de combustion solides sont directement collectés dans le panache à 90 mm au-dessus de la sortie du brûleur. À une distance d'environ 50 mm du sommet de la flamme métallique, la température reste encore de l'ordre de 1600 K au niveau du point de collecte. La morphologie et la composition chimique de ces particules sont ensuite étudiées par MEB, ou microscope électronique à transmission (MET), couplé à une sonde EDS et permettent également d'estimer le rendement de combustion. Concernant le régime de combustion subi par les particules d'aluminium, celui-ci est déterminé grâce à l'analyse des différents résultats explicités précédemment.

FIGURE III.4.2 – *Photo du capteur de flux radiatif avant son montage sur le banc d'essai*

Évaluation du bilan énergétique généré par la flamme dans une configuration en champ libre :
L'analyse du flux rayonné par la flamme métallique vers l'extérieur est réalisée via un capteur de flux radiatif Captec Captherm possédant un angle de vue de 150° et un temps de réponse d'environ 200 ms. La figure III.4.2 présente une photo de ce fluxmètre à gradient tangentiel de type Gardon fonctionnant sur une gamme spectrale entre 0,3 et 20 µm. Constitué d'un disque en Constantan recevant le flux de chaleur et d'un cylindre de cuivre refroidi par eau à son extrémité, la différence de température entre le centre du disque et sa périphérie donne naissance à une force électromotrice proportionnelle au flux de chaleur reçu (Zribi, 2016). Ce capteur de 10 mm de diamètre relève ainsi uniquement le flux rayonné grâce à une mesure différentielle entre un demi-disque recouvert d'une peinture noire haute température recevant le flux de chaleur total et un demi-disque recouvert d'or recevant alors uniquement le flux convecté. Un thermocouple de type K est également utilisé pour mesurer la température globale au sein du panache et permet de reboucler le bilan énergétique global produit.

Chapitre IV

Résultats expérimentaux

IV.1 Propriétés des flammes Al / air

En parallèle des travaux fondamentaux portant sur la combustion d'une particule d'aluminium isolée, il est indispensable d'étudier à la fois macroscopiquement et microscopiquement la combustion d'aluminium sous forme d'aérosol pour développer une future application industrielle. En effet, de nombreuses propriétés de ce type de flamme métallique sont encore méconnues par rapport à celles des flammes d'hydrocarbures traditionnelles. Le dispositif expérimental utilisé pour ces travaux est un brûleur de type Bunsen générant des flammes prémélangées Al / air. La première problématique consiste à connaître le plus fidèlement possible les conditions rencontrées par le front de flamme, c'est-à-dire évaluer de manière continue la richesse du mélange constituant les gaz frais durant la combustion. Le deuxième volet s'inscrit dans une logique de caractérisation de la structure de la flamme Al / air à travers plusieurs techniques et débouchant ainsi sur la détermination de la vitesse de flamme laminaire, paramètre primordial pour réaliser le dimensionnement d'un système. La dernière partie consiste à étudier le spectre d'émission de la zone de réaction Al / air afin d'analyser plus précisément le rayonnement généré, renseignant alors sur les températures de la phase condensée dans cette région et le régime de combustion en jeu à l'échelle des particules d'aluminium.

IV.1.1 Richesse des gaz frais

La compréhension des phénomènes physiques et l'analyse des résultats expérimentaux nécessitent de connaître l'ensemble des conditions dans lesquelles la combustion s'effectue, et en particulier la richesse du mélange à la sortie du brûleur pour l'étude des flammes prémélangées. La richesse de l'écoulement $\Phi_{Al/air}$ représente ainsi la proportion combustible / comburant par rapport aux conditions stœchiométriques et est définie suivant la formule ci-dessous :

$$\Phi_{Al/air} = \frac{B}{B_{st}} \qquad \text{(IV.1.1)}$$

où B est la concentration massique en aluminium mesurée à la sortie du brûleur et B_{st} est la concentration massique en métal pour obtenir des conditions stœchiométriques, soit 310 g/m^3 pour une combustion Al / air dans des conditions standards de pression et température. Lors des précédents travaux réalisés avec ce dispositif, la richesse des gaz frais était déterminée en évaluant un rendement global de dispersion entre la masse en poudre d'aluminium aspirée du réservoir et celle éjectée à la sortie du brûleur (Lomba, 2016). Cette efficacité de dispersion avait été caractérisée lors d'essais sans combustion, en estimant l'encrassement total par un pesage du brûleur à la fin de l'essai et en considérant un débit massique en aluminium globalement constant à la sortie du brûleur pendant tout l'essai. Cette méthode permettait alors d'évaluer la richesse moyenne sur l'ensemble de l'essai. Le premier objectif de la thèse vise à améliorer la précision de mesure de ce paramètre et d'obtenir l'information de la richesse des gaz frais en temps réel durant les essais avec combustion.

Les images MEB fournies dans la section III.2 ont montré que la poudre d'aluminium utilisée est principalement composée de particules sphériques. La solution retenue pour déterminer la richesse de l'écoulement prémélangé consiste alors à estimer la concentration massique en aluminium via une mesure continue de l'atténuation laser au travers des gaz frais. L'interaction entre le rayonnement laser et une particule sphérique est régie par un paramètre de taille sans dimension x et dépend de la relation suivante (Lahmani, 2006) :

$$x = \frac{2 \,.\, \pi \,.\, N_m \,.\, R_p}{\lambda} \qquad \text{(IV.1.2)}$$

où N_m est l'indice de réfraction du milieu diélectrique extérieur, R_p est le rayon de la particule et λ est la longueur d'onde de la sollicitation lumineuse. Il existe alors 3 modes d'interaction différents en fonction de ce paramètre de taille. Le régime de Rayleigh décrit cette interaction lorsque $x \ll 1$, a contrario l'optique géométrique fonctionne pour $x \gg 1$, et enfin la théorie de Mie exprime le comportement optique de la particule quand $x \approx 1$. D'après la granulométrie de la poudre initiale présentée dans la section III.2, ce paramètre de taille est d'environ 35 pour nos conditions expérimentales et la théorie de Mie peut être directement appliquée aux particules d'aluminium dispersées dans l'écoulement d'air.

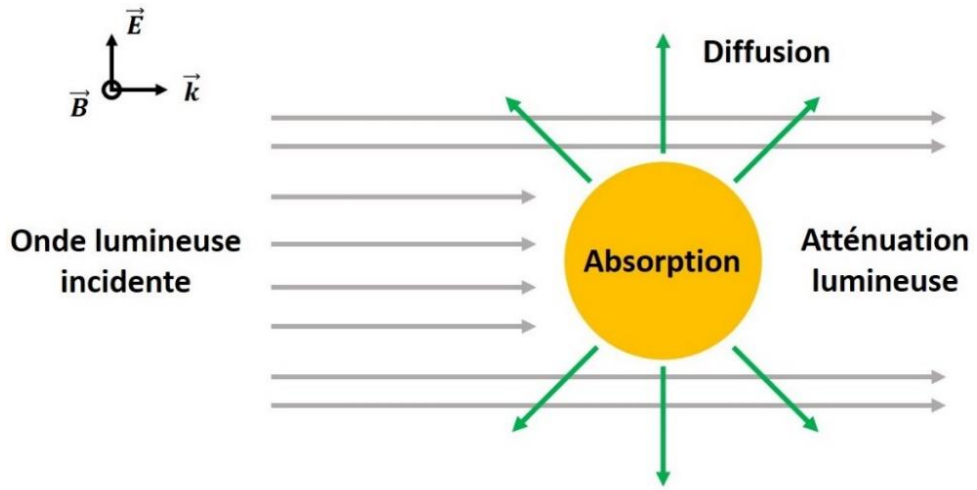


FIGURE IV.1.1 – *Schématisation macroscopique simplifiée de l'interaction lumière / particule traitée par la théorie de Mie*

La figure IV.1.1 représente ainsi schématiquement l'interaction résolue par la théorie de Mie entre une particule sphérique et une onde plane monochromatique, de vecteur d'onde $\vec{k} = k\,.\vec{n} = \frac{2\pi}{\lambda}\,.\vec{n}$ et se propageant dans un milieu diélectrique avec un indice de réfraction N_m. D'un point de vue macroscopique, la puissance d'extinction générée par la particule est alors la somme de la puissance absorbée et de celle perdue par diffusion élastique. La section efficace d'extinction de la particule $\sigma_{ext\,th}$, représentant le rapport entre l'énergie perdue par atténuation et la luminance incidente, obéit ainsi à la relation ci-dessous (Mie, 1908) :

$$\sigma_{ext\,th} = \pi\,.\,{R_p}^2\,.\,Q_{ext\,th} = \sigma_{abs} + \sigma_{diff} \qquad \text{(IV.1.3)}$$

où $Q_{ext\,th}$ correspond au coefficient d'extinction de la particule, et où σ_{abs} et σ_{diff} sont respectivement les sections efficaces d'absorption et de diffusion. La théorie de Mie prédit également que ces deux sections efficaces, σ_{abs} et σ_{diff}, tendent chacune vers $\pi\,.\,{R_p}^2$ avec le paramètre de taille x de la particule, indépendamment de l'indice de réfraction de celle-ci. Appelée paradoxe de l'extinction, l'équation (IV.1.3) implique alors que les grosses particules sphériques traitées par cette théorie retirent deux fois plus de puissance à l'onde incidente que ce qu'elles reçoivent à travers leurs sections droites. Ce phénomène peut également être expliqué en considérant la diffraction de Fraunhofer sur un disque opaque possédant le même diamètre que la particule sphérique (Borhen, 1983). Néanmoins, la puissance diffusée par la particule est émise principalement vers l'avant (Jarrige, 2012), c'est-à-dire dans le même sens que la lumière incidente. L'essentiel de cette puissance se situe alors dans la première tâche d'Airy (Airy, 1835), figure de diffraction obtenue selon le principe de Babinet, avec un angle de diffraction de $1{,}22\,.\,\pi\,/\,x$ par rapport à la direction de l'onde incidente, soit un angle d'environ 0,7° dans nos conditions expérimentales. La figure IV.1.2 illustre ainsi la répartition spatiale de la lumière diffusée par une particule sphérique selon sa taille.

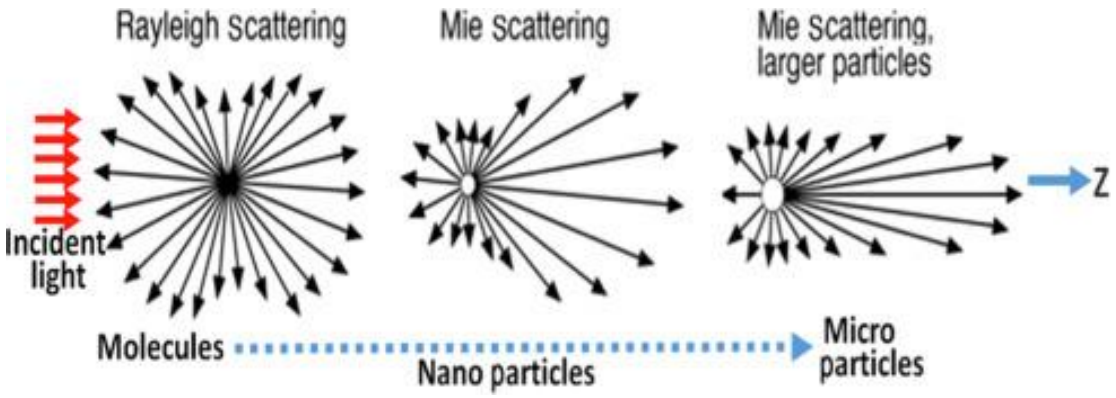


FIGURE IV.1.2 – *Schématisation de la distribution spatiale de la lumière diffusée par une particule sphérique selon sa taille (Nayfeh, 2018)*

La mesure de l'atténuation lumineuse provoquée par une particule s'effectue via le positionnement d'un capteur sur la trajectoire de l'onde incidente. Dans cette configuration, le récepteur reçoit simultanément la lumière incidente restante et une partie de la lumière diffusée élastiquement par la particule sphérique. Ainsi, pour nos conditions expérimentales, l'essentiel de la puissance lumineuse diffusée par la particule est reçu par le capteur et l'effet d'atténuation par diffusion devient alors négligeable dans l'extinction globale générée par la particule pour celui-ci. Du point de vue du capteur, l'équation (IV.1.3) peut alors s'écrire :

$$\sigma_{ext} = \pi \, . \, {R_p}^2 \, . \, Q_{ext} \approx \sigma_{abs} \tag{IV.1.4}$$

où σ_{ext} et Q_{ext} sont respectivement la section efficace d'extinction et le coefficient d'extinction de la particule perçus par le récepteur.

Après la description de l'interaction entre la lumière et une particule d'aluminium isolée, la même démarche peut être réalisée pour un faisceau de lumière traversant un milieu homogène constitué de particules métalliques en suspension dans l'air. Les propriétés optiques du milieu dépendent alors directement du nombre de particules par unité de volume C et de la section efficace d'absorption moyenne de la poudre $\overline{\sigma_{abs}}$. La figure IV.1.3 schématise ainsi cette interaction lorsque le phénomène d'extinction par diffusion élastique est faible à l'échelle d'une particule.

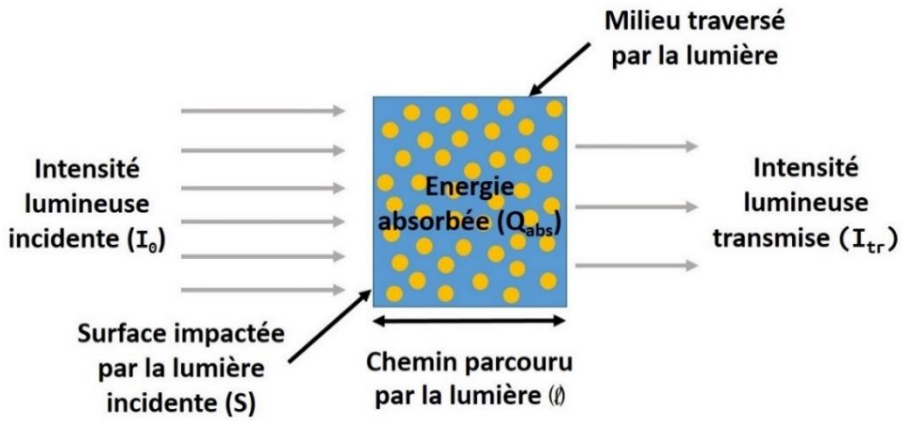


FIGURE IV.1.3 – *Schématisation macroscopique de l'interaction lumière / milieu traversé par la théorie de Beer-Lambert-Bouguer*

Dans ces conditions, la loi empirique de Beer-lambert-Bouguer confirme le lien direct entre l'atténuation du faisceau de lumière, les propriétés du milieu traversé et la distance parcourue dans celui-ci. Par conséquent, en supposant que la fraction de photons absorbés par le milieu traversé soit indépendante du nombre de photons incidents et que celle-ci soit proportionnelle à la longueur du trajet dans ce milieu homogène l, on peut écrire l'équation suivante (Beer, 1852) :

$$\frac{dn}{n} = -C \, . \, \overline{\sigma_{abs}} \, . \, dl \tag{IV.1.5}$$

où n est le nombre de photons par unité de volume dans l'intervalle spectral $d\nu$, avec ν correspondant à la fréquence du rayonnement incident. Néanmoins, la luminance L et l'intensité lumineuse I sont définies par les relations ci-dessous :

$$L = h \, . \, \nu \, . \, c \, . \, n \tag{IV.1.6}$$

$$I = L \, . \, S \, . \cos(\theta) \tag{IV.1.7}$$

où h est la constante de Planck, c est la vitesse de la lumière dans le vide, S est la surface impactée par la lumière incidente et θ correspond à l'angle entre la direction du rayonnement

incident et la normale à la surface impactée par celui-ci. En injectant les équations (IV.1.6) et (IV.1.7) dans la relation (IV.1.5), on obtient alors la formule suivante :

$$\frac{dI}{I} = -C \,.\, \overline{\sigma_{abs}} \,.\, dl \qquad \text{(IV.1.8)}$$

Par intégration de l'équation précédente sur l'ensemble du chemin parcouru par la lumière dans le milieu traversé, la loi de Beer-Lambert-Bouguer peut donc s'écrire :

$$I_{tr} = I_0 \,.\, e^{-C \,.\, \overline{\sigma_{abs}} \,.\, l} \quad \equiv \quad \ln\left(\frac{I_0}{I_{tr}}\right) = C \,.\, \overline{\sigma_{abs}} \,.\, l \qquad \text{(IV.1.9)}$$

où I_0 est l'intensité lumineuse incidente et I_{tr} est l'intensité lumineuse transmise par le milieu.

Le nombre de particules par unité de volume peut ensuite être directement exprimé en fonction de la concentration massique en poudre grâce à l'équation ci-dessous :

$$C = \frac{6 \,.\, B}{\pi \,.\, \overline{D_p}^{\,3} \,.\, \rho_p} \qquad \text{(IV.1.10)}$$

où ρ_p est la masse volumique globale de la particule en prenant en compte sa couche d'oxyde passive et $\overline{D_p}$ correspond au diamètre moyen en volume des particules d'aluminium, estimé à 7,58 µm grâce aux mesures granulométriques présentées dans la section III.2. En combinant les équations (IV.1.4), (IV.1.9) et (IV.1.10), la concentration massique en poudre d'aluminium dans les gaz frais peut alors être déterminée par atténuation laser en respectant la relation mathématique suivante :

$$B = \ln\left(\frac{I_0}{I_{tr}}\right) \cdot \frac{2 \,.\, \rho_p \,.\, D_p}{3 \,.\, \overline{Q_{ext}} \,.\, l} \qquad \text{(IV.1.11)}$$

où $\overline{Q_{ext}}$ correspond au coefficient d'extinction moyen des particules d'aluminium, en interaction avec la lumière incidente, perçu par le récepteur. $Q_{ext\,th}$, quant à lui, dépend à la fois de l'indice de réfraction complexe de la particule $m(\lambda) = n(\lambda) + i \,.\, k(\lambda)$, du paramètre de taille sans dimension x et des coefficients de diffusion complexes a_j et b_j. Dans nos conditions expérimentales, ce coefficient d'extinction peut alors être déterminé pour des sphères homogènes grâce à la théorie de Mie et selon l'équation suivante (Acharya, 2017) :

$$Q_{ext\,th} = \frac{2}{x^2} \cdot \sum_{j=0}^{\infty} (2j+1) \,.\, Re\{a_j + b_j\} \qquad \text{(IV.1.12)}$$

Les différentes valeurs des indices de réfraction complexes pour l'aluminium et l'alumine existent dans la littérature [(Rakic, 1998), (DeSalvo, 1996)]. L'équation (IV.1.12) et les coefficients de diffusion complexes a_j et b_j peuvent alors être résolus numériquement pour une particule d'aluminium micrométrique enrobée d'une couche d'alumine passive (Mätzler, 2002). Néanmoins, les résultats granulométriques présentés dans la section III.2 montrent que la poudre d'aluminium utilisée possède une distribution bimodale en taille. Ainsi, le coefficient d'extinction moyen perçu par le capteur $\overline{Q_{ext}}$ est difficilement calculable par la voie théorique et nécessite donc une calibration à travers des essais sans combustion.

Dans la littérature, plusieurs dispositifs expérimentaux utilisent déjà l'atténuation laser comme méthode pour déterminer la richesse du milieu prémélangé alimentant le front de flamme. Parmi les systèmes similaires, l'Université de McGill propose une configuration aboutie pour l'étude des flammes métalliques prémélangées et la figure IV.1.4 présente leur banc expérimental, ainsi que les différents diagnostics utilisés. Un laser à diode de 5 mW est employé pour générer un faisceau lumineux rectangulaire de 3 × 6 mm grâce à un jeu de lentilles. Celui-ci traverse alors l'écoulement principal prémélangé par une double ouverture faite dans la tête du brûleur et est ensuite focalisé afin que l'intensité lumineuse transmise par les gaz frais soit mesurée par une photodiode. Pour ne pas modifier la qualité de l'écoulement à la sortie du brûleur à travers une aspiration d'air extérieur, un film transparent en téflon recouvre ces deux ouvertures. Un filtre passe-bande centré à la longueur d'onde du laser et un filtre spatial sont rajoutés devant la photodiode afin de quantifier uniquement l'atténuation lumineuse provoquée par les particules, même durant la phase de combustion.

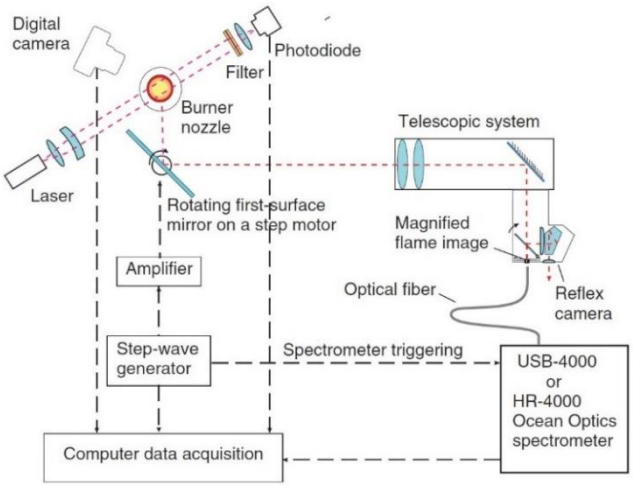


FIGURE IV.1.4 – *Exemple de dispositif expérimental utilisant l'atténuation laser (Julien, 2014)*

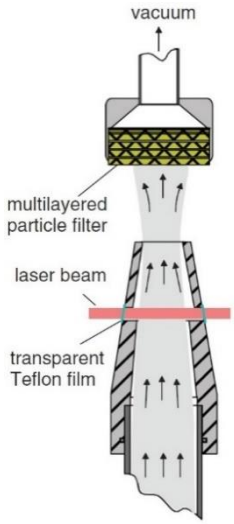


FIGURE IV.1.5 – *Méthode de calibration du coefficient d'extinction (Julien, 2014)*

La figure IV.1.5 illustre la méthode de calibration, utilisée par les chercheurs de l'Université de McGill, nécessaire pour estimer la concentration massique en particules métalliques dans les gaz frais. La procédure est réalisée pendant des essais sans combustion et consiste à collecter l'ensemble des particules éjectées du brûleur grâce à une aspiration équipée de plusieurs filtres. Connaissant le débit d'air dans l'écoulement principal, la concentration massique moyenne en particules est déterminée en mesurant la masse de poudre collectée par les filtres sur une durée de 5 secondes. Cette information est ensuite directement mise en parallèle avec l'atténuation laser moyenne mesurée sur cette même période. Néanmoins, la faible durée temporelle de calibration et l'hypothèse d'un débit massique constant en particules pendant ce laps de temps induisent une forte incertitude sur l'évaluation de la concentration massique en poudre, estimée par les auteurs à ± 50 g/m^3 (Julien, 2014). L'autre inconvénient majeur se situe au niveau du film de téflon. En effet, les temps caractéristiques pour l'étude des flammes métalliques sont nettement plus longs que la durée de calibration utilisée et une couche de particules pourrait alors se déposer à la surface du film pendant l'essai, altérant potentiellement l'estimation de la concentration massique en poudre dans l'écoulement principal.

Pour la gamme de richesse étudiée, la flamme métallique Al / air est décollée de la sortie du dispositif lorsque celle-ci est stabilisée, avec une distance minimale de 3 mm constatée entre la base de la flamme et la tête du brûleur. Afin de ne pas rencontrer les mêmes difficultés que l'équipe de l'Université de McGill pendant la phase de combustion, le faisceau laser est positionné de manière à passer par l'axe du brûleur en traversant directement l'écoulement principal prémélangé sous la flamme. La figure IV.1.6 illustre ainsi le positionnement de ce faisceau lumineux collimaté par rapport à la flamme et à la tête du brûleur lors de l'estimation de la concentration massique en poudre d'aluminium dans les gaz frais. La calibration de la méthode de mesure par atténuation laser s'effectue également grâce à des essais sans combustion. La figure IV.1.7 schématise la configuration optique installée sur le banc d'essai pendant cette phase de calibration. Les différentes caractéristiques de ces composants ont déjà été présentées dans la section III.4.

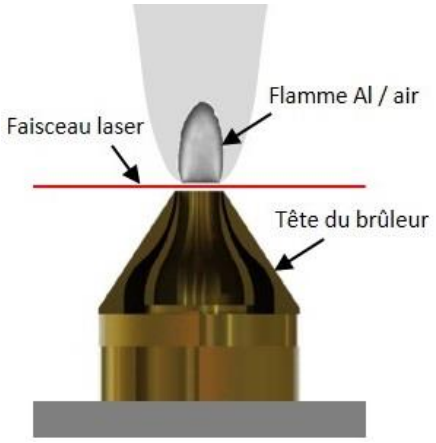


FIGURE IV.1.6 – *Position du faisceau laser permettant la détermination de la richesse*

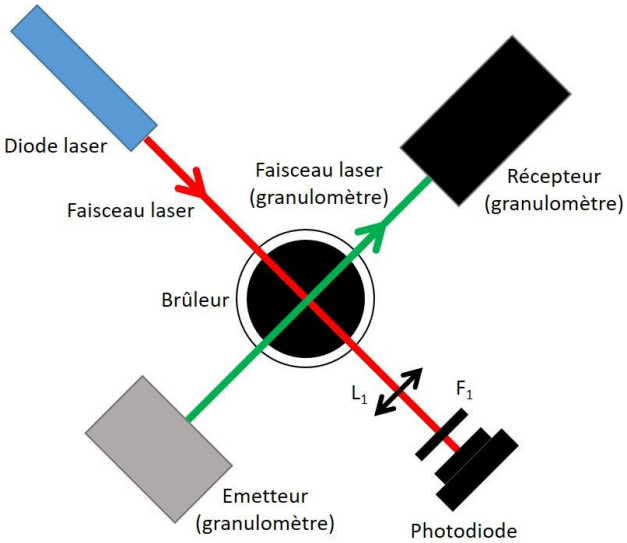


FIGURE IV.1.7 – *Configuration des moyens optiques durant la phase de calibration*

Une diode laser de 5,5 mW est installée sur le dispositif expérimental et l'estimation de la richesse est réalisée via la mesure de l'atténuation lumineuse produite sur son faisceau laser dans les gaz frais. Une lentille permet de focaliser le rayonnement transmis par l'écoulement prémélangé sur le capteur de la photodiode et un filtre passe-bande, centré sur la longueur d'onde du laser, réduit l'impact du rayonnement émis par la flamme Al / air sur les mesures de la photodiode lors de la phase de combustion. Pour une longueur d'onde donnée, la tension de sortie générée par la photodiode évolue linéairement avec l'intensité lumineuse impactant le capteur. Ainsi, la transmittance globale des gaz frais T peut alors s'écrire de la manière suivante :

$$T = \frac{I_{tr}}{I_0} = \frac{V}{V_0} \qquad \text{(IV.1.13)}$$

où V_0 est la tension mesurée par la photodiode lorsqu'il n'y a pas de particules dans l'écoulement principal et V correspond à la tension relevée pendant l'essai, traduisant alors l'atténuation laser provoquée par les particules d'aluminium présentes dans les gaz frais.

Lors de la phase de calibration, le système laser / photodiode est également doublé avec le granulomètre, constitué d'un émetteur et d'un module récepteur intégrant une lentille convergente sur le chemin optique de son faisceau laser. Ce dispositif de mesure permet ainsi d'obtenir le diamètre moyen des particules d'aluminium pendant l'essai sans combustion et de fournir une information supplémentaire sur la transmittance de l'écoulement prémélangé via une autre trajectoire optique. Le faisceau laser du granulomètre traverse également les gaz frais par l'axe du brûleur et la mesure de l'atténuation laser est donc directement comparable avec la valeur issue du système laser / photodiode.

Enfin, durant les essais sans combustion, la balance numérique est positionnée sous le brûleur afin de déterminer en temps réel la masse en poudre se déposant sur les parois internes de celui-ci. L'information de l'évolution en masse du réservoir contenant les particules d'aluminium est, quant à elle, connue grâce à une bonne répétabilité des débits massiques en poudre entre les différents essais, illustrée dans la section III.3.

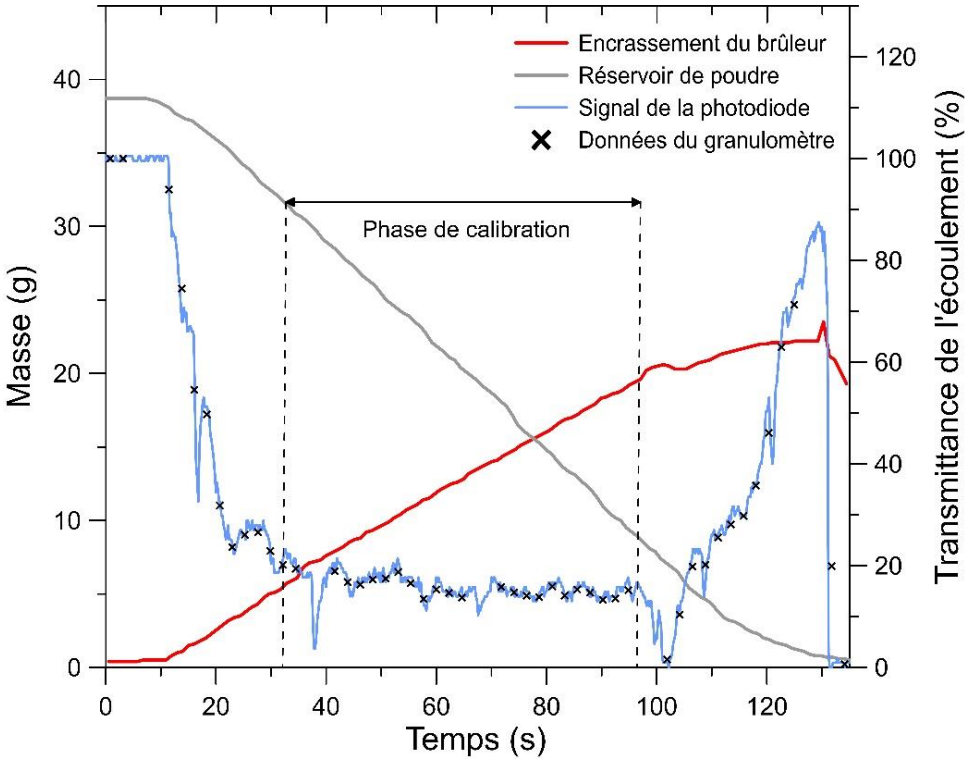


FIGURE IV.1.8 – *Comparaison de l'évolution en masse du réservoir avec l'encrassement du brûleur et l'atténuation laser provoquée par l'écoulement prémélangé*

La figure IV.1.8 présente un exemple de données brutes recueillies pendant un essai de calibration sans combustion, pour un débit volumique en air injecté de 30 l/min et une vitesse de tapis du système de dispersion à 2,1 mm/s. Ce graphique met en parallèle l'évolution en masse du réservoir de poudre, l'agglomération des particules d'aluminium aux parois internes du brûleur et l'atténuation laser observée à la sortie du brûleur. Tout d'abord, une concordance quasiment parfaite entre les valeurs de transmittance des gaz frais, mesurées respectivement via le récepteur du granulomètre et la photodiode laser, est constatée sur l'intégralité de l'essai. Cette observation démontre simultanément une homogénéité spatiale de la concentration en particules dans l'écoulement principal, dont

l'hypothèse avait déjà été abordée dans la section III.3, et le fait que le système laser / photodiode est suffisamment représentatif pour estimer objectivement la richesse globale de l'écoulement prémélangé dans nos conditions expérimentales.

Dans le fonctionnement du dispositif expérimental, les particules d'aluminium quittent le réservoir et traversent le corps du brûleur dès l'activation du système de dispersion. La zone de tranquillisation du brûleur permet alors de laminariser l'écoulement prémélangé, mais génère également une faible vitesse des gaz frais, où une partie des particules en suspension peut facilement se déposer sur les parois internes du brûleur. L'encrassement global du brûleur est alors progressif et continu pendant l'essai, avec parfois des lâchés de poudres provoquant des pics de concentration en particules dans l'écoulement prémélangé. Ces phases de déchargement du brûleur sont alors identifiables sur les signaux de la transmittance des gaz frais présentés sur la figure IV.1.8.

Afin de minimiser l'effet des incertitudes de mesures de la balance numérique, la calibration expérimentale du coefficient d'extinction des particules d'aluminium s'effectue alors sur une période stable et supérieure à 50 secondes. Sur ce laps de temps, la différence de masse entre la poudre délivrée par le réservoir et les particules déposées sur les parois du brûleur définit directement la masse totale en poudre d'aluminium dispersée à la sortie du brûleur $m_{p\,dis}$. En utilisant les équations (IV.1.11) et (IV.1.13), $m_{p\,dis}$ peut également être déterminée grâce au signal de la transmittance de l'écoulement prémélangé à travers la relation mathématique suivante :

$$dm_{p\,dis} = B\,.\,\mathrm{dt}\,.\,\dot{Q}_{gaz} \qquad \text{(IV.1.14)}$$

où dt est l'intervalle de temps issu de la discrétisation temporelle du signal de la transmittance des gaz frais et $\dot{Q}_{gaz}$ correspond au débit volumique total en air, obtenu à partir de l'estimation du débit d'air aspiré fournie dans la section III.3. L'acquisition de la tension aux bornes de la photodiode laser étant cadencée à 10 Hz, le temps d'intégration dt vaut alors 0,1 s avec nos conditions expérimentales. La masse en particules d'aluminium estimée par l'intégration de l'équation (IV.1.14) sur l'ensemble de la phase de calibration doit donc être identique à la masse totale en poudre dispersée à la sortie du brûleur et déterminée à partir des informations de la balance numérique. Ainsi, le seul paramètre variable restant dans l'équation (IV.1.14) est le coefficient d'extinction des particules perçu par le capteur d'intensité lumineuse. Cette valeur est donc optimisée sur l'ensemble de la phase de calibration afin de garantir le principe de conservation de la masse d'aluminium à la sortie du brûleur entre les deux différentes méthodes de mesure.

Au minium 3 essais de calibration ont été réalisés pour un paramétrage identique et le coefficient d'extinction expérimental a également été déterminé pour plusieurs points de fonctionnement du système de dispersion. La figure IV.1.9 présente les moyennes des différents coefficients d'extinction obtenus avec la méthode de calibration détaillée ci-dessus. Les barres d'erreur sur ce graphique correspondent alors simultanément à la dispersion statistique des valeurs déterminées et à l'incertitude de mesure liée à la précision de la balance numérique. Les valeurs expérimentales moyennes de ce coefficient d'extinction semblent alors globalement constantes sur l'ensemble de la plage de fonctionnement du système de dispersion et $\overline{Q_{ext}}$ est estimé à 3,3 pour nos conditions expérimentales.

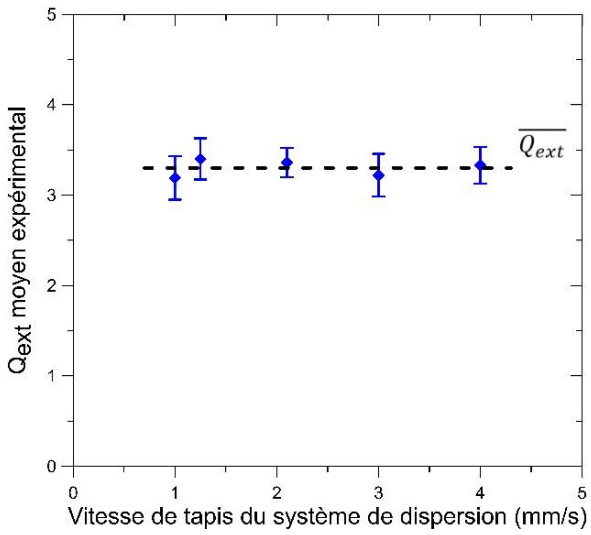


FIGURE IV.1.9 – *Moyennes des coefficients d'extinction déterminées pour plusieurs points de fonctionnement du système de dispersion*

Théoriquement, une fois l'ensemble des paramètres de l'équation (IV.1.11) connu, la richesse peut être directement estimée à partir de la mesure de l'atténuation lumineuse faite par la photodiode laser. En réalité, lors des essais avec une combustion métallique, le fort rayonnement généré par la flamme Al / air et son panache autour de 670 nm altère la tension de sortie produite par la photodiode laser. L'ajout d'un filtre spatial ne supprime pas cette influence en raison de la position du capteur par rapport à la flamme métallique. Une deuxième photodiode est utilisée pour caractériser cette dépendance, avec une implantation sur le banc d'essai précisée dans la section III.4. Cette photodiode de contrôle sert alors de référence en observant uniquement la flamme et son panache afin de soustraire les effets indésirables perçus par la photodiode laser pendant la combustion et, par conséquent, obtenir uniquement l'information de l'atténuation laser provoquée par l'écoulement prémélangé.

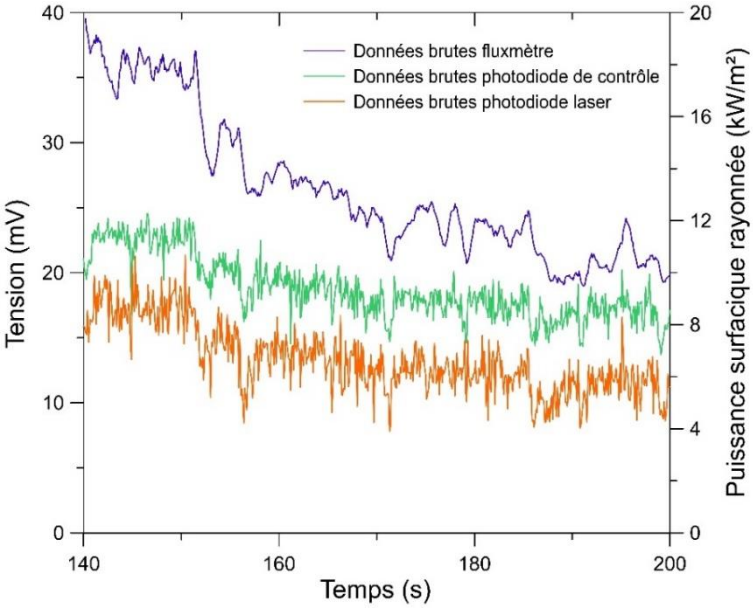


FIGURE IV.1.10 – *Exemple de signaux relevés pendant un essai de combustion avec une flamme Al / air stabilisée et sans le fonctionnement de la diode laser*

La figure IV.1.10 présente un exemple de données brutes recueillies pendant un essai avec combustion, c'est-à-dire avec une flamme Al / air stabilisée sur le brûleur, pour un débit volumique en air injecté de 30 l/min et une vitesse de tapis du système de dispersion de 2,1 mm/s. Ce graphique a été obtenu avec une configuration spécifique, où la diode laser n'était pas en fonctionnement et la seule source de rayonnement provenait directement de la flamme métallique et de son panache. Malgré un filtre optique centré à 670 nm avec une faible largeur de bande, l'effet de l'ensemble flamme métallique / panache sur la tension de sortie de la photodiode laser n'est pas négligeable par rapport à la tension mesurée lorsque le faisceau de la diode laser ne rencontre aucune particule d'aluminium sur sa trajectoire optique, soit 128 mV. Le fluxmètre et les deux photodiodes observent alors globalement le même phénomène, mais sur un domaine spectral différent et avec une sensibilité propre. Cependant, d'une manière générale, il est observé une tendance similaire pour toutes les données présentées sur la figure IV.1.10. Néanmoins, bien que l'ensemble de ces différents signaux soit enregistré via une même carte d'acquisition à une fréquence d'échantillonnage f_e de 10 Hz, la réponse temporelle des outils de mesure influe directement sur la qualité de l'information relevée. Ainsi, les données issues des deux photodiodes sont relativement bruitées et nécessitent un post-traitement avant d'être utilisées. Le lissage de courbe étant un artifice purement mathématique, la méthode retenue consiste alors à appliquer un filtrage à ces différents signaux.

Le théorème de Nyquist-Shannon décrit la fréquence d'échantillonnage nécessaire pour relever un signal sans distorsion, c'est-à-dire sans la perte irréversible d'informations, et se traduit par la relation suivante (Shannon, 1949) :

$$f_e = 2 \, . \, f_{max} \tag{IV.1.15}$$

où, dans notre cas, f_{max} correspond à la fréquence maximale d'un phénomène observable avec les signaux acquis, soit 5 Hz. Une transformation de Fourier discrète est nécessaire afin de convertir ces données discrètes du domaine temporel en valeurs dans le domaine fréquentiel, dont la précision spectrale de cette transformation δf est définie par :

$$\delta f = \frac{f_e}{N} \tag{IV.1.16}$$

où N est le nombre d'échantillons du spectre étudié, donnant ainsi une précision spectrale d'environ 0,01 Hz dans chaque essai réalisé.

La densité spectrale de puissance Γ_s , souvent utilisée lors de la quantification des bruits électroniques d'un signal, représente ainsi la répartition fréquentielle de la puissance d'un signal s suivant les fréquences qui le composent et peut s'exprimer à travers l'équation suivante (Stoica, 2005) :

$$\Gamma_s = T \, . \, |S|^2 \tag{IV.1.17}$$

où T est le temps d'intégration et $|S|$ correspond au module de la transformée de Fourier du signal s, obtenue ici directement grâce à l'algorithme de calcul de la transformation de Fourier rapide.

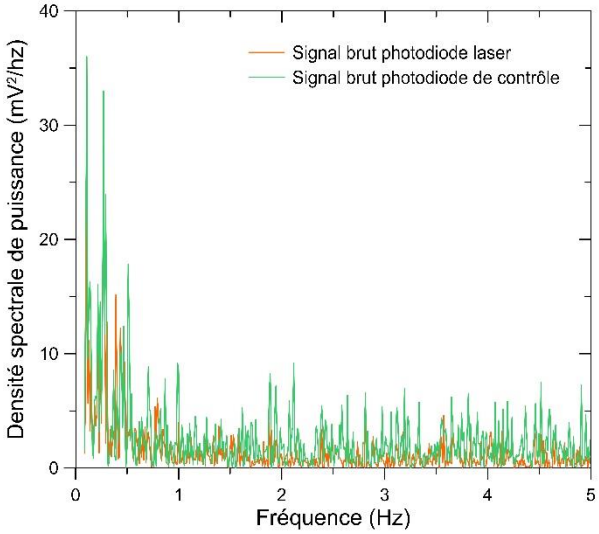


FIGURE IV.1.11 – *Densité spectrale de puissance des signaux bruts de la tension mesurée aux bornes des photodiodes*

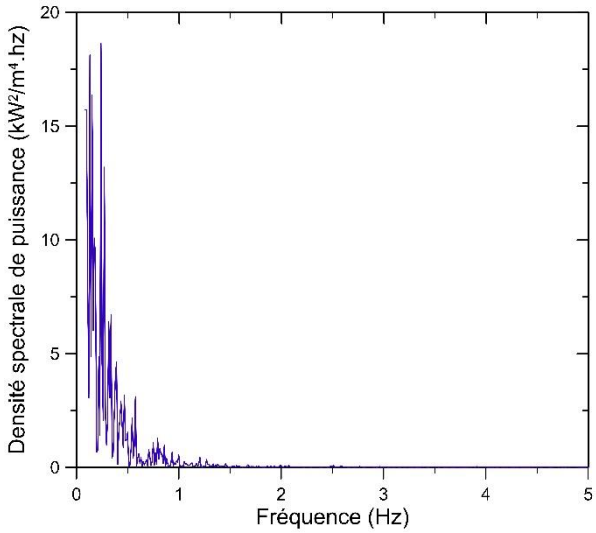


FIGURE IV.1.12 – *Densité spectrale de puissance du signal brut de la densité de flux radiatif obtenue avec le fluxmètre*

La figure IV.1.11 présente respectivement la densité spectrale de puissance du signal de la tension de la photodiode laser et celle de la photodiode de contrôle, provenant de l'acquisition affichée sur la figure IV.1.10. De la même manière, la figure IV.1.12 illustre la densité spectrale de puissance du signal de la puissance surfacique rayonnée issue du fluxmètre. Il est alors constaté que le signal de la densité de flux radiatif est composé uniquement de phénomènes possédant une fréquence inférieure à 3 Hz et semble cohérent avec le temps de réponse du capteur, estimé à environ 200 ms par le constructeur. Les deux photodiodes, quant à elles, bénéficient d'un temps de réponse nettement plus faible et les phénomènes observables sont alors limités par la fréquence d'échantillonnage paramétrée sur la carte d'acquisition. Néanmoins, similairement au signal de la densité de flux radiatif, les principales sources d'informations de ces signaux bruts se situent en dessous de 1 Hz. La solution de filtrer l'ensemble des signaux avec une fréquence de coupure à 1 Hz est donc retenue, permettant ainsi de corréler la totalité des données entre-elles avec le même niveau d'événements fréquentiels perçus par les signaux filtrés.

Le filtre numérique choisi pour post-traiter les signaux bruts est un filtre à réponse impulsionnelle infinie. Ce type de filtre est notamment caractérisé par une réponse basée simultanément sur les valeurs antérieures et postérieures du signal. Au sein de cette famille d'outils mathématiques, le filtre passe-bas de Butterworth a été adopté afin d'assurer un gain G nul sur la quasi-totalité de sa bande passante, et donc de ne pas modifier les valeurs propres du signal en dessous de sa fréquence de coupure, c'est-à-dire en dessous de 1 Hz. La figure IV.1.13 illustre les propriétés de ce filtre, pour un ordre n, selon le rapport entre la fréquence de l'évènement observé et la fréquence de coupure. Ces caractéristiques sont alors régies par l'expression mathématique suivante (Rhodes, 1975) :

$$G_n(\omega) = 20.\log_{10}\left(\frac{1}{\sqrt{1+\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^{2n}}}\right) \qquad \text{(IV.1.18)}$$

où ω_c est la fréquence angulaire de coupure et ω correspond à la pulsation d'un phénomène fréquentielle composant le signal brut, définie par la relation $\omega = 2 . \pi . f$. Les paramètres du filtre de Butterworth sont définis pour favoriser un gain nul et constant pour les fréquences inférieures à la fréquence de coupure. Sur la figure IV.1.13, il est observé que le gain atteint plus rapidement cet objectif avec l'augmentation de l'ordre du filtre. Néanmoins, lorsque l'événement possède une fréquence identique à la fréquence de coupure, l'atténuation est fixée à -3 dB quel que soit l'ordre du filtre. Au-delà de la fréquence de coupure, l'atténuation généré par le filtre évolue alors linéairement sur une échelle logarithmique, où l'ordre du filtre n est distingué par la pente de la réponse fréquentielle associée. Cette pente correspond à $-6n$ dB par octave (Kaddour, 2016), c'est-à-dire lorsque la fréquence est doublée.

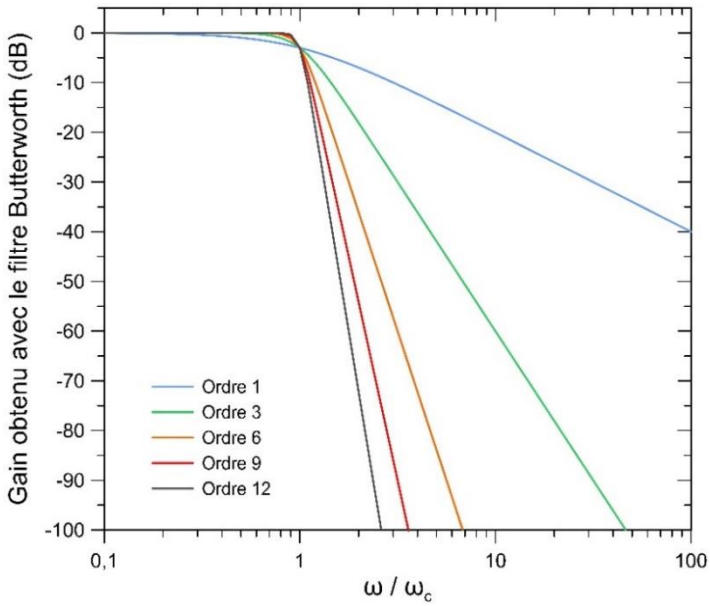


FIGURE IV.1.13 – *Évolution du gain obtenu avec un filtre à réponse impulsionnelle infinie Butterworth pour différents ordres*

La réponse des valeurs du phénomène fréquentiel au filtre peut également être exprimée par le gain linéaire Gl grâce à la formule ci-dessous (Gomez-Garcia, 2006) :

$$Gl = 10^{G/20} \tag{IV.1.19}$$

La valeur du gain linéaire évolue dans l'intervalle] 0 ; +∞ [et représente le coefficient de proportionnalité à appliquer aux valeurs du phénomène fréquentiel composant le signal brut. Ainsi, le signal brut d'origine reste inchangé lorsque le gain linéaire est unitaire. Une amplification de cette composante est constatée lorsque $Gl > 1$ et, inversement, la composante du signal brute est atténuée dès que $Gl < 1$. La figure IV.1.14 présente le gain linéaire, généré sur les valeurs de l'évènement fréquentiel composant le signal brut d'origine, pour un filtre de Butterworth avec une fréquence de coupure à 1Hz et différents ordres. Comme décrit précédemment, le gain G est constant à la fréquence de coupure quelque que soit l'ordre du filtre et l'atténuation de -3 dB correspond alors à un gain linéaire de 0,707. Sur la figure IV.1.14, il est observé que le filtre n'est pas assez efficace sur la gamme de fréquence ciblée à l'ordre 1, réduisant seulement au mieux 65 % du bruit sur le signal brut original. L'évolution du gain linéaire tend alors vers une fonction porte avec l'augmentation de l'ordre

du filtre de Butterworth, où la transition s'effectuerait instantanément au niveau de la fréquence de coupure. Le filtre numérique à l'ordre 12 fournit des caractéristiques suffisantes pour post-traiter des signaux obtenus dans nos conditions expérimentales et permet de limiter le temps de calcul associé. Cette configuration est ainsi choisie pour le filtrage des données brutes, avec une légère bande de transition observée entre 0,8 Hz et 1,5 Hz.

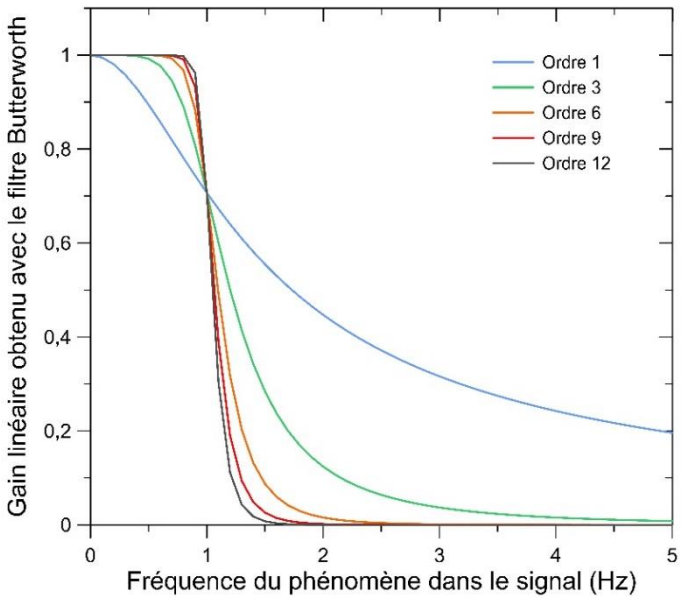


FIGURE IV.1.14 – *Évolution du gain linéaire appliqué au phénomène fréquentiel composant le signal brut pour un filtre de Butterworth avec une coupure au-delà de 1 Hz*

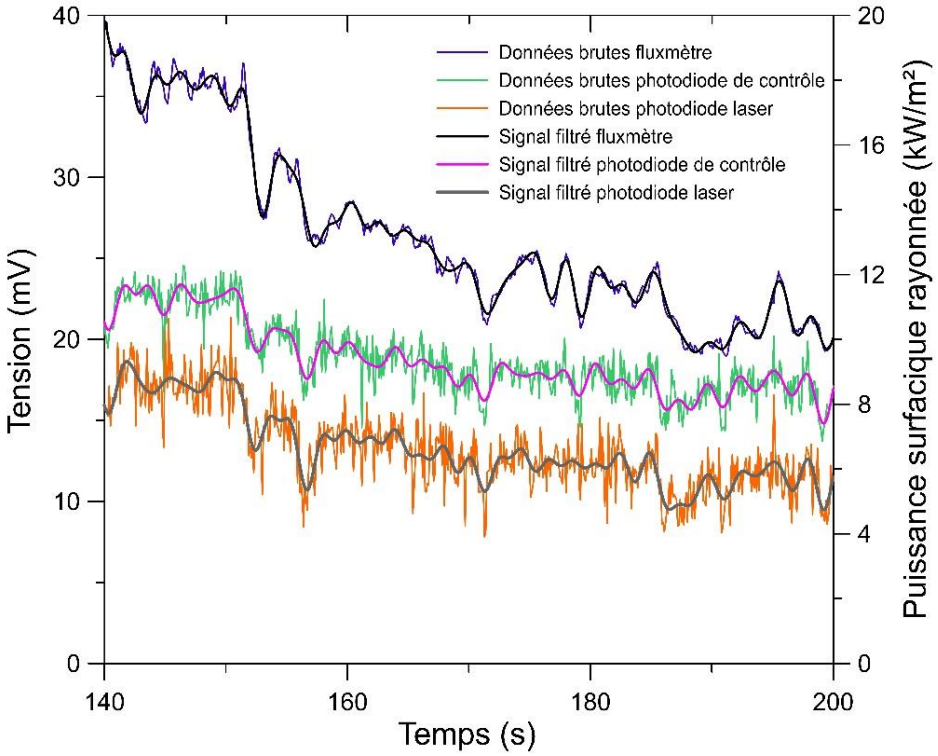


FIGURE IV.1.15 – *Effet du filtre de Butterworth d'ordre 12 avec une fréquence de coupure de 1 Hz sur les signaux bruts relevés pendant un essai avec combustion Al / air*

Cependant, la simple application du filtre de Butterworth génère un déphasage par rapport au signal brut d'origine en raison d'un temps de propagation de groupe $\tau = d\varphi/d\omega$, où φ est le déphasage. Afin de pallier cet inconvénient, la fonction « filtfilt » de Matlab a été employée (Mitra, 2001) et permet un filtrage numérique sans distorsion de phase en gardant les caractéristiques originelles du filtre. Le résultat de ce filtrage sur les différentes données brutes acquises est présenté sur la figure IV.1.15, correspondant ainsi à l'utilisation d'un filtre de Butterworth d'ordre 12 avec une fréquence de coupure à 1 Hz. Les signaux filtrés sont alors en cohérence avec les évolutions générales des données brutes et le bruit observé initialement sur les différentes mesures est considérablement réduit. Malgré des capteurs positionnés différemment autour de la flamme métallique, il est constaté un comportement similaire entre les deux tensions de sortie des photodiodes durant la phase de combustion. Cette observation renforce alors l'hypothèse d'une combustion Al / air globalement identique sur l'ensemble de la surface de flamme et, par conséquent, d'une concentration en particules d'aluminium homogène dans l'écoulement prémélangé.

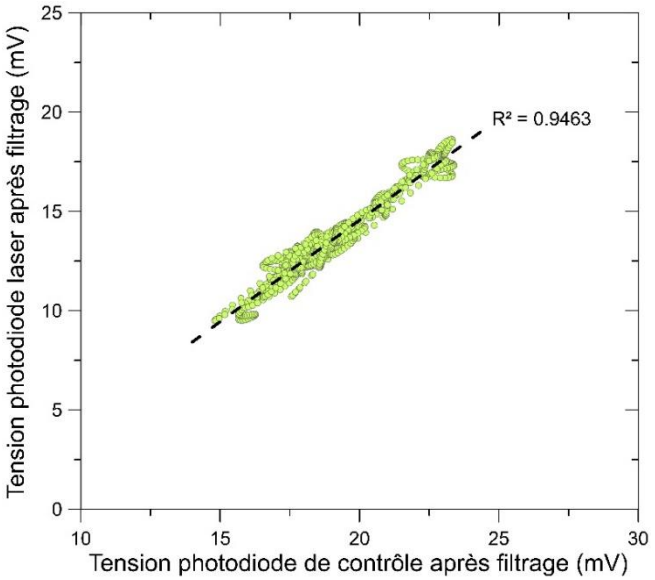


FIGURE IV.1.16 – *Corrélation entre le signal filtré de la photodiode de contrôle et celui de la photodiode laser, lors d'une combustion Al / air avec une configuration sans la diode laser*

Après filtrage des données brutes, la tension mesurée aux bornes de la photodiode laser est exprimée en fonction de celle générée par la photodiode de contrôle. Pour une configuration sans diode laser, la figure IV.1.16 illustre cette dépendance durant la phase de combustion Al / air stabilisée. Le graphique montre alors l'existence d'une relation linéaire entre ces deux photodiodes dans nos conditions opératoires. L'information obtenue avec la photodiode de contrôle permet alors d'estimer l'impact du rayonnement de l'ensemble flamme métallique / panache sur la tension de sortie de la photodiode laser, et ainsi supprimer cet effet sur les mesures d'atténuation laser faites pour estimer la richesse des gaz frais.

Toujours dans une configuration sans diode laser, la figure IV.1.17 présente la comparaison entre le signal réellement mesuré par la photodiode laser, après filtrage des données brutes acquises, et le signal estimé via la photodiode de contrôle pendant un essai avec une flamme Al / air stabilisée. La simulation de la tension aux bornes de la photodiode laser semble alors globalement en accord avec les valeurs réellement mesurées. L'estimation

de ce signal est également accompagnée d'une bande de confiance à 95% déterminée à partir de la dispersion statistique des points expérimentaux visible dans la figure IV.1.16.

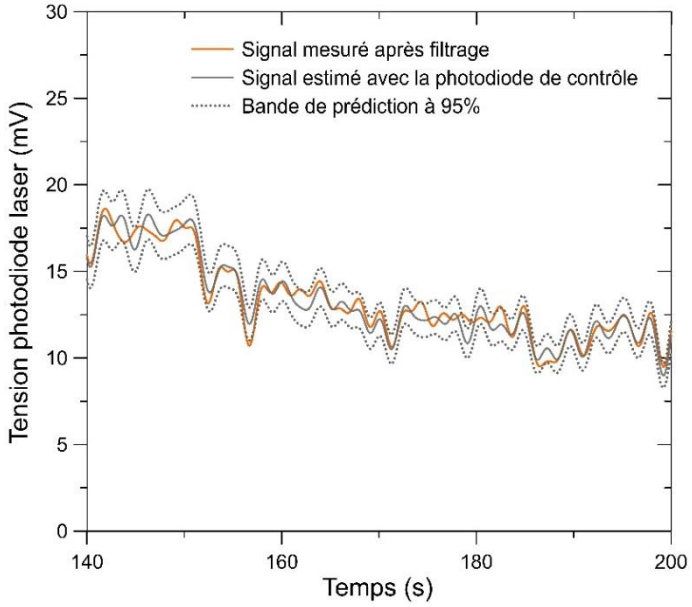


FIGURE IV.1.17 – *Comparaison de la tension de la photodiode laser après filtrage, produite par l'ensemble flamme / panache, et de son estimation à partir de la photodiode de contrôle*

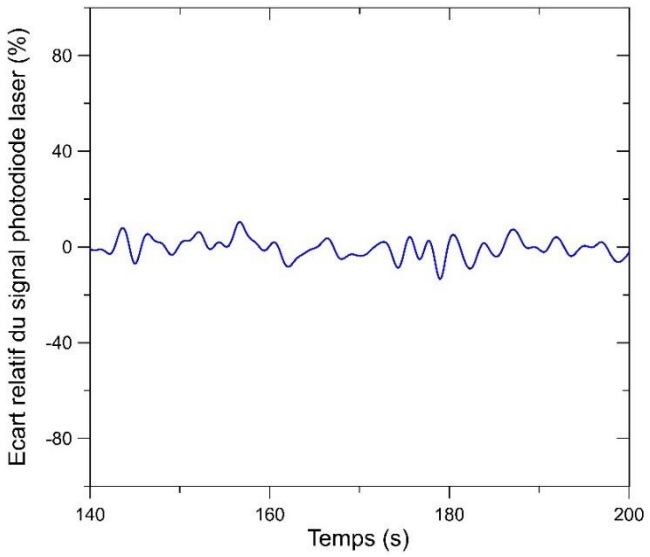


FIGURE IV.1.18 – *Écart relatif constaté entre le signal réellement généré par la photodiode laser après filtrage et son estimation pendant une combustion Al / air stabilisée*

La figure IV.1.18 présente l'écart relatif entre les valeurs expérimentales produites par la photodiode laser et l'estimation de son signal à travers les données fournies dans la figure précédente. La moyenne de cet écart relatif est alors nulle puisque la corrélation linéaire liant les deux tensions des photodiodes est optimisée. Néanmoins, des variations de ce paramètre sont constatées localement avec des valeurs pouvant atteindre 12%. Ces divergences restent cependant acceptables par rapport à la tension mesurée lorsque le faisceau de la diode laser ne rencontre aucune particule d'aluminium sur sa trajectoire optique.

En utilisant les équations (IV.1.1), (IV.1.11) et (IV.1.13), la richesse des gaz frais peut alors être estimée à travers les mesures de l'atténuation lumineuse du faisceau laser, induite par les particules d'aluminium, et suit la relation suivante :

$$\Phi_{Al/air} = \ln\left(\frac{V_0}{V_l - (A\,.\,V_c + B)}\right) \cdot \frac{2\,.\,\rho_p\,.\,D_p}{930\,.\,\overline{Q_{ext}}\,.\,l} \qquad \text{(IV.1.20)}$$

où V_0 est la tension aux bornes de la photodiode laser lorsqu'il n'y a pas de particules d'aluminium dans l'écoulement principal, V_l correspond à cette même tension, mais obtenue après filtrage durant la phase de combustion, A et B sont les coefficients de la fonction linéaire reliant les deux signaux filtrés des photodiodes et V_c est la tension de la photodiode de contrôle également filtrée. En somme, $A\,.\,V_c + B$ correspond à l'estimation de l'effet du rayonnement de l'ensemble flamme / panache sur la tension de la photodiode laser.

La figure IV.1.19 dévoile les données filtrées issues d'un essai avec une flamme Al / air stabilisée à la sortie du brûleur, où le faisceau de la diode laser traverse les gaz frais selon la configuration présentée sur les figures IV.1.6 et IV.1.7. Le signal de la photodiode laser est corrigé, grâce aux valeurs de la photodiode de contrôle, afin de supprimer la contribution liée au rayonnement de la flamme Al / air et de son panache. Cette tension résultante transcrit alors directement l'atténuation lumineuse subie par le faisceau laser pendant la traversée de l'écoulement prémélangé. L'évolution temporelle de la richesse des gaz frais estimée est ensuite obtenue via l'application de l'équation (IV.1.20).

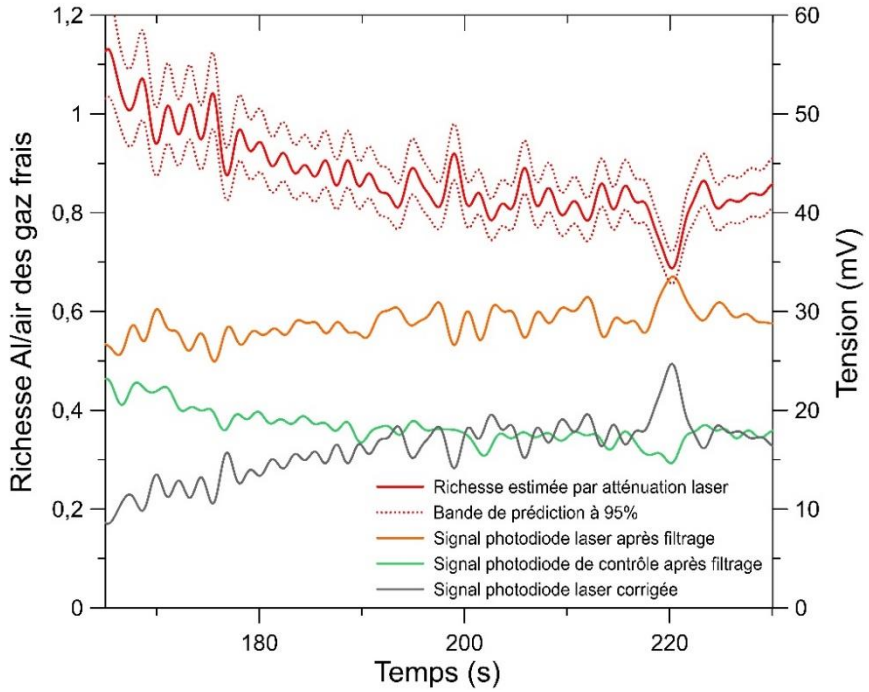


FIGURE IV.1.19 – *Détermination de la richesse des gaz frais durant la combustion Al / air grâce à l'atténuation laser mesurée par la photodiode laser après correction de son signal*

Les différents signaux sont tous en concordance avec l'observation d'une atténuation laser plus faible lorsque la concentration en particules d'aluminium diminue dans l'écoulement prémélangé. Une bande de confiance à 95% de l'estimation de la richesse des

gaz frais est également déterminée à partir des incertitudes basées sur la simulation de la contribution de l'ensemble flamme métallique / panache sur la tension aux bornes de la photodiode laser, illustrée sur la figure IV.1.17, et sur le coefficient d'extinction moyen des particules d'aluminium présenté sur la figure IV.1.9. Durant une combustion Al / air stabilisée avec des conditions stœchiométriques dans l'écoulement principal, la précision dans l'estimation de la concentration en particules d'aluminium est alors évaluée à ± 25 g/m^3.

L'amélioration du dispositif expérimental permet donc le suivi temporel de la richesse des gaz frais afin d'y corréler des informations complémentaires importantes telles que la vitesse de flamme laminaire, la température de la phase condensée dans la zone de réaction, ou encore la puissance rayonnée par la flamme Al / air et son panache. La méthode mise en place réduit également l'incertitude dans l'estimation de la richesse, avec au minimum une amélioration d'un facteur 2 par rapport à la technique utilisée par l'Université de McGill.

IV.1.2 Structure de flamme et vitesse de propagation laminaire

La combustion d'aluminium sous la forme d'un nuage de particules est un processus multiphysique et complexe. L'analyse macroscopique de la structure de la flamme Al / air permet d'estimer sa vitesse de propagation laminaire et pourrait améliorer la compréhension du phénomène d'oxydation à l'échelle d'une particule lors d'une combustion de groupe.

Grâce à la synchronisation d'un laser à haute fréquence Thales ETNA-HP et d'une caméra rapide Phantom V341 équipée d'un filtre passe-bande centré à 532 nm avec une largeur à mi-hauteur de 2 nm, des images de tomographie laser de la flamme métallique ont été obtenues à la sortie du brûleur lors de précédents travaux sur le dispositif expérimental (Lomba, 2014). Cette technique consiste en la création une nappe laser traversant la flamme Al / air au niveau d'un plan de symétrie et la caméra mesure ensuite l'intensité lumineuse émise radialement par la diffusion élastique de la phase condensée. La puissance du laser a ainsi été réglée afin que le rayonnement produit par la combustion et l'émission thermique de la phase condensée reste négligeable devant la diffusion élastique produite à 532 nm.

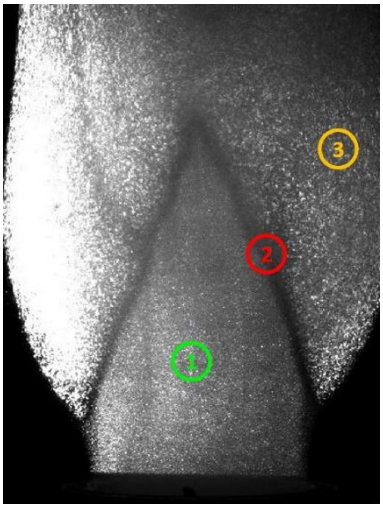


FIGURE IV.1.20 – *Visualisation par tomographie laser rapide de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur pour une richesse en aluminium estimée à 1,22 (Lomba, 2014)*

La figure IV.1.20 présente une image de la flamme Al / air obtenue par tomographie laser rapide pour une richesse en aluminium estimée à 1,22. On distingue globalement 3 zones sur celle-ci. La première région lumineuse correspond à l'écoulement prémélangé des gaz frais à la sortie du brûleur, où le rayonnement constaté provient des particules initiales d'aluminium en suspension dans l'air. À l'inverse, la zone n°3 représente le panache des gaz brûlés, avec une émission radiative générée principalement par la diffusion élastique de l'alumine condensée. La différence notoire observée entre les gaz frais et les gaz brûlés semble indiquer une augmentation du nombre de particules par unité de volume dans le panache, probablement provoquée par un changement de taille dans la phase condensée, et suggère ainsi les prémisses de l'hypothèse d'une combustion particulaire contrôlée par la diffusion. Une zone sombre conique apparaît entre ces deux régions bien distinctes. Celle-ci a été caractérisée précédemment comme étant la zone de réaction entre l'aluminium et l'oxygène provenant de l'écoulement principal (Lomba, 2016). La vaporisation de l'aluminium durant cette phase d'oxydation et la réduction de la densité spatiale en particules condensées due à la hausse de température étaient alors les hypothèses avancées pour cette observation. Néanmoins, les progrès dans la compréhension phénoménologique des flammes Al / air générée sur ce dispositif expérimental permettent de proposer une nouvelle hypothèse. En effet, la diminution de cette densité spatiale devrait être également constatée au niveau du panache des gaz brûlés, en particulier dans la localité proche flamme, comparablement aux observations relevées pour des flammes gazeuses traditionnelles d'hydrocarbure ensemencées (Mungal, 1995). De plus, la sous-section II.1.2 indique que l'aluminium subissant une oxydation contrôlée par la diffusion reste sous la forme d'une goutte durant sa phase de combustion, où la quantité d'aluminium ainsi vaporisé réagit très rapidement pour former des particules nanométriques d'alumine. Les particules condensées au sein de la zone sombre possèdent alors une distribution en taille comprise entre celle des particules initiales d'aluminium et celle des produits de combustion solides présents dans les gaz brûlés. La forte diminution de l'intensité lumineuse perçue dans cette région ne semble donc pas provenir de l'hypothèse sur l'état gazeux de l'aluminium durant sa phase de combustion.

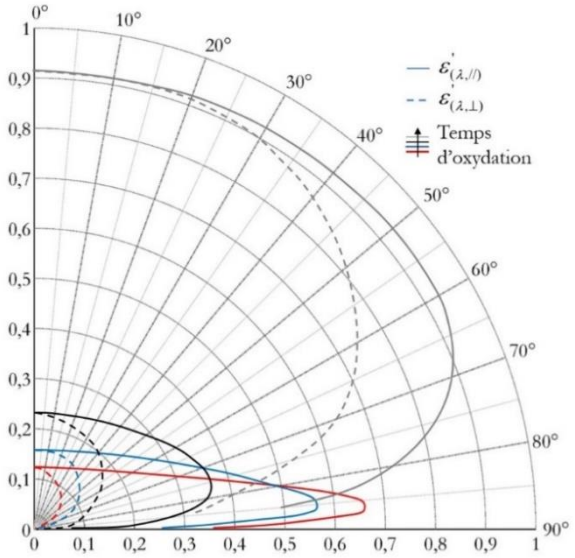


FIGURE IV.1.21 – *Évolution de l'émissivité directionnelle spectrale d'un acier en fonction de son niveau d'oxydation (Ané, 1986)*

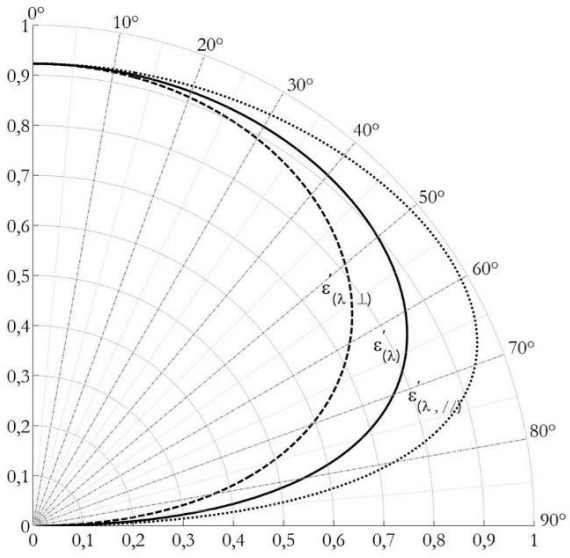


FIGURE IV.1.22 – *Exemple d'émissivité directionnelle spectrale d'un diélectrique (Rambure, 2010)*

Par analogie avec la taille des particules, l'évolution de la composition chimique des éléments condensés dans la zone sombre ne semble pas être à l'origine de la diminution de l'intensité lumineuse perçue par la caméra. Celle-ci varie alors entre la composition chimique de la poudre initiale d'aluminium et celle des produits de combustion solides présents dans le panache des gaz brûlés. Le changement d'état de la matière, passant de solide à liquide, n'interfère quasiment pas les propriétés optiques des métaux et de leurs oxydes, à l'instar de l'indice de réfraction. Cependant, il s'avère que le niveau d'oxydation en surface des particules métalliques joue un rôle majeur dans leurs propriétés d'interaction avec les photons. La figure IV.1.21 illustre les propos ci-dessus et présente l'évolution de l'émissivité monochromatique directionnelle d'un acier en fonction de son niveau d'oxydation en surface pour deux polarisations distinctes, $\varepsilon'(\lambda,\perp)$ et $\varepsilon'(\lambda,/\!/)$. Dans le cas où le rayonnement en interaction avec la matière n'est pas polarisé, l'émissivité monochromatique directionnelle $\varepsilon'(\lambda)$ est définie par l'équation suivante (Moncheau, 2013) :

$$\varepsilon'(\lambda) = \varepsilon(\lambda,T,\theta,\varphi) = \frac{\varepsilon\prime(\lambda,\perp) + \varepsilon\prime(\lambda,/\!/)}{2} = \frac{L_M(\lambda,T,\theta,\varphi)}{L_0(\lambda,T,\theta,\varphi)} \qquad \text{(IV.1.21)}$$

où $L_M(\lambda,T,\theta,\varphi)$ est la luminance du matériau à une température, direction et longueur d'onde donnée et $L_0(\lambda,T,\theta,\varphi)$ est la luminance d'un corps noir dans des conditions identiques. Les propriétés optiques de la particule métallique tendent alors vers celles de son oxyde avec l'augmentation de la couche d'oxydation à sa surface. Ainsi, le comportement optique de la particule d'acier possédant une couche d'oxydation suffisante semble s'orienter vers celui d'un composé diélectrique, dont un exemple d'émissivité directionnelle spectrale est présenté sur la figure IV.1.22.

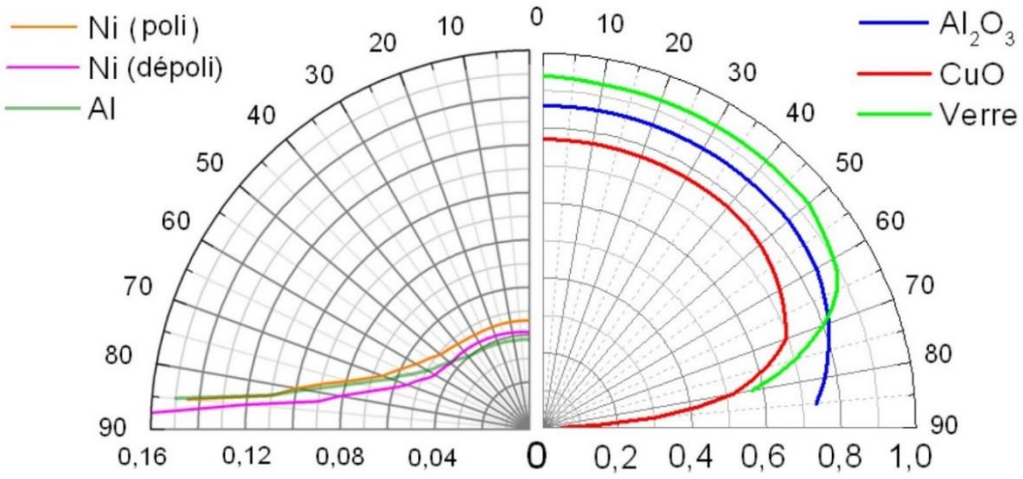


FIGURE IV.1.23 – *Émissivité directionnelle totale de plusieurs matériaux (Modest, 2013)*

La figure IV.1.23 présente l'émissivité directionnelle totale ε' de l'aluminium et de son oxyde, caractérisant alors le rapport entre la luminance dans une direction particulière du matériau à une température fixée et celle d'un corps noir sur l'ensemble du domaine spectral. Ce paramètre est donc défini par la relation ci-dessous (Wang, 2015) :

$$\varepsilon' = \varepsilon(T,\theta,\varphi) = \frac{\int_0^\infty L_M(\lambda,T,\theta,\varphi).d\lambda}{\int_0^\infty L_0(\lambda,T,\theta,\varphi).d\lambda} \qquad \text{(IV.1.22)}$$

Les données fournies dans la figure IV.1.23 sur l'émissivité directionnelle totale présagent une forte similitude entre le comportement optique du couple aluminium / alumine et celui de l'acier et de son oxyde illustré précédemment. Comparablement, l'épaisseur de la couche d'oxydation passive sur les particules d'aluminium peut jouer un rôle prépondérant dans l'interaction entre la particule et les photons, pouvant ainsi changer considérablement sa capacité à diffuser un rayonnement de manière élastique. Or, durant la phase d'allumage d'une combustion particulaire en mode de diffusion, l'alumine passive présente initialement à la surface de la particule d'aluminium se rétracte sous les effets de tension superficielle pour former un lobe localisé (voir la sous-section II.1.1). La surface utile d'interaction entre l'alumine et la nappe laser est alors fortement réduite, laissant ainsi directement la goutte d'aluminium exposée aux photons provenant du laser. Les propriétés optiques globales des particules condensées changent alors entre les gaz frais et la zone de réaction, passant d'un comportement diélectrique à celui d'un métal post-transitionnel. Les caractéristiques optiques de l'aluminium sembleraient donc piloter la diffusion élastique dans cette localité, d'où possiblement cette forte baisse de l'intensité lumineuse observée par rapport au rayonnement émis par les gaz frais ou le panache des gaz brûlés.

L'aspect macroscopique de la structure de la flamme Al / air peut également être étudié par visualisation directe. Cette technique de mesure utilise une caméra basse fréquence AVT MAKO G-419B POE cadencée à 10 Hz avec un objectif Nikon, dont l'intégration sur le dispositif expérimental est détaillée dans la section III.4. Ce type de montage optique permet d'obtenir des informations complémentaires sur la structure de la flamme métallique par rapport à la tomographie laser rapide, mesurant ainsi directement l'intensité lumineuse émise par la flamme Al / air et son panache avec une résolution spatiale de 20,9 pixels/mm.

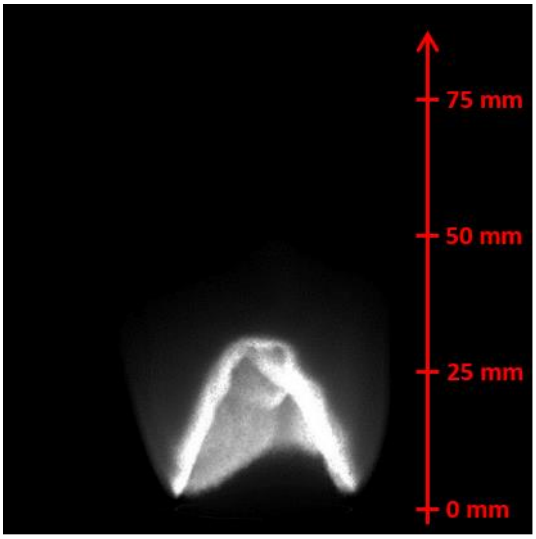


FIGURE IV.1.24 – *Visualisation directe de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur avec le filtre $AlO_{(g)}$*

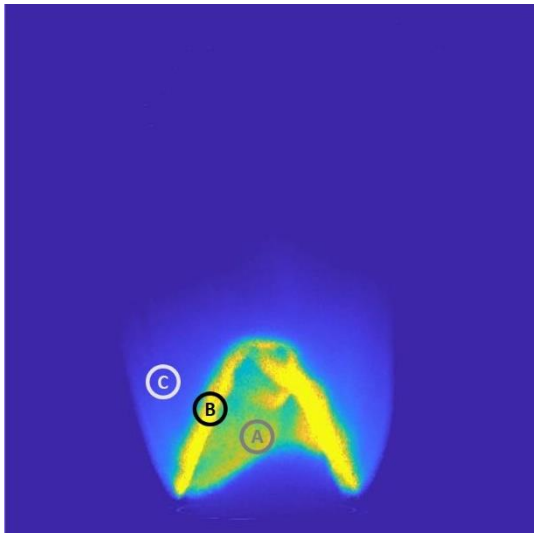


FIGURE IV.1.25 – *Conversion de l'image en niveaux de gris ci-contre en une image par nuances Rouge-Vert-Bleu*

La figure IV.1.24 présente une image obtenue par visualisation directe de la flamme Al / air, pour un temps d'intégration de 10 µs, en plaçant un filtre passe-bande centré à 486 nm, avec une largeur de bande à mi-hauteur de 10 nm, devant la caméra. L'objectif consiste à relever des images presque instantanées de la flamme métallique et de son

environnement en ciblant la bande principale d'émission de l'intermédiaire de réaction majoritairement produit au cours d'une combustion contrôlée par la diffusion, c'est-à-dire le monoxyde d'aluminium gazeux. La figure IV.1.25 illustre la conversion de l'image précédente, issue de niveaux de gris, en une image par nuances Rouge-Vert-Bleu afin d'améliorer le contraste entre ces différentes zones. La principale source de rayonnement constatée sur cette gamme spectrale provient alors de la région triangulaire B et coïncide avec la zone de réaction Al / air. Les caractéristiques de la chaîne optique (filtre, objectif, caméra) à ces longueurs d'onde et l'analyse du spectre d'émission de la flamme présentée dans la prochaine sous-section indiquent que les émissions radiatives captées par la caméra dans cette zone sont constituées à environ 52% des transitions rotationnelles-vibrationnelles de $AlO_{(g)}$ et à 48% du rayonnement thermique produit par la phase condensée. Puisque la flamme métallique générée est globalement axisymétrique, la région lumineuse A correspond alors simplement à l'intégration spatiale de la zone de réaction conique sur la profondeur de champ de la caméra. Une inversion d'Abel appliquée à l'image permettrait de visualiser les émissions générées dans le plan de symétrie de la flamme et supprimerait cette zone lumineuse. Enfin, le panache des gaz brûlés est discernable dans la zone C grâce au rayonnement thermique des produits de combustion condensés toujours soumis à de fortes températures.

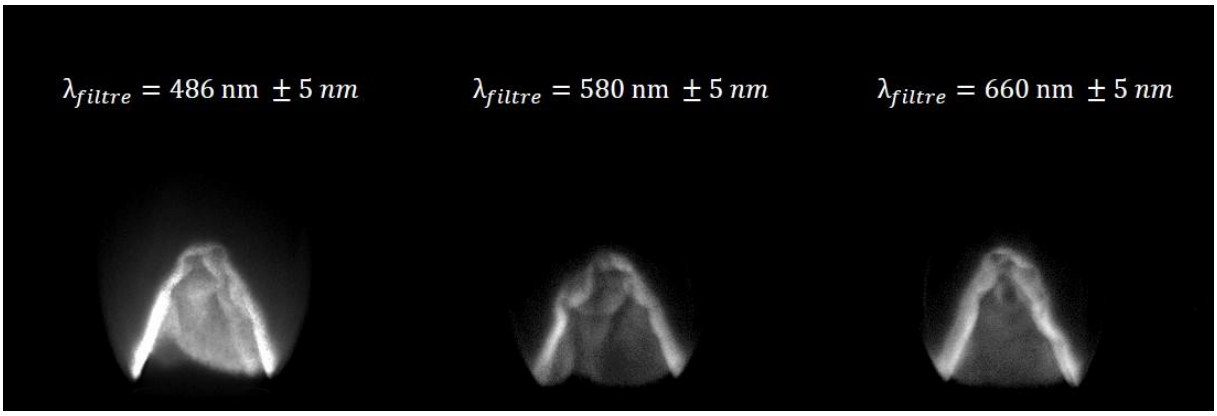


FIGURE IV.1.26 – *Visualisation directe de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur pour différents filtres placés devant la caméra*

Pour des conditions opératoires identiques, la figure IV.1.26 illustre la visualisation directe de la flamme Al / air à travers 3 filtres différents. Ces observations sont issues du filtre $AlO_{(g)}$ introduit précédemment, d'un filtre passe-bande centré à 580 nm et d'un autre centré à 660 nm, avec une largeur de bande à mi-hauteur de 10 nm pour tous. Ces deux filtres supplémentaires ont été choisis afin de percevoir uniquement le rayonnement thermique produit par la phase condensée, c'est-à-dire en dehors du domaine spectral d'émission des différentes espèces gazeuses. Néanmoins, la structure observée par visualisation directe est similaire, quel que soit le filtre utilisé. La simple visualisation directe de la flamme métallique sur le domaine spectral de l'émission $AlO_{(g)}$ ne suffit donc pas pour conclure sur l'existence de cette intermédiaire de réaction dans la zone de combustion. En considérant la réponse spectrale de l'ensemble des composants de la chaîne optique, la variation de l'intensité perçue par la caméra à ces trois longueurs d'onde est également en accord avec l'écart relatif constaté sur le spectre d'émission de la flamme Al / air. Avec cette méthode de visualisation, la zone de réaction Al / air est alors directement observable sans cibler une bande spectrale spécifique. Malgré tout, l'intensité lumineuse relevée par visualisation directe à 486 nm est la

plus importante en raison de la superposition du rayonnement thermique émis par la phase condensée et de l'émission $AlO_{(g)}$. Cependant, à la vue des différentes images présentées sur la figure IV.1.26, le rayonnement total généré par la flamme Al / air et son panache sur l'ensemble du spectre d'émission, allant des ultraviolets aux infrarouges, semble être principalement issu du rayonnement thermique produit par la phase condensée dans la zone de réaction. Cette hypothèse sera détaillée plus précisément dans la sous-section portant sur le rayonnement global généré par la flamme Al / air et de son panache.

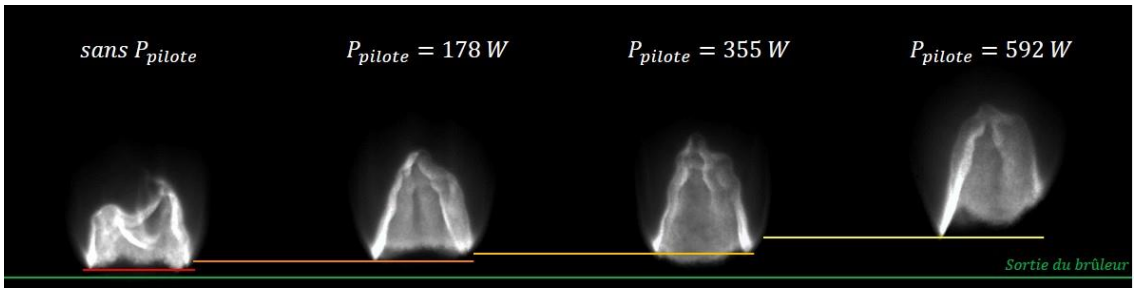


FIGURE IV.1.27 – *Modification structurelle de la flamme Al / air, observée par visualisation directe avec le filtre $AlO_{(g)}$, en fonction du paramétrage de la flamme pilote CH_4 / air*

L'influence de la flamme pilote sur la structure globale de la flamme Al / air a également été étudiée en gardant un écoulement principal inchangé. La figure IV.1.27 présente des images obtenues par visualisation directe avec le filtre $AlO_{(g)}$ pour différents paramétrages de cette flamme pilote méthane / air. Détaillée dans la section III.1, la flamme pilote annulaire est concentrique avec la sortie du brûleur et se situe à la périphérie de la base de la flamme métallique. Les transferts thermiques de la partie inférieure de la flamme Al / air vers la tête du brûleur refroidie par eau sont importants et peuvent déstabiliser l'ensemble du front de flamme, induisant une déstructuration de celui-ci et pouvant conduire à des retours de flamme dans le système ou des extinctions. La mise en place de cette flamme pilote a pour objectif de réduire ces pertes thermiques et stabiliser la flamme métallique. Néanmoins, en raison de la réaction méthane / air dans la flamme pilote, l'utilisation de cette technique de stabilisation génère des gaz chauds potentiellement oxydants en périphérie de l'écoulement principal. La conséquence directe de la présence de cette flamme pilote est également un cisaillement en périphérie de l'écoulement principal, augmentant alors légèrement la vitesse des particules d'aluminium dans cette localité et induisant un décollement de la base de la flamme Al / air plus important. Cet effet est observable en comparant les deux images présentes à gauche de la figure IV.1.27. La puissance de cette flamme pilote a également été variée, en respectant des conditions stœchiométriques, via l'augmentation respective des débits en air et en méthane contrôlés par des débitmètres numériques. Il est alors constaté que la hauteur de stabilisation de la base de la flamme métallique augmente avec la puissance de la flamme pilote en raison d'un débit en produits de combustion plus important en périphérie de l'écoulement principal, favorisant donc un cisaillement local des gaz frais. La flamme Al / air se trouve ainsi à la limite du soufflage avec une flamme pilote réglée à 592 W. La configuration avec le minimum de puissance pour la flamme pilote est retenue pour la suite des essais, délivrant alors 178 W. Il est également observé que l'augmentation de la puissance de la flamme pilote ne semble pas modifier notablement l'intensité lumineuse générée par la zone de réaction Al / air, ni la hauteur de la flamme métallique. Ainsi, l'impact de ce paramètre sur la combustion Al / air semble

négligeable et discrédite les hypothèses sur un préchauffage global des particules d'aluminium par la flamme pilote ou sur de possibles réactions entre l'aluminium et les gaz de combustion produits par la flamme pilote (CO_2 et H_2O).

Enfin, concernant la structure de la flamme Al / air à travers la visualisation directe, la figure IV.1.28 présente une séquence d'images obtenues avec le filtre $AlO_{(g)}$. Des fluctuations spatiales du front de flamme, renforcées par l'aspect multiphasique de cette combustion métallique, sont constatées durant l'essai, mais la structure générale de la flamme Al / air reste globalement stable temporellement.

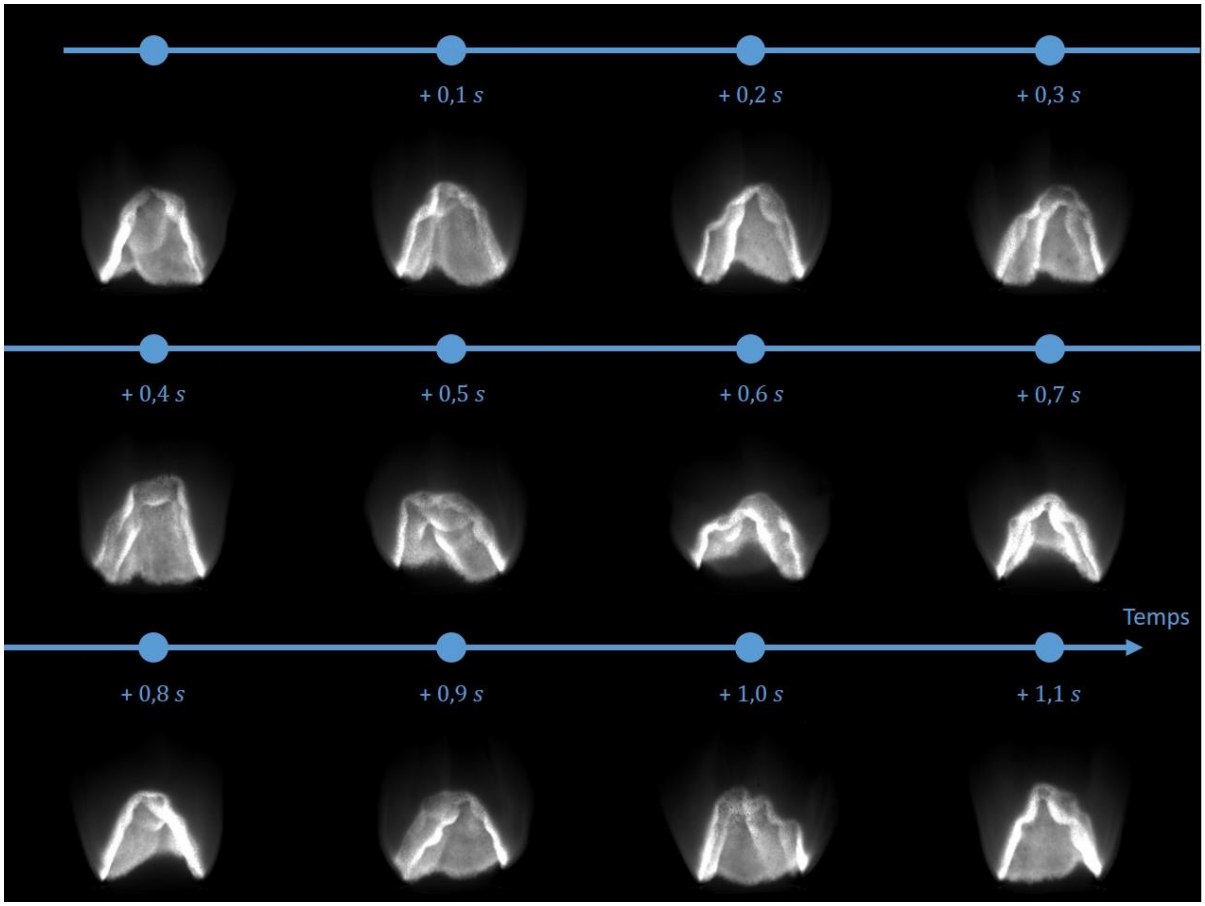


FIGURE IV.1.28 – *Exemple d'une séquence, obtenue avec le filtre $AlO_{(g)}$, représentative de l'évolution de la structure de la flamme Al / air durant un essai*

La compréhension de cette structure de flamme permet également d'estimer la vitesse de propagation induite par une flamme laminaire Al / air. En effet, la zone de réaction reste stable dans un écoulement laminaire lorsque l'équilibre se crée entre la vitesse de propagation de la flamme S_L et celle des particules d'aluminium dans les gaz frais. La conservation de la masse au niveau du front de flamme s'écrit alors de la façon suivante :

$$d\dot{m}_{GB} = d\dot{m}_{GF} = \rho_{GF} \,.\, S_L \,.\, dA \qquad \text{(IV.1.23)}$$

où $\dot{m}_{GF}$ est le débit massique des gaz frais, $\dot{m}_{GB}$ est celui des gaz brûlés, ρ_{GF} est la masse volumique équivalente des gaz frais et dA correspond à une surface infinitésimale du front de

flamme. Par intégration de l'équation (IV.1.23) sur l'ensemble du font de flamme, la relation de conservation de la masse s'exprime alors sous la forme :

$$S_L = \frac{\dot{Q}_{gaz}}{A} \tag{IV.1.24}$$

où $\dot{Q}_{gaz}$ correspond seulement au débit volumique total en air à la sortie du brûleur. En effet, le débit volumique de la poudre d'aluminium en suspension dans l'écoulement prémélangé reste négligeable et ne représente que 0,01% du débit volumique global des gaz frais dans des conditions stœchiométriques. Comme détaillé dans la section III.3, $\dot{Q}_{gaz}$ est obtenu par la somme du débit volumique en air injecté et de celui en air aspiré au niveau de la buse Venturi.

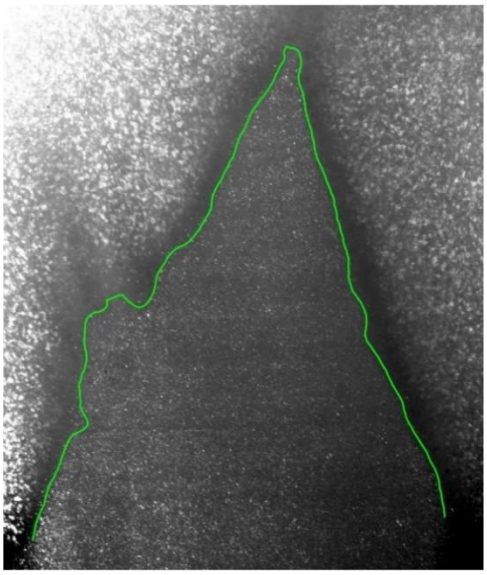


FIGURE IV.1.29 – *Exemple de la détection du contour entre la zone sombre et la partie des gaz frais sur une image de tomographie laser rapide (Lomba, 2016)*

Lors des précédents travaux sur ce dispositif expérimental (Lomba, 2016), la vitesse de flamme laminaire était estimée grâce à l'évaluation de la surface du front de flamme Al / air. La méthode FRIEB (Dominguez, 2009), la binarisation Huang-Wang (Huang, 1995) et des opérations morphologiques étaient alors appliquées aux images de tomographie laser rapide pour détecter le contour entre la zone sombre et les gaz frais. Un exemple de cette détection de contour résultant du traitement d'images est présenté sur la figure IV.1.29. Néanmoins, l'amélioration de la compréhension des images de tomographie laser semble indiquer que le contour obtenu correspondrait en réalité à l'isotherme de fusion de l'alumine, c'est-à-dire à environ 2326 K (Haynes, 2017). Si ce contour ne représente pas exactement l'isotherme correspondant aux gaz frais juste avant l'augmentation en température, alors l'estimation de la vitesse de propagation de la flamme Al / air obtenue par cette méthode est sous-estimée.

Afin de vérifier le positionnement du front de flamme, la technique de mesure par vélocimétrie par images de particules (PIV) est utilisée sur les images de tomographie laser rapide obtenues lors des précédents travaux (Lomba, 2016). Durant ces essais de combustion, où la richesse Al / air des gaz frais évoluait entre 0,8 et 1,4, les images ont été acquises à une fréquence de 3125 Hz avec une résolution de 14,5 pixels/mm.

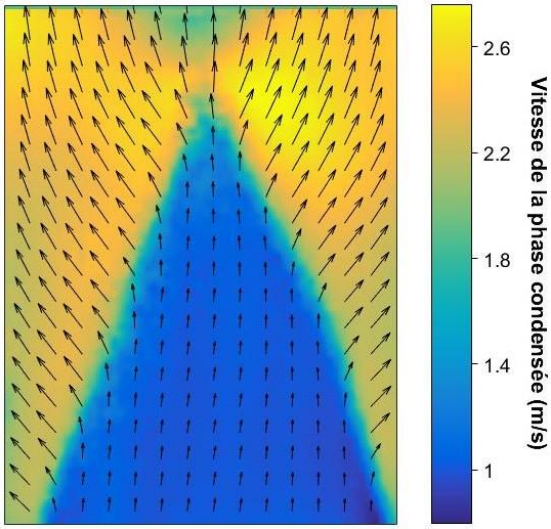


FIGURE IV.1.30 – *Cartographie des vitesses obtenues par mesure PIV sur les particules condensées présentes dans le plan de symétrie de la flamme Al / air*

Comme indiqué dans la section III.3, la poudre d'aluminium représente un traceur dans les gaz frais puisque la vitesse de ces particules peut être assimilée à celle de la phase gazeuse en raison du faible nombre de Stokes particulaire. Le déplacement de ces particules est donc estimé à 4,6 pixels entre deux images successives pour une vitesse de l'écoulement principal à la sortie du brûleur d'environ 1 m/s. Afin d'estimer ces vitesses instantanées, les images brutes sont traitées avec le module PIVlab de Matlab (Thielicke, 2010) en utilisant 4 passes d'analyse consécutives pour chaque doublet d'images, où celles-ci emploient une fenêtre d'interrogation respectivement de 64×64 pixels, 32×32 pixels, 16×16 pixels et 8×8 pixels avec un taux de recouvrement de 50% à chaque fois. La figure IV.1.30 présente un exemple de la cartographie des vitesses de la phase condensée, obtenues par mesure PIV dans le plan de symétrie de la flamme, pour une richesse Al / air estimée à 1,22. Les régions des gaz frais et du panache contenant les gaz brûlés sont alors facilement identifiables sur cette représentation graphique, faisant apparaître la zone de réaction Al / air globalement conique.

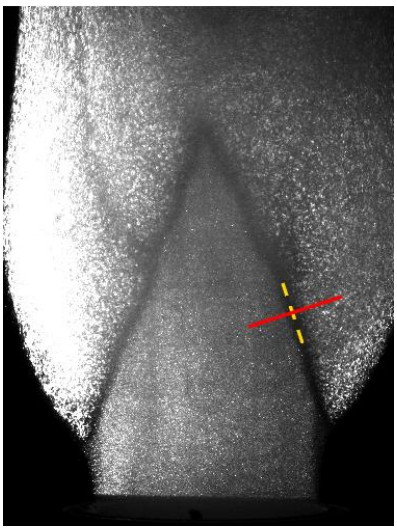


FIGURE IV.1.31 – *Schématisation de la parallèle au front de flamme Al / air et de sa normale locale sur une image de tomographie laser rapide*

Pour des flammes prémélangées, le gradient thermique entre la zone de réaction exothermique et les gaz frais induit un transport de chaleur vers le mélange comburant / carburant et, par conséquent, la propagation de la combustion. La vitesse de flamme laminaire définit alors la célérité de l'onde de combustion à laquelle celle-ci traverse les gaz frais dans la direction normale au front de flamme (Glassman, 2008). Avec l'utilisation d'un brûleur de type Bunsen, la flamme prémélangée est stabilisée grâce à l'équilibre des vitesses entre la propagation de la flamme et la composante des gaz frais normale au front de combustion, d'où l'observation d'une flamme globalement immobile. Dans le cas contraire, un retour de flamme dans le système ou le soufflage de celle-ci est constaté selon la vitesse prédominante. La notion de flamme dans le cadre des flammes prémélangées englobe simultanément la zone de réaction et la zone de préchauffage des gaz frais. Il est également admis que la région sombre présente sur les images de tomographie laser rapide est liée à la phase de combustion des particules d'aluminium. Ainsi, le contour démarquant la séparation entre cette région et la partie des gaz frais constitue directement une parallèle au front de flamme Al / air, et la normale à la propagation de la combustion peut être tracée en chaque point de la flamme. La figure IV.1.31 illustre schématiquement la parallèle au front de flamme Al / air et sa normale locale tracées sur une image de tomographie laser rapide.

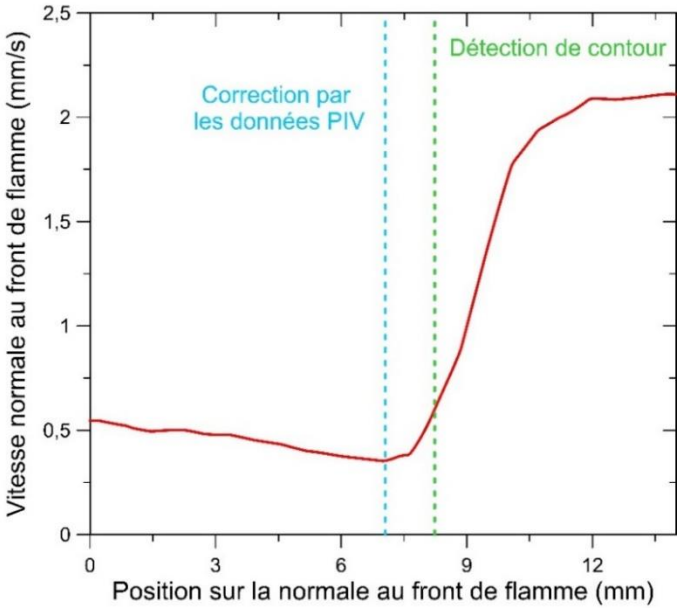


FIGURE IV.1.32 – *Évolution de la composante de la vitesse subie par les particules condensées suivant la normale au front de flamme*

Dans la zone proche de la réaction Al / air, les vecteurs de vitesse instantanée obtenus par mesure PIV sont projetés sur les différentes normales au front de flamme. La figure IV.1.32 décrit l'évolution de cette composante de vitesse selon une de ces normales. Dans un premier temps, la zone de réaction conique modifie les lignes de courant de l'écoulement prémélangé et l'élargissement de celles-ci provoque une diminution de la vitesse subie par les particules condensées. Le minimum de cette vitesse est alors atteint au niveau de la dernière isotherme des gaz frais à température ambiante et sa position définit le début du front de flamme Al / air. Ensuite, les particules d'aluminium entrent dans la zone de préchauffage de la flamme métallique et leurs vitesses augmentent progressivement grâce à l'expansion thermique des gaz. Le dégagement de chaleur généré par l'oxydation de ces particules permet d'atteindre le

maximum de vitesse à la fin de la zone de réaction. Au-delà de ce graphique, la vitesse des gaz brûlés diminue avec le développement et le refroidissement du panache. Il apparaît que le front de flamme Al / air déterminé par les données PIV se situe plus en amont de l'écoulement par rapport au contour détecté par traitement d'images, confortant ainsi l'hypothèse de la zone sombre sur les images de tomographie laser présentée précédemment. L'épaisseur de la flamme métallique, délimitée par les deux extremums de la courbe de vitesse normale au front de flamme, est estimée à 4,8 mm pour une richesse Al / air de 1,22. Celle-ci se composerait alors d'une zone de préchauffage de 1,2 mm et d'une épaisseur de réaction de 3,6 mm. En considérant le champ de vitesse obtenu par PIV, ces distances représentent un temps de préchauffage estimé à 2,7 s et un temps de combustion d'environ 2,5 s, coïncidant avec les données bibliographiques pour une combustion de particules isolées (Shoshin, 2006).

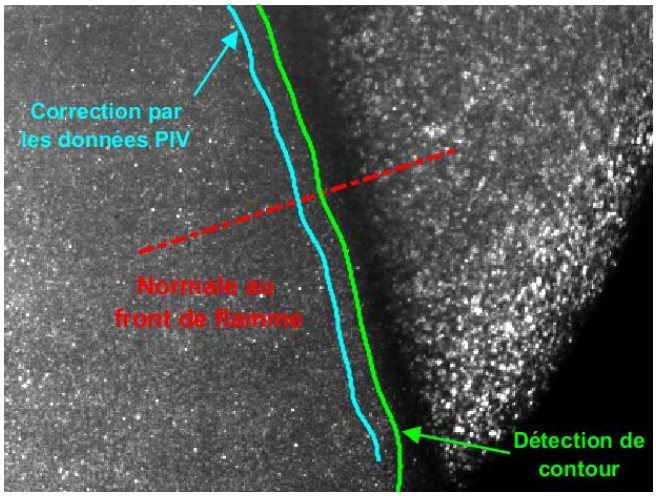


FIGURE IV.1.33 – *Zoom sur une image de tomographie laser rapide avec le tracé du contour issu de la détection par traitement d'images et sa correction via les données PIV*

En répétant la méthodologie décrite précédemment sur l'ensemble de la flamme, la position du contour obtenue par traitement d'images peut alors être comparée avec celle du minimum de la vitesse des gaz frais suivant la normale au front de flamme métallique. La figure IV.1.33 illustre cette comparaison sur un zoom d'une image de tomographie laser rapide et montre une similitude entre ces deux contours avec un décalage globalement constant.

De façon identique aux précédents travaux (Lomba, 2016), la flamme Al / air est supposée axisymétrique et la surface du front de flamme peut alors être estimée par l'intégration circulaire de son contour, corrigé avec les mesures PIV dans le plan de symétrie de la flamme, en réalisant une révolution autour de son axe. Une fois la surface du front de flamme Al / air déterminée, la vitesse moyenne de propagation de la combustion est évaluée à travers l'équation (IV.1.24). La position du front de flamme se situant plus en amont dans l'écoulement prémélangé par rapport à l'hypothèse faite dans les anciens travaux, la surface de celui-ci est plus faible et se traduit par une augmentation de la valeur de la vitesse de flamme laminaire. Cette vitesse moyenne est alors évaluée à 33,5 cm/s pour une flamme prémélangée dans des conditions stœchiométriques Al / air, soit une sous-estimation globale par les précédents travaux de 16% pour les mêmes données brutes. Les valeurs de cette vitesse moyenne, déterminées par la relation de la conservation de la masse, sont également en accord avec les mesures locales obtenues par PIV au niveau du front de flamme.

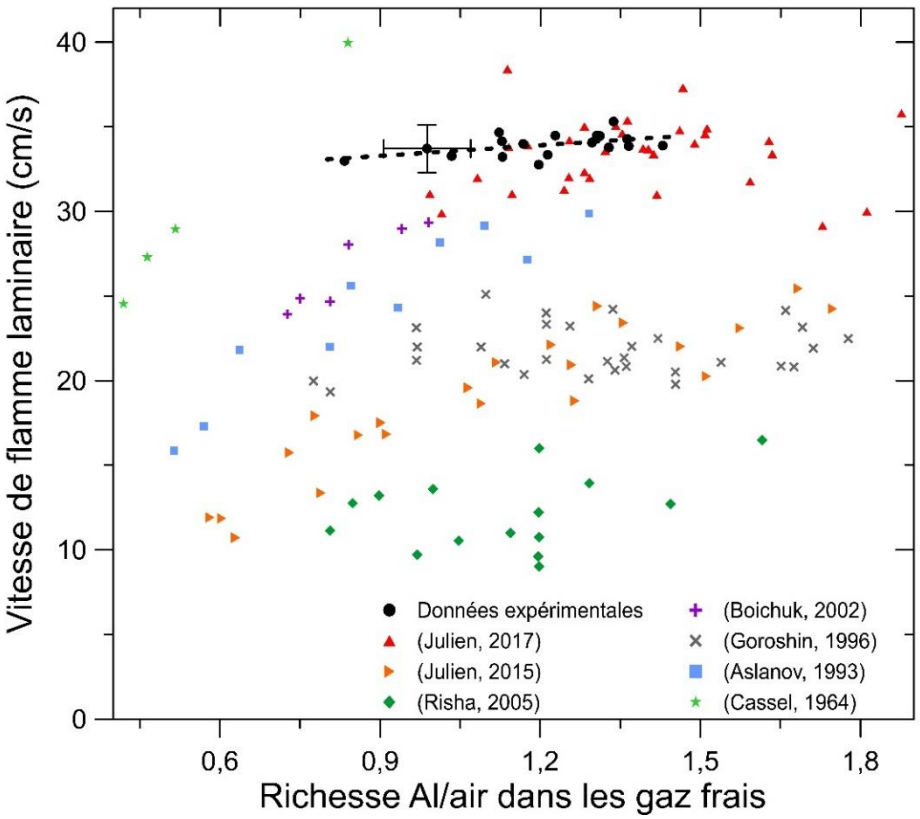


FIGURE IV.1.34 – *Comparaison des vitesses moyennes de flamme laminaire Al / air, obtenues par correction avec les données PIV, avec les valeurs bibliographiques existantes*

La figure IV.1.34 compare les vitesses moyennes de flamme laminaire Al / air obtenues sur le dispositif expérimental avec les autres données bibliographiques existantes. Les barres d'erreurs fournies en exemple proviennent à la fois de la variabilité dans l'estimation de la richesse Al / air avec l'ancienne méthode et de l'incertitude de mesure sur le débit total en air à la sortie du brûleur couplée aux variations de la symétrie du front de flamme obtenue sur les images de tomographie laser. Ces résultats expérimentaux sont en concordance avec les dernières estimations de la vitesse de flamme laminaire pour des tailles de particules d'aluminium similaires et une méthodologie également basée sur des mesures PIV (Julien, 2017). En outre, sur la gamme de richesse étudiée, il est constaté une légère augmentation de la vitesse de propagation de la combustion avec la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais. Cette observation coïncide avec l'hypothèse d'une augmentation de la surface de réaction à l'échelle microscopique grâce à la multiplication du nombre de particules d'aluminium par unité de volume, malgré une température globale de flamme qui est supposée diminuer au-delà des conditions stœchiométriques Al / air (Julien, 2015).

L'estimation de la vitesse de flamme laminaire obtenue par mesure PIV nécessite beaucoup de ressources en matériel et en calcul. Une méthode simplifiée est alors développée sur la base de la visualisation directe de la flamme métallique. Celle-ci consiste à utiliser toutes les images acquises avec le filtre $AlO_{(g)}$ placé devant la caméra basse fréquence pendant les essais de combustion. Ces images subissent successivement une binarisation et des opérations morphologiques afin d'identifier le contour extérieur de la flamme métallique, c'est-à-dire le contour de la zone de réaction Al / air du côté des gaz brûlés. Des paramètres géométriques de la flamme Al / air sont également déterminés, comme la hauteur de son

sommet H_s ou la distance de décollement de sa base par rapport à la sortie du brûleur H_d. Par définition, la hauteur de la flamme métallique H_f respecte la relation suivante :

$$H_f = H_s - H_d \tag{IV.1.25}$$

La figure IV.1.35 présente un exemple des images brutes acquises par visualisation directe, avec le filtre $AlO_{(g)}$ placé devant la caméra, et le résultat de l'identification du contour extérieur de la flamme métallique issue de la mise en œuvre du traitement d'images spécifique.

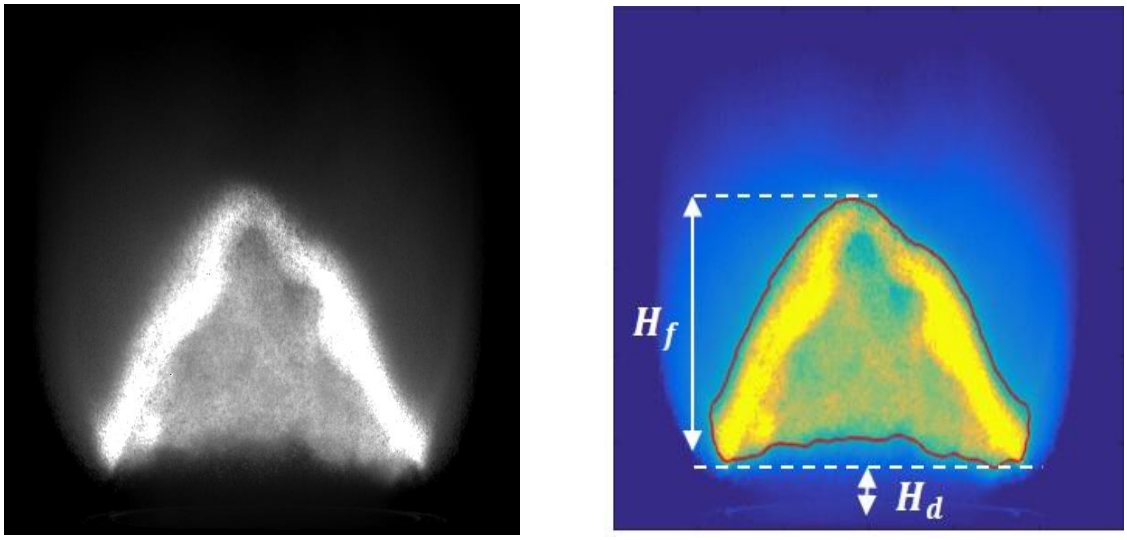


FIGURE IV.1.35 – *Détection de la zone de réaction Al / air du côté des gaz brûlés lors de la visualisation directe avec le filtre $AlO_{(g)}$ et définition des paramètres géométriques*

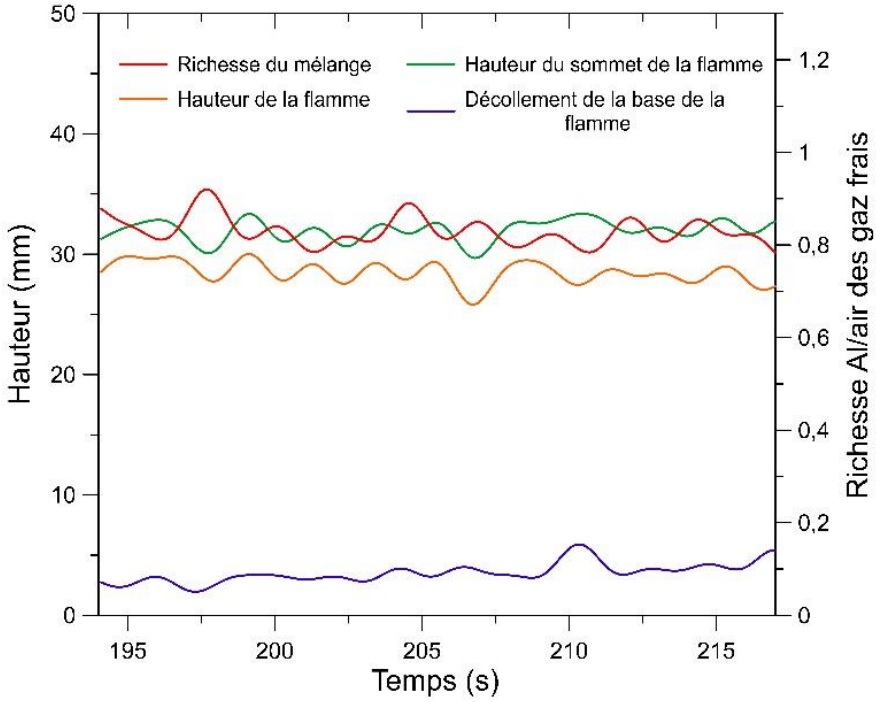


FIGURE IV.1.36 – *Évolution de la richesse des gaz frais et des caractéristiques géométriques associées à la flamme Al / air durant un essai représentatif*

Similairement à la richesse des gaz frais, l'évolution des différents paramètres géométriques de la flamme Al / air peut donc être suivie temporellement au cours d'un essai. Puisque les images obtenues par visualisation directe sont également acquises à la fréquence de 10 Hz, les paramètres mesurés sur celles-ci subissent le filtrage décrit dans la sous-section IV.1.1 afin d'observer la combustion Al / air sous les mêmes événements phénoménologiques que pour l'estimation de la richesse. La figure IV.1.36 présente les différentes données traitées obtenues durant un essai représentatif après la synchronisation de la richesse avec les images. Il apparaît un lien direct entre la richesse Al / air et les caractéristiques géométriques de la flamme métallique, où la hauteur de celle-ci possède une réponse inverse à l'évolution de la richesse des gaz frais. De la même manière, la hauteur de stabilisation de la base de la flamme métallique augmente lorsque la richesse Al / air diminue dans l'écoulement prémélangé.

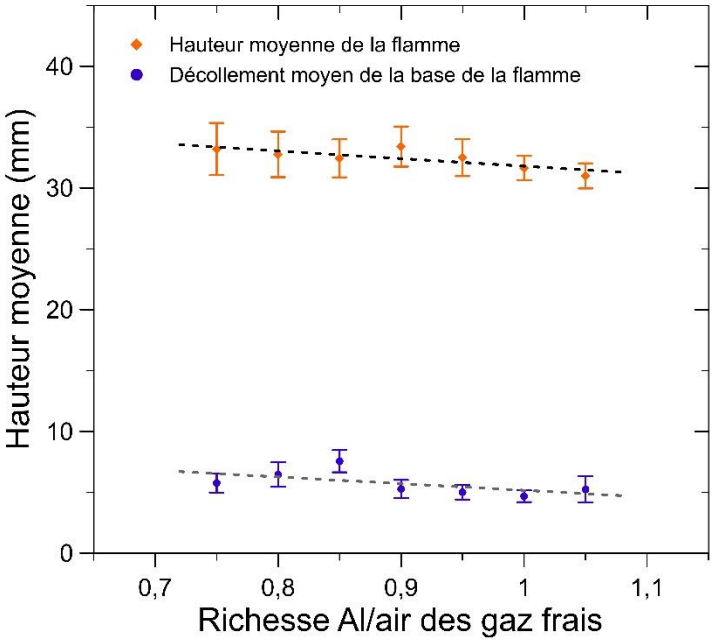


FIGURE IV.1.37 – *Évolution de la hauteur moyenne de la flamme Al / air et du décollement de sa base par rapport au brûleur en fonction de la richesse de l'écoulement principal*

Avec le traitement de 5600 images brutes obtenues par visualisation directe durant les essais de combustion, les hauteurs de la flamme métallique et de stabilisation par rapport à la sortie du brûleur ont été moyennées par tranche de richesse. La figure IV.1.37 illustre l'évolution de ces paramètres en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais, où les barres d'erreurs sont issues de la dispersion statistique des mesures. Les deux tendances décroissent linéairement avec la richesse Al / air et sont en cohérence avec l'augmentation de la vitesse de flamme laminaire constatée précédemment. En effet, une diminution de la surface du front de flamme avec la richesse est nécessaire pour garantir un équilibre de vitesse, se traduisant par un ajustement automatique de la hauteur de flamme.

L'information seule de la hauteur de flamme mesurée avec cette méthode ne permet pas de définir proprement la valeur de la vitesse de flamme laminaire Al / air. Néanmoins, la variation de cette hauteur indique directement une fluctuation de la vitesse de propagation de la combustion à travers les gaz frais. La structure de flamme étant globalement conique dans nos conditions expérimentales et la base de la flamme Al / air étant contrainte par le

diamètre de sortie du brûleur, une vitesse de flamme adimensionnée par sa valeur à la stœchiométrie $S_{L\,ad}$ peut être obtenue à travers l'équation suivante :

$$S_{L\,ad} = \sqrt{\frac{{R_b}^2 + {H_f}^2}{{R_b}^2 + {H_{f\,stoech}}^2}} \qquad \text{(IV.1.26)}$$

où R_b correspond au rayon du brûleur, soit 16 mm. La figure IV.1.38 présente les vitesses de flamme laminaire normalisées obtenues avec les variations de la hauteur moyenne de flamme en fonction de la richesse des gaz frais. Ces valeurs sont également comparées aux vitesses de flamme adimensionnées issues des données PIV. L'ensemble des résultats s'inscrit dans une dynamique similaire et démontre la validité de cette technique basée sur la mesure directe de la hauteur de la flamme métallique, avec une précision comparable à la méthode par PIV.

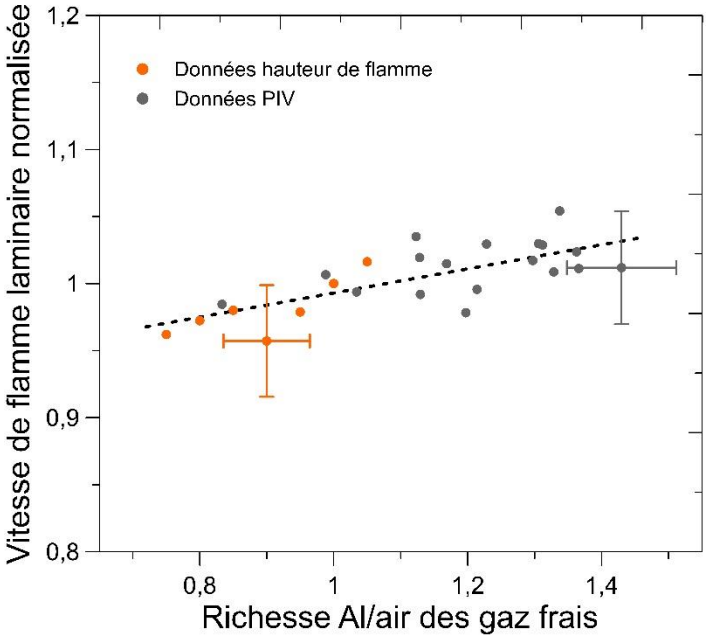


FIGURE IV.1.38 – *Évolution de la vitesse de flamme laminaire, adimensionnée par sa valeur stœchiométrique, selon la richesse Al / air des gaz frais et la technique de mesure employée*

Durant les essais de combustion, il a également été constaté que la qualité de la poudre d'aluminium peut jouer un rôle majeur sur les résultats expérimentaux. Malgré une référence fournisseur identique de la poudre, des variations sur les caractéristiques de la flamme Al / air sont apparues selon le lot de fabrication utilisé. Cet aspect amène à relativiser la quantification des propriétés de ces flammes métalliques et pourrait représenter une problématique importante pour une application industrielle avec un système nécessitant une répétabilité.

Les figures IV.1.39 et IV.1.40 présentent des clichés MEB de la poudre initiale d'aluminium issue d'une référence fournisseur identique, mais provenant de deux lots de fabrication différents. Ces clichés ont été réalisés avec le même grossissement en observant les électrons secondaires émis par la matière. Les particules d'aluminium sont globalement sphériques dans les deux échantillons, mais celles-ci présentent une distribution en taille sensiblement différente. Une analyse EDS a également été conduite sur les deux lots de poudre sans faire ressortir de divergence, indiquant alors une composition chimique similaire.

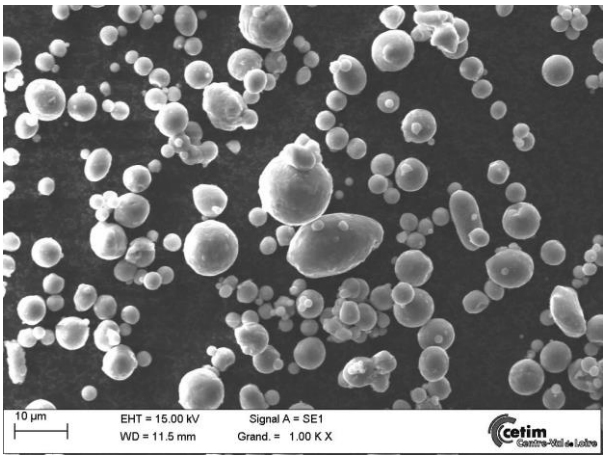


FIGURE IV.1.39 – *Cliché MEB de la poudre d'aluminium issue du lot n°A par l'observation des électrons secondaires*

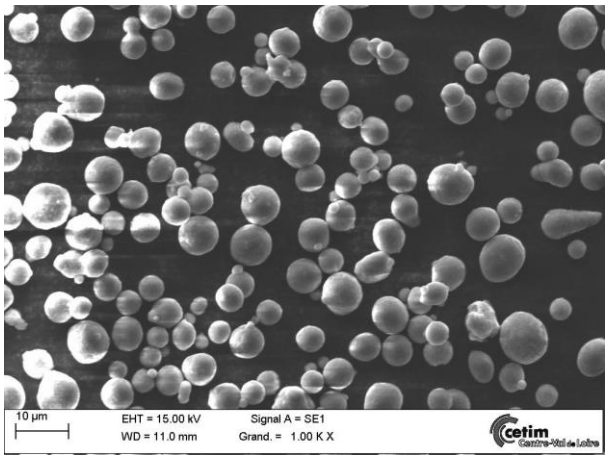


FIGURE IV.1.40 – *Cliché MEB de la poudre d'aluminium issue du lot n°B par l'observation des électrons secondaires*

Afin de vérifier la granulométrie des particules d'aluminium rencontrée par le front de flamme Al / air, les deux poudres ont fait l'objet d'essais sans combustion avec le granulomètre Helos Sympatec positionné à la sortie du brûleur. La configuration utilisée est identique à celle présentée dans la section III.2 et les données ont été moyennées sur plusieurs essais pour une plus grande représentativité. La figure IV.1.41 illustre les analyses granulométriques moyennes basées sur le volume des particules en suspension dans l'air pour les deux lots de fabrication. Une distribution bimodale de la taille des particules d'aluminium est constatée dans les deux cas. Néanmoins, le lot n°A présente un plus grand volume d'aluminium sous la forme de petites particules inférieures à 6,5 µm de diamètre alors que la granulométrie de l'autre lot est plus disperse, avec un écart observé au-delà d'un diamètre supérieur à 30 µm. Conformément aux clichés MEB, cette distribution en taille se traduit par un diamètre moyen en volume de 7,6 µm pour le lot n°A et de 9,1 µm pour le lot n°B.

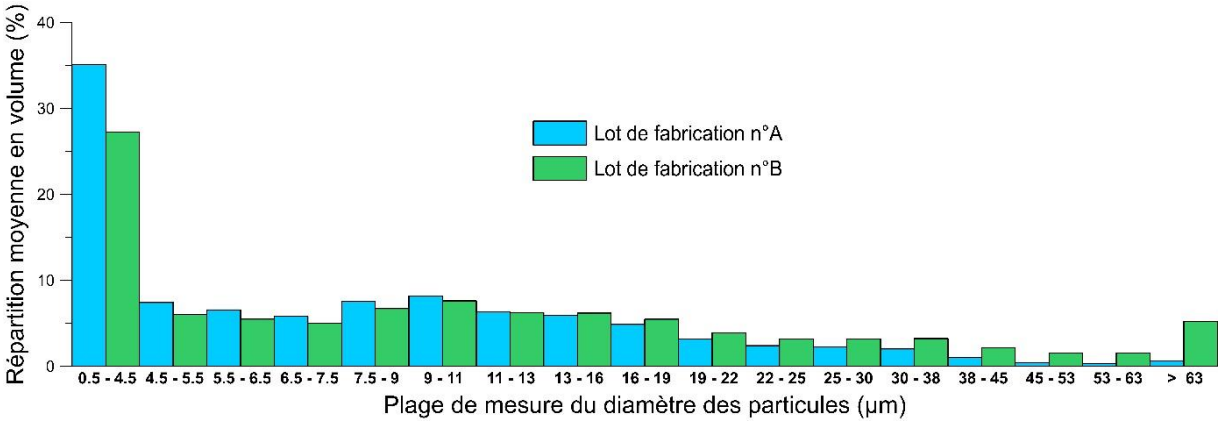


FIGURE IV.1.41 – *Distribution de la taille des particules initiales selon leurs volumes pour différents lots de fabrication d'une même référence fournisseur en poudre*

Durant la phase de combustion, des écarts sur la hauteur de flamme Al / air et la distance de stabilisation de la base de la flamme métallique ont été notés entre les deux lots de poudre. La figure IV.1.42 présente des images représentatives, obtenues par visualisation

directe avec le filtre $AlO_{(g)}$, de la combustion de ces deux lots de poudres dans des conditions opératoires identiques et illustre la différence des caractéristiques géométriques de la flamme métallique pour une richesse Al / air estimée à 0,9. Un allongement de la flamme et une augmentation de la hauteur de décollement de sa base sont constatés pour le lot de fabrication n°B, c'est-à-dire le lot avec les plus grosses particules d'aluminium. Ces observations coïncident avec une réduction de la vitesse de propagation de la combustion Al / air, où les mesures de la hauteur de flamme pour un mélange stœchiométrique montrent une diminution d'environ 12% de cette vitesse par rapport au lot de poudre n°A. Ce comportement pourrait résulter de l'importante capacité thermique volumique de l'aluminium solide en comparaison de celle de l'air, avec un rapport proche de 1600. En effet, un délai de préchauffage additionnel est nécessaire pour amener ces plus grosses particules d'aluminium à leurs températures d'allumage et, par conséquent, induit une augmentation de l'épaisseur de la zone de préchauffage des gaz frais.

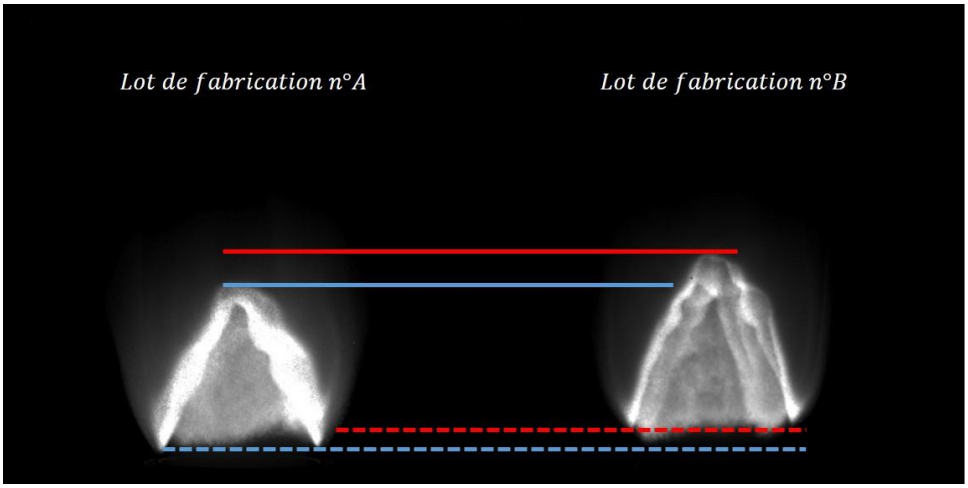


FIGURE IV.1.42 – *Évolution de la structure de flamme Al / air à travers le filtre $AlO_{(g)}$ selon la variation granulométrique de la poudre au sein d'une même référence fournisseur*

Dans nos conditions expérimentales, la vitesse de flamme laminaire semble être proportionnelle au diamètre moyen des particules d'aluminium selon $d^{-0,63}$, et cette tendance est en accord avec les simulations numériques donnant $S_L \sim d^{-0,78}$ pour des tailles de particules similaires (Han, 2019). La réactivité du mélange décroît alors avec le diamètre des particules d'aluminium et une variation de la distribution en taille de ces particules suffit pour influencer les paramètres globaux de la flamme prémélangée Al / air, contribuant ainsi aux écarts de valeurs constatés dans la littérature.

IV.1.3 Température de la phase condensée dans la zone de réaction

L'étude de la température de la phase condensée dans la zone de réaction permet de renseigner simultanément sur la température de la flamme métallique et le régime de combustion à l'échelle particulaire. Pour cela, un spectromètre associé à un montage optique a été installé sur le dispositif expérimental comme indiqué dans la section III.4. La température de la phase condensée est alors estimée à travers l'analyse du spectre d'émission de la flamme prémélangée Al / air sur le domaine spectral allant de 250 nm à 680 nm.

La première étape de cette méthode consiste à calibrer le spectromètre dans sa configuration opératoire, c'est-à-dire en utilisant également l'ensemble de la chaîne optique positionné en amont de celui-ci. Une lampe de tungstène-halogène OceanOptics HL-2000-HP est utilisée comme source de rayonnement afin d'effectuer cette calibration. Son émission radiative a été caractérisée directement par le fournisseur à travers des mesures d'irradiance spectrale. La figure IV.1.43 présente les points de mesure obtenus par le fournisseur.

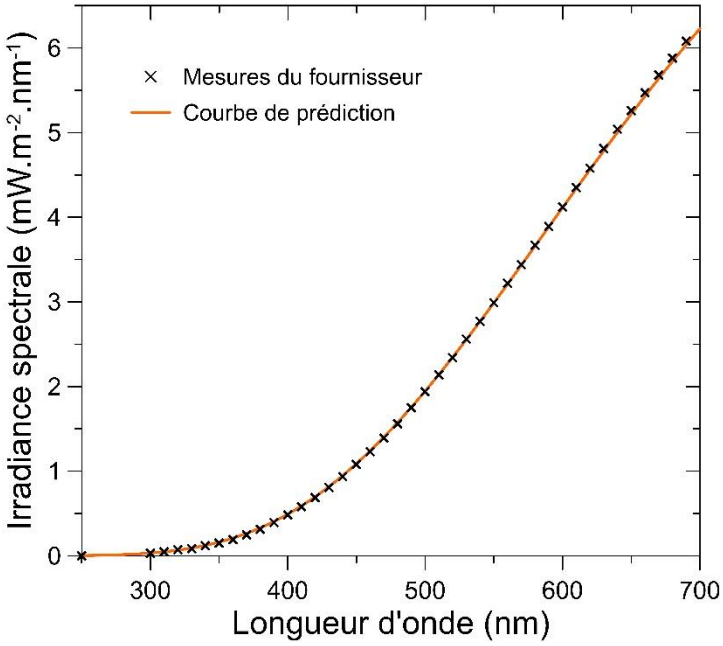


FIGURE IV.1.43 – *Caractéristiques radiatives de la lampe de calibration en comparant les mesures obtenues par le fournisseur avec une courbe de prédiction*

Cette lampe de calibration est conçue pour générer un rayonnement semblable à un corps gris pour des longueurs d'onde comprises entre 250 nm et 2400 nm. Son irradiance spectrale peut alors être prédite à partir de la théorie généralisée de Planck selon l'équation suivante (Saunders, 1997) :

$$F_{lamp\ sim}(\lambda) = \lambda^{-5} \times e^{A+B/\lambda} \times (C + D/\lambda + E/\lambda^2 + F/\lambda^3 + G/\lambda^4 + H/\lambda^5) \quad \text{(IV.1.27)}$$

où $F_{lamp\ sim}(\lambda)$ correspond à la prédiction de l'irradiance spectrale de la lampe et A, B, C, D, E, F, G, H sont des constantes associées. Celles-ci ont été déterminées à travers une optimisation de paramètres afin de coïncider avec les mesures réalisées par le fournisseur. Les valeurs de ces constantes sont indiquées dans le tableau IV.1.1 et la courbe de prédiction obtenue est tracée sur la figure IV.1.43, transcrivant correctement les données du fournisseur.

A	38,67		**C**	20,63		**E**	-12390		**G**	1734000000
B	-4982		**D**	87,75		**F**	-3977000		**H**	0

TABLEAU IV.1.1 – *Valeurs des constantes de l'équation (IV.1.27) optimisées pour les données fournisseur sur l'irradiance spectrale de la lampe de calibration*

La lampe de calibration est alors disposée au-dessus de la sortie du brûleur, remplaçant la partie de la flamme étudiée lors de la combustion Al / air. Après avoir traversé les deux lentilles plan-convexes, le filtre réfléchissant de densité neutre et la fibre optique, le rayonnement produit par la lampe de calibration est analysé par spectrométrie d'émission avec un temps d'intégration de 10 ms. Dans ces conditions opératoires, le spectromètre mesure l'intensité spectrale de la lumière avec une résolution de 0,133 nm. La figure IV.1.44 présente le spectre brut de la lampe de calibration, obtenu en moyennant 100 spectres acquis successivement et après avoir soustrait le bruit de fond.

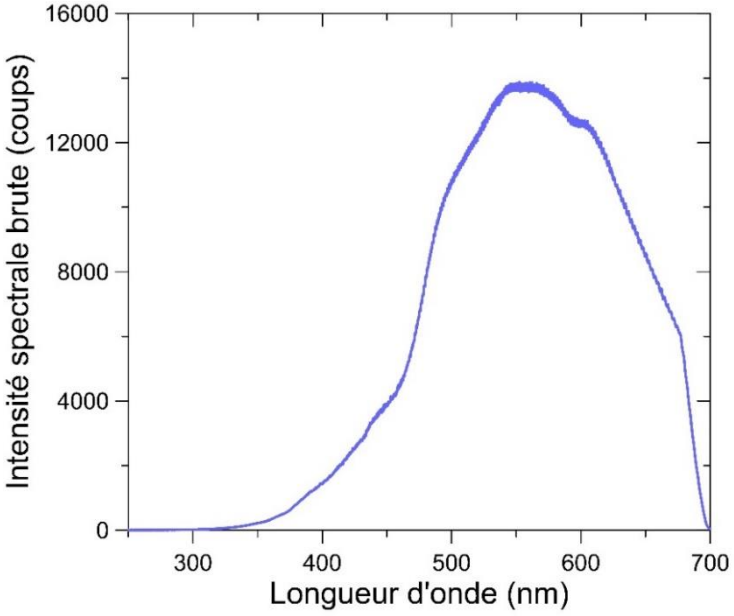


FIGURE IV.1.44 – *Spectre d'émission brut de la lampe de calibration mesuré dans la configuration opératoire du spectromètre*

Les valeurs de l'intensité spectrale ne peuvent pas être directement comparées à celles de l'irradiance spectrale, intrinsèquement liées aux caractéristiques de la lampe de calibration. L'intensité spectrale mesurée par le spectromètre dépend également de plusieurs paramètres externes tels que la surface d'exposition, l'angle d'incidence du rayonnement ou encore le temps d'intégration. En revanche, par définition, ces deux grandeurs physiques adimensionnées sont strictement identiques et se traduisent par les équations suivantes :

$$F_{lamp\ ad}(\lambda) = \frac{F_{lamp\ sim}(\lambda)}{F_{lamp\ sim}(\lambda = 580\ nm)} \qquad \text{(IV.1.28)}$$

$$I_{lamp\ brut\ ad}(\lambda) = \frac{I_{lamp\ brut}(\lambda)}{I_{lamp\ brut}(\lambda = 580\ nm)} \qquad \text{(IV.1.29)}$$

où $F_{lamp\ ad}(\lambda)$ et $I_{lamp\ brut\ ad}(\lambda)$ correspondent respectivement à l'irradiance spectrale et à l'intensité spectrale brute de la lampe de calibration adimensionnée par leur valeur à 580 nm et $I_{lamp\ brut}(\lambda)$ représente l'intensité spectrale brute de la lampe mesurée par le spectromètre. Cette longueur d'onde a été choisie afin de minimiser l'impact de la précision de mesure du spectromètre et d'éviter l'influence du rayonnement d'espèces gazeuses sur la détermination des spectres d'émission obtenus lors de la combustion Al / air.

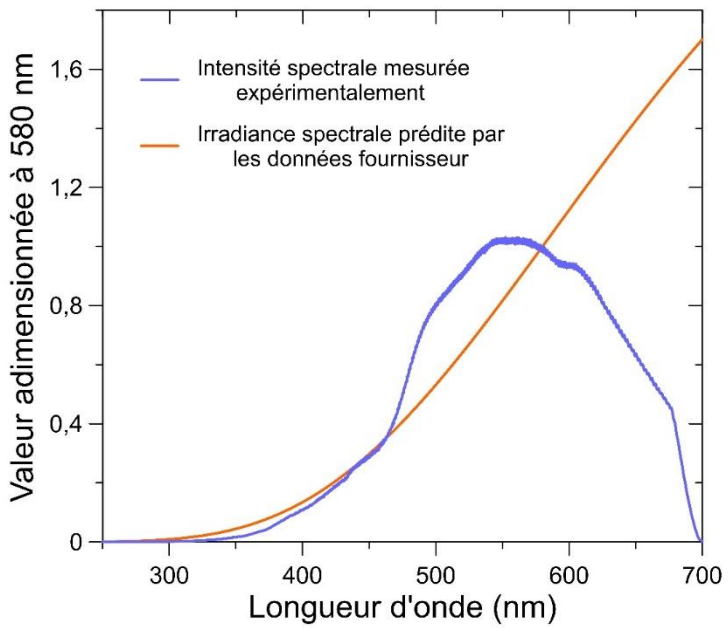


FIGURE IV.1.45 – *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la lampe de calibration et celui mesuré directement par le spectromètre*

La figure IV.1.45 présente la comparaison entre l'irradiance spectrale et l'intensité spectrale brute de la lampe de calibration adimensionnée par leur valeur à 580 nm. La différence constatée entre le spectre d'émission réel et celui mesuré par le spectromètre est alors directement issue de la combinaison des diverses réponses spectrales des éléments de la chaîne optique et du spectromètre. Cette relation peut se traduire par la formule suivante :

$$F_{lamp\ ad}(\lambda) = I_{lamp\ brut\ ad}(\lambda) \times K_{cal\ ad}(\lambda) \qquad \text{(IV.1.30)}$$

où $K_{cal\ ad}(\lambda)$ correspond au coefficient spectral de calibration global, regroupant l'influence de la chaîne optique et du spectromètre, pour un adimensionnement des valeurs à 580 nm.

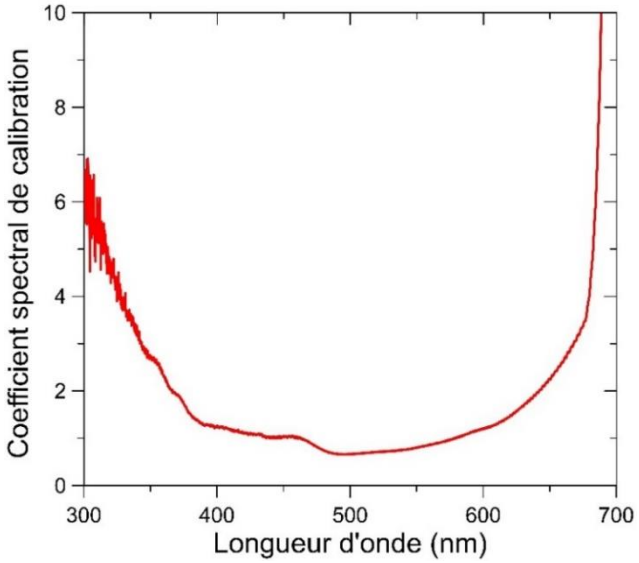


FIGURE IV.1.46 – *Coefficient spectral de calibration pour un adimentionnement à 580 nm*

La figure IV.1.46 présente l'évolution du coefficient de calibration global en fonction de la longueur d'onde du rayonnement. Celui-ci dépend alors de la configuration opératoire du spectromètre et de la longueur d'onde choisie pour l'adimensionnement des grandeurs physiques. Par définition, ce coefficient de calibration vaut 1 pour une longueur d'onde de 580 nm et devient fluctuant sur la plage 250 – 320 nm en raison de l'importance de l'incertitude de mesure dans la valeur de l'intensité spectrale mesurée par le spectromètre.

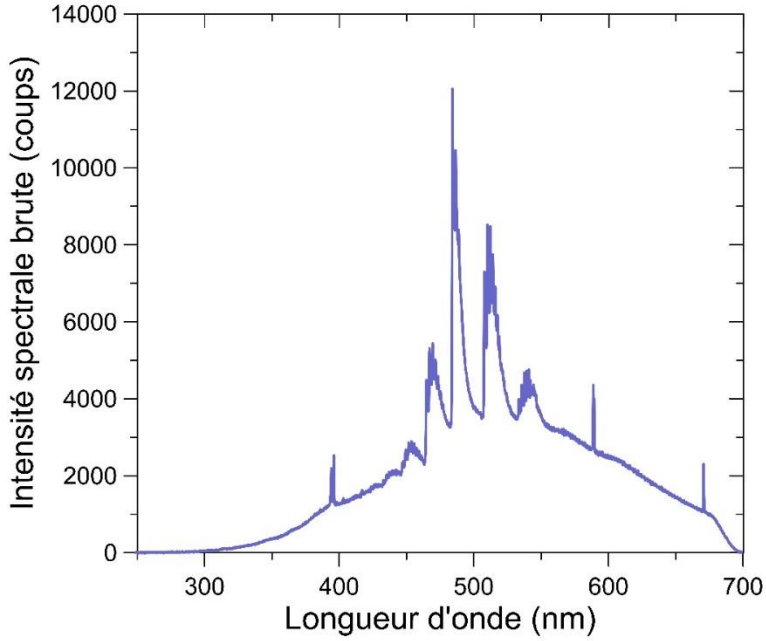


FIGURE IV.1.47 – *Exemple d'un spectre d'émission brut de la flamme Al / air obtenu dans la configuration opératoire du spectromètre*

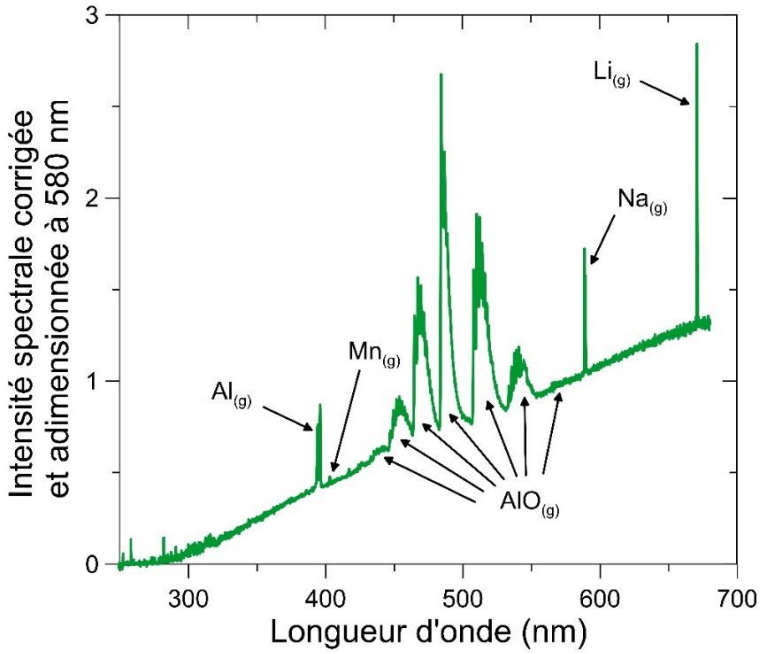


FIGURE IV.1.48 – *Exemple d'un spectre d'émission réel de la flamme Al / air obtenu après la correction de l'intensité spectrale brute adimensionnée à 580 nm*

La configuration opératoire du spectromètre et les paramètres d'acquisition associés ont été entièrement figés suite à la calibration de la chaîne de mesure, permettant ainsi d'étudier l'émission lumineuse induite par la combustion métallique stabilisée à la sortie du brûleur. La figure IV.1.47 présente un exemple de spectre d'émission brut de la flamme Al / air, obtenu après la soustraction du bruit de fond. La corrélation entre ce spectre brut mesuré par le spectromètre et le spectre réel de la flamme se traduit par les équations ci-dessous :

$$I_{flam\ brut\ ad}(\lambda) = \frac{I_{flam\ brut}(\lambda)}{I_{flam\ brut}(\lambda = 580\ nm)} \quad \text{(IV.1.31)}$$

$$I_{flam\ ad}(\lambda) = I_{flam\ brut\ ad}(\lambda) \times K_{cal\ ad}(\lambda) \quad \text{(IV.1.32)}$$

où $I_{flam\ brut}(\lambda)$ correspond à l'intensité spectrale brute de la flamme métallique mesurée par le spectromètre, $I_{flam\ brut\ ad}(\lambda)$ est l'intensité spectrale brute de la flamme adimensionnée par sa valeur à 580 nm et $I_{flam\ ad}(\lambda)$ correspond à l'intensité spectrale réelle de la flamme adimensionnée à 580 nm, obtenue après correction par le coefficient spectral de calibration.

En se basant sur l'intensité spectrale brute présentée sur la figure IV.1.47, la figure IV.1.48 illustre un exemple de spectre d'émission réel de la flamme Al / air obtenu après correction. En raison des fortes températures en jeu dans la zone de réaction, ce spectre est majoritairement composé d'un fond d'émission continue issu du rayonnement thermique de la phase condensée. Le deuxième contributeur de ce spectre est l'émission générée par les transitions électroniques $\Delta v = 0$ du système $B^2\Sigma^+ - X^2\Sigma^+$ de l'$AlO_{(g)}$, dont la principale bande d'émission se situe autour de 486 nm. La présence de cet intermédiaire de réaction, combinée à l'existence d'aluminium gazeux [394,40 / 396,15 nm], confirme que la combustion à l'échelle particulaire ne peut être exclusivement sous la forme d'une réaction hétérogène de surface malgré la taille des particules initiales. En raison de la présence d'impuretés dans la poudre d'aluminium, d'autres raies atomiques sont également visibles sur le spectre d'émission de la flamme métallique telles que le sodium [589,00 / 589,59 nm], le manganèse [403,08 / 403,31 / 403,45 nm] ou encore le lithium [670,78 / 670,79 nm] (Corliss, 1998).

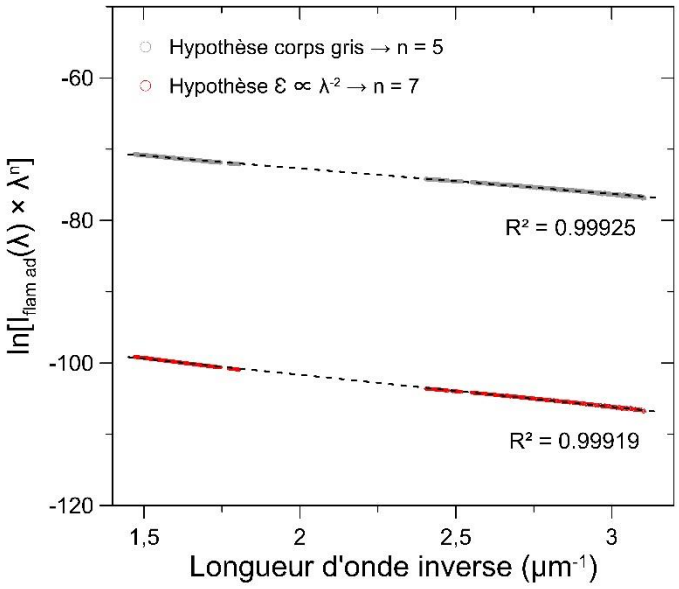


FIGURE IV.1.49 – *Détermination d'une température moyenne dans la phase condensée*

La température de la phase condensée dans la zone de réaction peut être évaluée à travers la loi de Planck et les spectres d'émission de la flamme Al / air. De manière identique à la méthode détaillée dans la sous-section II.3.2, la relation liant l'intensité spectrale à la température de la phase condensée est définie par l'équation suivante :

$$ln\left[I_{flam\ ad}(\lambda) \times \lambda^n\right] = ln(b) - \frac{C_2}{\lambda \times T} \qquad \text{(IV.1.33)}$$

où b est une constante comprenant l'intensité spectrale réelle de la flamme à 580 nm et n correspond à une constante dépendant de l'émissivité globale de la phase condensée. Dans l'hypothèse où le rayonnement thermique provient principalement de l'émission induite par des particules ayant un comportement de type corps gris, n vaut la valeur 5. Dans l'hypothèse où le rayonnement thermique provient principalement de l'émission induite par les particules d'alumine nanométriques, soit une émissivité globale proportionnelle à λ^{-2} (Goroshin, 2007), n vaut la valeur 7.

La figure IV.1.49 illustre graphiquement la méthode permettant de déterminer la température de la phase condensée à travers les deux hypothèses présentées ci-dessus. Afin de ne pas fausser les résultats, les valeurs de l'intensité spectrale impactées par l'émission d'un élément gazeux ne sont pas utilisées. Chaque régression linéaire permet alors d'obtenir un coefficient directeur égal à C_2/T, où C_2 vaut 1,4388 . 10^{-2} m.K. La température de la phase condensée est alors estimée à 3995 K avec l'hypothèse d'un comportement de type corps gris et à 3174 K avec l'hypothèse d'une émissivité globale proportionnelle à λ^{-2}. Les deux coefficients de détermination sont très proches de 1 et ne permettent pas de statuer entre les deux hypothèses. Même si le comportement de type corps gris est traditionnellement écarté en raison d'une température non physique associée, celle-ci reste inférieure au point d'ébullition maximal de l'alumine renseigné à 4000 K dans la littérature (Sundaram, 2017).

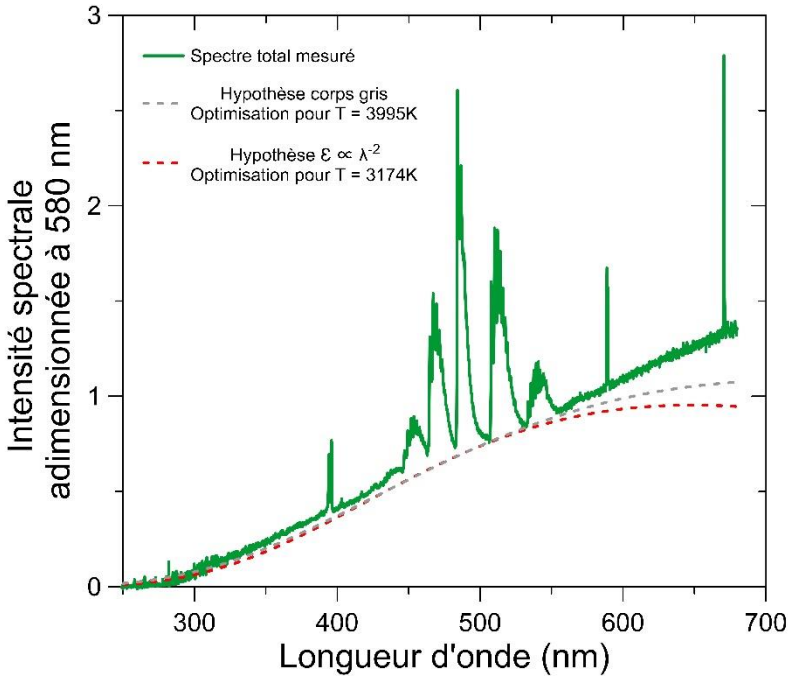


FIGURE IV.1.50 – *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme Al / air et les simulations du spectre d'émission de la phase condensée pour une seule température*

La figure IV.1.50 présente la comparaison graphique entre le spectre d'émission réel de la flamme Al / air et les deux simulations possibles du spectre d'émission la phase condensée, dépendant respectivement de l'hypothèse sur l'émissivité globale des particules et de la température unique associée. Même si une similarité entre ces deux spectres simulés et l'émission réelle de la flamme métallique est constatée sur le domaine spectral proche de l'ultra-violet, ceux-ci divergent considérablement de l'intensité spectrale mesurée à partir de 550 nm. Malgré un coefficient de détermination extrêmement élevé des deux régressions linéaires présentées sur la figure IV.1.49, les hypothèses traditionnellement employées ne permettent pas une approximation fiable du fond d'émission continue de la flamme et faussent l'estimation de la température de la phase condensée dans la zone de réaction. Par ailleurs, à partir de 550 nm, la simulation traduisant l'hypothèse d'un corps gris à une température de 3995 K est la moins déviante par rapport à l'intensité spectrale mesurée. Cette observation confirme l'importance du R^2 de la régression linéaire présentée sur la figure IV.1.49 et illustre l'impact d'un écart de ce paramètre par rapport à 1 sur la simulation du fond d'émission continue.

La visualisation directe de la combustion d'une particule d'aluminium isolée, subissant une oxydation pilotée par la diffusion des espèces gazeuses, présage plutôt un rayonnement thermique provenant conjointement de la goutte métallique et de sa microflamme située en périphérie. A l'image des résultats présentés ci-dessus, le fond continu du spectre d'émission de la flamme Al / air ne peut donc pas être simulé à travers une émissivité globale et une température unique. Afin d'approximer plus fidèlement le rayonnement thermique généré par la phase condensée, un programme a été développé sous Matlab. Celui-ci repose sur l'hypothèse d'une combustion contrôlée par la diffusion à l'échelle particulaire, en considérant la goutte d'aluminium micrométrique comme un corps gris et une émissivité proportionnelle à λ^{-2} pour les particules d'alumine nanométriques.

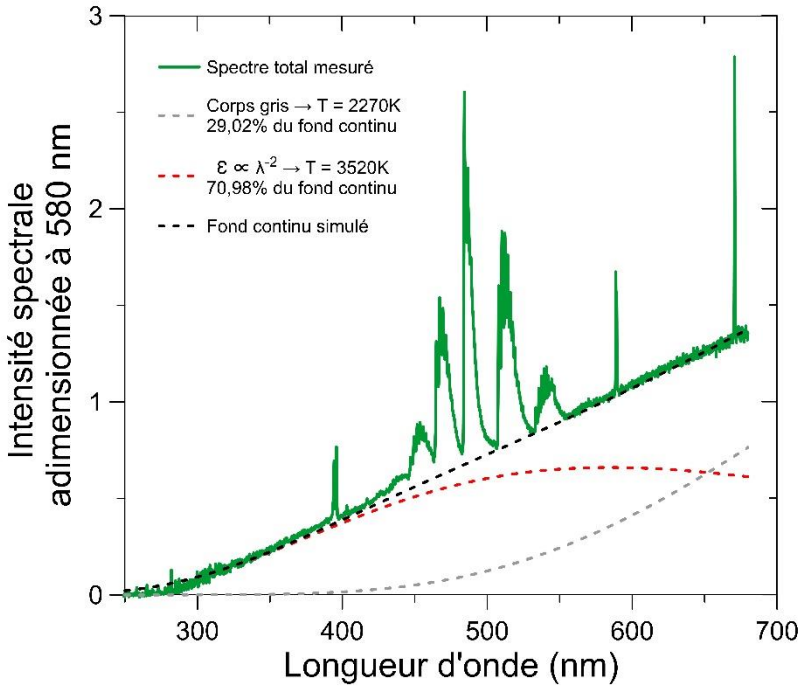


FIGURE IV.1.51 – *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme et la simulation des spectres d'émission de la phase condensée pour deux températures distinctes*

Le rayonnement induit par la goutte métallique est étudié sur un intervalle de température allant de 2230 K à 2810 K, permettant ainsi d'encadrer simultanément la température de vaporisation de l'aluminium à pression atmosphérique et une température de surface pouvant atteindre 80% de cette température d'ébullition (Braconnier, 2020). Concernant le rayonnement généré par les particules d'alumine, celui-ci est étudié sur un intervalle de température allant de 2800 K à 4000 K. La valeur maximale de température correspond au plus haut point d'ébullition de l'alumine à 1 atm présent dans la littérature. Le programme repose sur une discrétisation de la température de la goutte d'aluminium avec un pas de 20 K. Pour chacune de ces températures, le rayonnement thermique généré par des particules d'alumine est simulé suivant un pas de température de 30 K. La répartition de ces deux parties dans le fond d'émission continue, traduisant alors le ratio des émissivités globales, est analysée avec un pas de 0,01%. Ces trois variables sont alors optimisées afin de minimiser l'écart entre la simulation du fond continu, c'est-à-dire la combinaison du rayonnement induit par la goutte métallique et celui généré par les particules d'alumine, et le spectre d'émission réel de la flamme Al / air.

La figure IV.1.51 illustre la comparaison graphique entre le même spectre de la flamme Al / air et la nouvelle simulation du rayonnement thermique induit par la phase condensée. La température en surface de la goutte métallique est estimée à 2270 K, celle des particules d'alumine nanométriques est évaluée à 3520 K et l'émission de l'aluminium liquide représente environ 29% du fond continu. Ces températures au sein de la zone de réaction sont cohérentes avec d'autres mesures (Bucher, 1996) et la concordance entre la simulation et l'intensité spectrale mesurée démontre la pertinence de cette méthodologie face aux approches historiques. La faible température en surface de la goutte métallique peut s'expliquer par la rapide consommation de l'aluminium gazeux dans la microflamme, générant ainsi une faible pression partielle et faisant chuter sa température d'ébullition. Pour une température de 2270 K, la pression de vapeur saturante de l'aluminium serait d'environ 80 mbar (CRC, 1993).

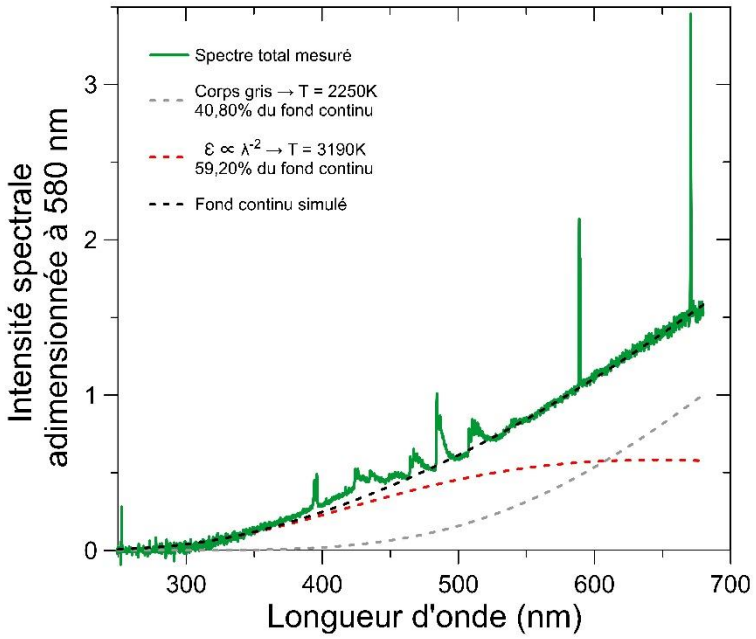


FIGURE IV.1.52 – *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme à l'allumage et la simulation des spectres d'émission de la phase condensée pour deux températures*

La figure IV.1.52 illustre la comparaison graphique entre le spectre d'émission réel de la flamme Al / air lors de sa phase d'allumage et la simulation du rayonnement thermique induit par la phase condensée. Cette phase se caractérise par une faible émission des espèces gazeuses, un profil du fond continu légèrement courbé et la présence d'$AlH_{(g)}$. Ce composé gazeux provient de la réaction entre l'aluminium et le H_2O généré par la combustion méthane / air servant à l'allumage de la flamme métallique. Les transitions électroniques $\Delta v = 0$ du système $A^1\Pi$ - $X^1\Sigma$ de l'intermédiaire de réaction $AlH_{(g)}$, dont les principales bandes d'émission se situent à 424,6 nm et 425,8 nm, sont visibles sur le spectre de la flamme Al / air. La température en surface de la goutte métallique est estimée à 2250 K, celle des particules d'alumine nanométriques est évaluée à 3190 K et l'émission de l'aluminium liquide représente 40,8% du fond continu. La variation de ces trois paramètres pour différents spectres de flamme métallique démontre l'absence de sur-contraintes dans le modèle numérique utilisé. Par ailleurs, la simulation du fond continu concorde également avec l'intensité spectrale mesurée. Malgré une température de l'aluminium quasiment inchangée par rapport au précédent spectre d'émission analysé, l'augmentation de la proportion de la goutte métallique dans le rayonnement thermique global de la phase condensée est cohérent avec la forte diminution de la température des particules d'alumine nanométriques. Cette dernière peut s'expliquer par une interaction entre la flamme métallique et la combustion méthane / air, réduisant la quantité d'oxygène disponible au niveau de chaque microflamme et induisant des réactions parasites moins exothermiques durant la phase d'allumage.

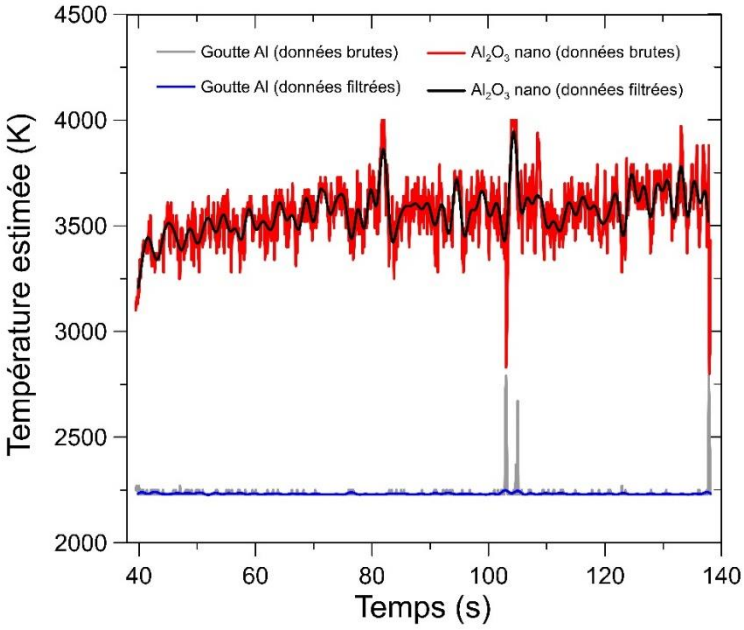


FIGURE IV.1.53 – *Évolution de la température en surface de la goutte métallique et de celle des particules d'alumine nanométriques durant un essai de combustion Al / air*

La figure IV.1.53 présente l'évolution respective de la température en surface de la goutte d'aluminium et de celle des particules d'alumine nanométriques durant un essai de combustion Al / air. Ces deux températures ont été déterminées à travers la moyenne de 10 spectres acquis successivement afin de réduire les temps de calcul. D'une manière générale, la température des particules d'alumine fluctuent entre 3200 k et 3800 K. En revanche, la température de la goutte d'aluminium est extrêmement stable durant l'essai, avec une valeur

moyenne d'environ 2250 K. Sur la figure IV.1.53, chaque température de la phase condensée possède trois pics visibles durant l'essai, dont les valeurs respectives se rapprochent de la température d'ébullition de l'aluminium à 1 atm. Ces singularités correspondent à des bouffées de particules d'aluminium lâchées ponctuellement par le brûleur, augmentant alors la richesse des gaz frais de manière conséquente. La modification de ce paramètre pourrait initier le changement du mode de combustion à l'échelle de la goutte d'aluminium, passant d'une réaction contrôlée par la diffusion des espèces gazeuses à celle majoritairement régie par des réactions hétérogènes de surface. Cette modification de la richesse diminuerait la consommation d'$Al_{(g)}$ et augmenterait la pression partielle en aluminium, soit également son point de vaporisation. La température en surface de la goutte métallique pourrait ainsi servir d'indicateur sur le régime de combustion particulaire. Afin de comparer directement les deux températures de la phase condensée avec la mesure de la richesse en aluminium des gaz frais, chaque évolution de température a été filtrée à 1 Hz suivant la méthodologie décrite dans la sous-section IV.1.1.

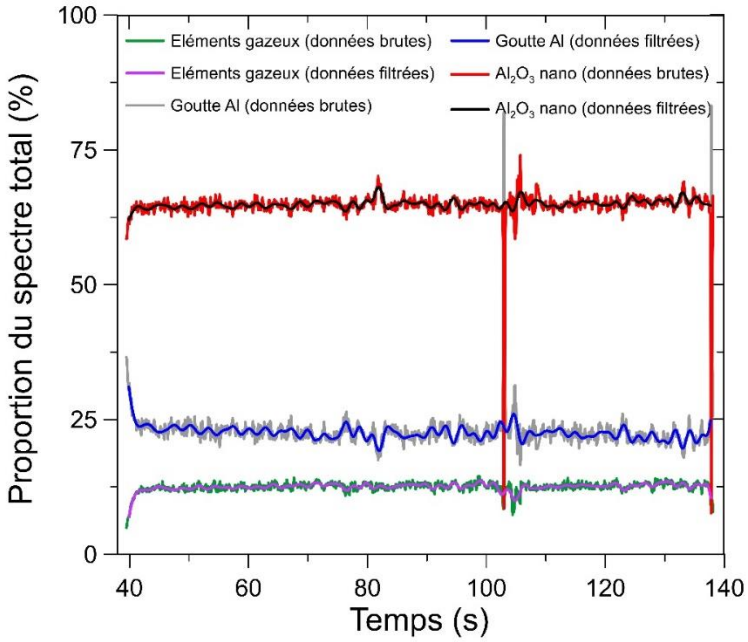


FIGURE IV.1.54 – *Évolution de la composition du spectre d'émission de la zone de réaction durant un essai de combustion Al / air*

Sur la plage de mesure du spectromètre, soit entre 250 nm et 680 nm, le spectre de la flamme Al / air peut être décomposé en 3 éléments : le rayonnement thermique généré par la goutte métallique, celui induit par les particules d'alumine nanométriques et l'émission des espèces gazeux. La figure IV.1.54 présente la contribution de chaque élément dans le spectre réel de la flamme métallique et leur évolution respective durant un essai de combustion Al / air. Une fois l'allumage de la flamme métallique finalisé, la composition du spectre d'émission reste globalement identique durant l'essai où chaque partie possède la même importance. Les pics des deux températures de la phase condensée observés sur la figure précédente sont également visibles. Le rayonnement thermique généré par les particules d'alumine nanométriques passe alors d'une contribution d'environ 65% à seulement 10% du spectre de la flamme, concordant avec l'augmentation de la température de la goutte d'aluminium et l'hypothèse d'un changement de régime de combustion à l'échelle particulaire.

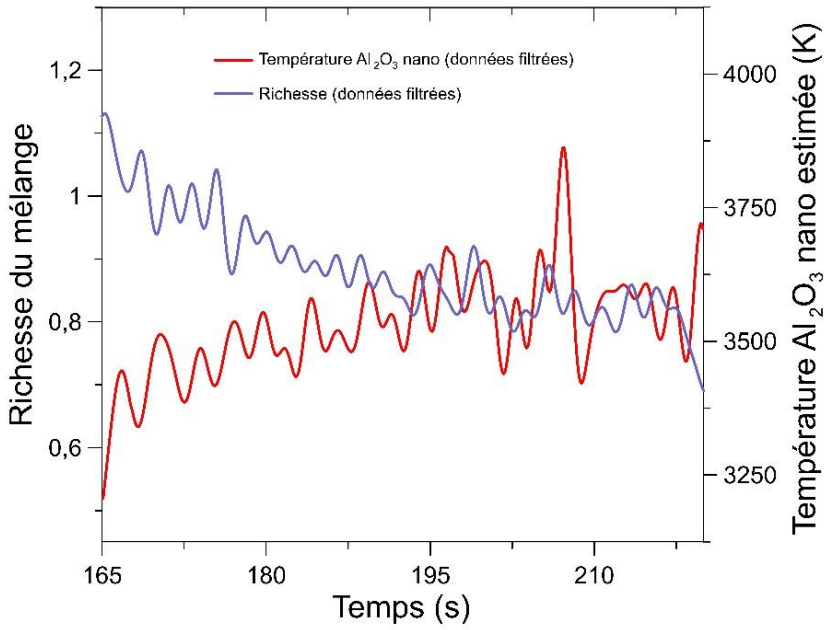


FIGURE IV.1.55 – *Évolution de la température des particules d'alumine nanométriques et de la richesse des gaz frais durant un essai de combustion Al / air*

La comparaison des différents paramètres entre eux est réalisée uniquement avec les signaux filtrés à 1 Hz afin de prendre en compte les mêmes phénomènes temporels. Après la synchronisation des signaux, la figure IV.1.55 présente l'évolution de la mesure de la richesse en aluminium dans les gaz frais et l'estimation de la température des particules d'alumine nanométriques durant un essai de combustion. D'une manière générale, ces deux paramètres possèdent une réponse inverse. La température des particules d'alumine nanométriques diminue lorsque la richesse du mélange augmente, et inversement.

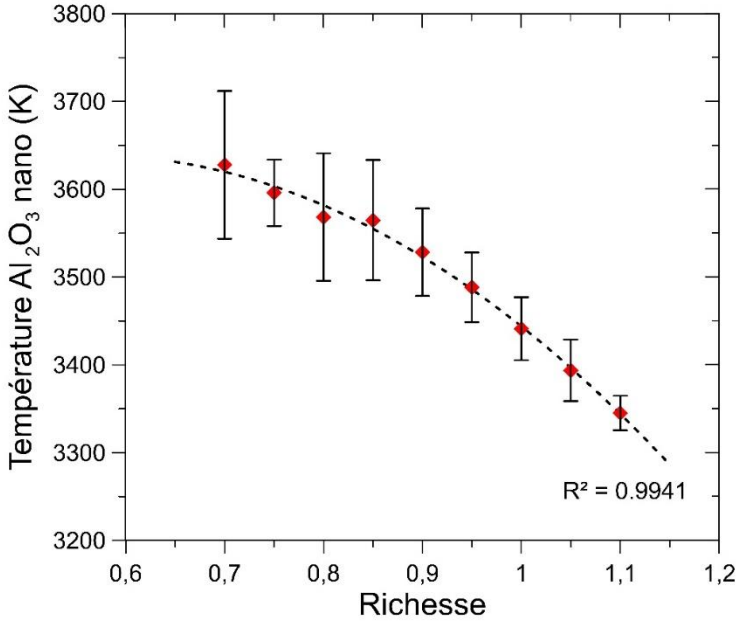


FIGURE IV.1.56 – *Évolution de la température des particules d'alumine nanométriques dans la zone de réaction en fonction de la richesse en aluminium des gaz frais*

Conformément à l'observation faite sur la figure IV.1.53, la température en surface de la goutte métallique ne varie pas sur la plage de richesse générée et vaut environ 2250 K. Cette information valide l'hypothèse d'une combustion pilotée par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire malgré la taille initiale des particules d'aluminium. La figure IV.1.56 présente l'évolution de la température des particules d'alumine nanométriques en fonction de la richesse en aluminium des gaz frais. Cette température varie entre 3630 K et 3345 K pour une richesse allant de 0,70 à 1,10 et son évolution peut être assimilé à une loi polynomiale d'ordre 2. Cette chute de température avec la richesse du mélange pourrait traduire une compétition entre les différentes microflammes afin de réagir avec l'oxygène disponible. En revanche, l'estimation de cette température peut être supérieure à la température de flamme adiabatique dans l'air à pression atmosphérique, soit 3541K (McBride, 1996). La notion de température de flamme reste cependant un concept vague puisque la zone de réaction est composée d'une phase gazeuse inerte, de plusieurs intermédiaires de réaction et d'une phase condensée possédant deux températures distinctes.

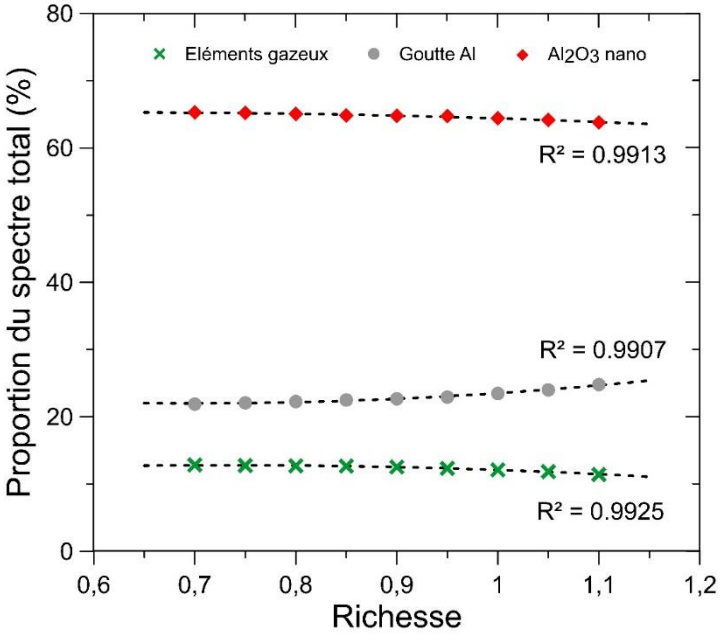


FIGURE IV.1.57 – *Évolution de la composition du spectre d'émission de la zone de réaction en fonction de la richesse en aluminium des gaz frais*

La figure IV.1.57 présente la contribution de chaque élément dans le spectre réel de la flamme métallique et leur évolution respective en fonction de la richesse en aluminium dans les gaz frais. La dispersion statistique associée aux différents points est couverte par la taille des symboles. Sur la plage de richesse étudiée, la part du rayonnement thermique généré par la goutte métallique varie entre 21,9 % et 24,8%, celle issue des particules d'alumine varie entre 65,3% et 63,9% et la contribution de l'émission des éléments gazeux varie de 11,4% à 12,8%. Ces valeurs sont proches des observations faites par visualisation directe sur des particules d'aluminium isolées, estimant à environ 20% la part de la goutte métallique dans l'émission radiative globale (Braconnier, 2020). L'évolution de la composition du spectre de la flamme Al / air est également cohérente avec l'évolution des températures de la phase condensée, traduisant ainsi un potentiel impact du manque d'oxygène disponible lorsque que la richesse du mélange augmente.

IV.1.4 Bilan

Ce premier chapitre dédié aux résultats expérimentaux permet d'analyser certaines propriétés fondamentales telles que le mode d'oxydation des particules d'aluminium, la vitesse de flamme laminaire ou encore les températures en jeu dans la zone de réaction. Ces diverses propriétés, d'ordre macroscopique ou à échelle particulaire, sont à mettre en parallèle avec la richesse des gaz frais fixant directement les conditions générales de combustion. Pour ce faire, la concentration en particules d'aluminium est déterminée dans l'écoulement prémélangé à partir d'une méthode optique se basant sur l'atténuation laser. Cette technique permet une mesure instantanée et continue durant l'essai de combustion Al / air avec une précision de 25 g/m^3 pour une confiance de 95%, soit une information deux fois plus précise que celles indiquées dans la littérature pour des flammes métalliques.

L'exploitation des images obtenues précédemment par tomographie laser permet une meilleure compréhension de la structure de flamme Al / air. La zone sombre présente sur celles-ci, initialement attribuée à la vaporisation de l'aluminium et à l'expansion des gaz chauds, serait plutôt liée à une diminution de l'émissivité directionnelle des particules. Ce changement brusque serait induit par le retrait de la couche d'oxyde métallique en un lobe d'alumine, modifiant alors les propriétés optiques des particules à travers l'exposition de l'aluminium au rayonnement laser. Cette hypothèse semble également être confirmée par les données PIV, donnant lieu à une nouvelle position du front de flamme Al / air et à un recalage de la vitesse de flamme laminaire. L'estimation de cette vitesse est de 33,5 cm/s pour un mélange stœchiométrique, soit un écart relatif de 16% par rapport aux précédents travaux. D'une manière générale, la vitesse de propagation du front de flamme augmente légèrement sur la plage de richesse allant de 0,82 à 1,42.

La visualisation directe de la flamme métallique à travers la principale longueur d'onde d'émission de l'intermédiaire de réaction $AlO_{(g)}$, soit 486 nm, permet de cibler la zone de réaction Al / air. Cette technique peut renseigner sur l'évolution de la vitesse de propagation laminaire en utilisant la géométrie de la flamme et en la normalisant avec celle obtenue pour des conditions stœchiométriques. Cette méthodologie simplifiée fournit une précision sur la vitesse de flamme laminaire normalisée équivalente à celle obtenue en utilisant les données PIV. Deux lots de fabrication différents, issus d'une même référence de poudre chez le fournisseur, ont été testés. Ceux-ci possèdent des dispersions sur la granulométrie des particules d'aluminium et le passage d'un diamètre moyen en volume de 7,6 µm à 9,1 µm induit une diminution de 12% sur la vitesse de propagation laminaire à une richesse de 0,90. Dans nos conditions expérimentales, la vitesse de flamme laminaire est alors proportionnelle au diamètre moyen des particules d'aluminium selon $d^{-0,63}$. Au-delà de l'écart généré par les différents dispositifs expérimentaux, cette observation permet de rationaliser la dispersion des données bibliographiques constatée sur ce paramètre.

L'étude des différents spectres d'émission de la flamme métallique confirme une présence importante d'aluminium gazeux et de l'intermédiaire de réaction $AlO_{(g)}$ dans la zone de réaction, indiquant un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire. Contrairement à la méthodologie présentée dans la littérature, le rayonnement thermique induit par ce mode de combustion ne peut pas être simulé à travers une émissivité globale des particules et une température unique. Le fond continu se compose

alors de l'émission radiative de la goutte métallique ayant un comportement de type corps gris et du rayonnement thermique des particules d'alumine nanométriques possédant une émissivité proportionnelle à λ^{-2}. Sur la plage de richesse étudiée, la température en surface de la goutte d'aluminium est globalement constante à environ 2250 K, soit une valeur équivalente à 80% du point d'ébullition de ce métal à 1 atm. La température estimée serait issue d'une faible pression partielle en aluminium gazeux autour de la goutte, en raison de sa rapide consommation dans la microflamme, et pourrait être un indicateur supplémentaire sur le régime de combustion subi par les particules métalliques. Concernant la température des particules d'alumine nanométriques, celle-ci décroît de 3630 K à 3345 K selon une loi polynomiale d'ordre 2 lorsque la richesse passe de 0,70 à 1,10, traduisant potentiellement le manque progressif d'oxygène disponible au niveau des différentes microflammes. Entre 250 nm et 680 nm, le spectre d'émission de la flamme métallique est ainsi constitué à environ 12% de l'émission des éléments gazeux, 24% du rayonnement thermique de la goutte d'aluminium et 64% du rayonnement des particules d'alumine. Ces proportions varient uniquement de quelques pourcents sur la plage de richesse étudiée.

IV.2 Produits de combustion solides

L'étude des produits de combustion solides générés par la flamme métallique Al / air correspond à un axe complémentaire de la thèse. L'objectif est de vérifier le régime d'oxydation subit à l'échelle particulaire dans les conditions expérimentales, de renseigner la nature et la granulométrie des particules solides présentes dans les gaz brûlés afin de concevoir une solution de filtration adaptée et de déterminer le rendement de combustion. Ce dernier paramètre est indispensable pour connaître la puissance totale libérée par le brûleur et définir correctement la proportion entre la chaleur convectée dans le panache des gaz brûlés et l'énergie rayonnée vers l'extérieur. Dans le cadre d'un vecteur énergétique métallique appliqué à la mobilité, l'estimation du rendement de combustion permet également de déterminer la viabilité globale de cette solution en évaluant la masse de métal embarquée qui serait inutile dans l'apport énergétique au système.

IV.2.1 Systèmes de mesure utilisés

Les microscopes photoniques utilisent l'optique classique pour générer un grossissement et possèdent une limite de résolution fixée à environ 0,2 µm en raison de l'indice de réfraction de l'objectif et de la longueur d'onde minimale de la lumière visible. Les produits de combustion étant généralement de faibles tailles, ceux-ci ont été analysés via un MEB (Microscope Électronique à Balayage) situé au CETIM (CEntre Technique des Industries Mécaniques) Centre-Val de Loire et un MET (Microscope Électronique en Transmission) localisé au laboratoire CEMTHI (Conditions Extrêmes et Matériaux : Haute Température et Irradiation) permettant des résolutions plus fines.

Afin de pallier la limite de l'optique classique, ces deux matériels utilisent un principe basé sur l'interaction entre les particules et la matière. La figure IV.2.1 présente une schématisation de cette interaction lorsqu'un échantillon est bombardé par un faisceau d'électrons. L'impact

d'un atome de l'échantillon par un électron primaire issu de ce faisceau incident peut alors générer différents types d'éléments :

- L'électron Auger provient de la désexcitation de l'atome, où l'énergie associée est directement transmise à un électron périphérique conduisant à son éjection. Ces électrons possèdent une très faible énergie et ne peuvent être émis vers l'extérieur uniquement sur les premiers nanomètres de matière sous la surface exposée.
- L'électron secondaire est généré lorsque l'électron primaire transmet partiellement son énergie à un électron faiblement lié à la bande de conduction de l'atome, induisant alors une ionisation de l'atome par éjection de celui-ci. En raison de leur faible énergie, les électrons secondaires sont émis vers l'extérieur dans la couche superficielle de la matière, soit une épaisseur ne dépassant pas 50 nm.
- L'électron rétrodiffusé correspond à une réaction quasi élastique de l'atome, émettant un électron avec une légère perte d'énergie dans la direction proche de celle inversée de l'électron primaire incident. Ce type d'électrons possède une plus grande énergie que les électrons secondaires et ceux-ci peuvent être émis vers l'extérieur dans une profondeur de matière pouvant aller jusqu'à 1 µm.
- La fluorescence de rayons X provient également de l'arrachement d'un électron des orbitales internes de l'atome par un électron primaire. Contrairement au procédé de production d'un électron Auger, la désexcitation de l'atome s'effectue lorsqu'un électron des orbitales externes remplace l'électron éjecté en émettant un photon avec une forte énergie, soit dans la gamme spectrale des rayons X. Ces photons peuvent être émis vers l'extérieur dans une épaisseur de matière allant jusqu'à 5 µm.
- La cathodoluminescence correspond sensiblement à la même phénoménologie que la fluorescence de rayons X mais l'énergie de transition est plus modérée, générant alors l'émission d'un photon dans le domaine visible, IR ou UV. Ces photons sont émis dans une épaisseur similaire à la fluorescence de rayons X.

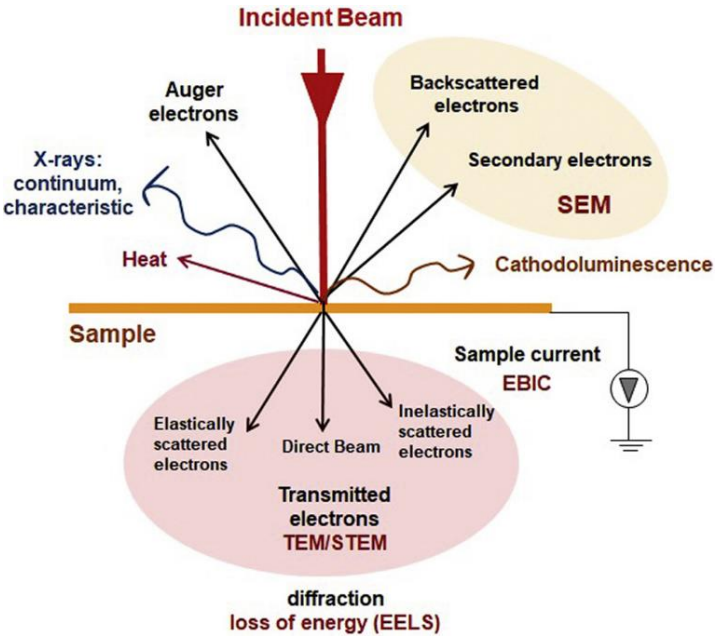


FIGURE IV.2.1 – *Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la matière d'un échantillon lors d'une visualisation par MEB ou MET (Kwiecińska, 2019)*

Les premiers MEB ont été commercialisés vers la fin des années 1960 et leur principe de fonctionnement, consistant à balayer la surface de l'échantillon à visualiser avec un faisceau d'électrons très fin, est resté globalement inchangé. La figure IV.2.2 illustre les principaux éléments composant ce matériel. Le canon à électrons constitue la source d'émission des électrons primaires et permet de fournir un débit stable et continu de ces particules. À titre d'exemple, le MEB utilisé au CETIM reposait sur le chauffage par effet Joule d'un filament de tungstène afin de générer des électrons par émission thermoïonique. Ces électrons sont ensuite soumis à une haute tension afin d'augmenter leur énergie cinétique et former un faisceau d'électrons. Celui-ci est façonné via l'utilisation de différentes lentilles magnétiques pour atteindre un diamètre de quelques nanomètres à la surface de l'échantillon à visualiser et son déplacement dans le plan normal est assuré grâce à un champ magnétique produit par une bobine. La résolution spatiale de l'appareil dépend ainsi de la finesse du faisceau d'électrons au point d'impact avec la matière de l'échantillon. Deux détecteurs permettent de collecter les électrons issus de l'interaction entre le faisceau d'électrons primaires et les atomes de l'échantillon, soit une grille polarisée pour dévier les électrons secondaires possédant une faible énergie et un capteur annulaire situé dans l'axe du faisceau incident pour capter les électrons rétrodiffusés. Le balayage de la surface de l'échantillon permet alors de reconstituer une image en nuance de gris, dont les valeurs de chaque pixel dépendent du débit d'électrons collectés par le détecteur sélectionné.

La visualisation issue des électrons secondaires sert à renseigner sur la morphologie de la surface de l'échantillon, où le débit d'électrons générés dépend majoritairement de l'angle entre le faisceau incident et la surface locale de l'échantillon. La visualisation issue des électrons rétrodiffusés permet plutôt de distinguer des zones chimiquement différentes à la surface de l'échantillon, où l'émission d'électrons vers l'extérieur dépend notamment du numéro atomique de la couche de matière traversée.

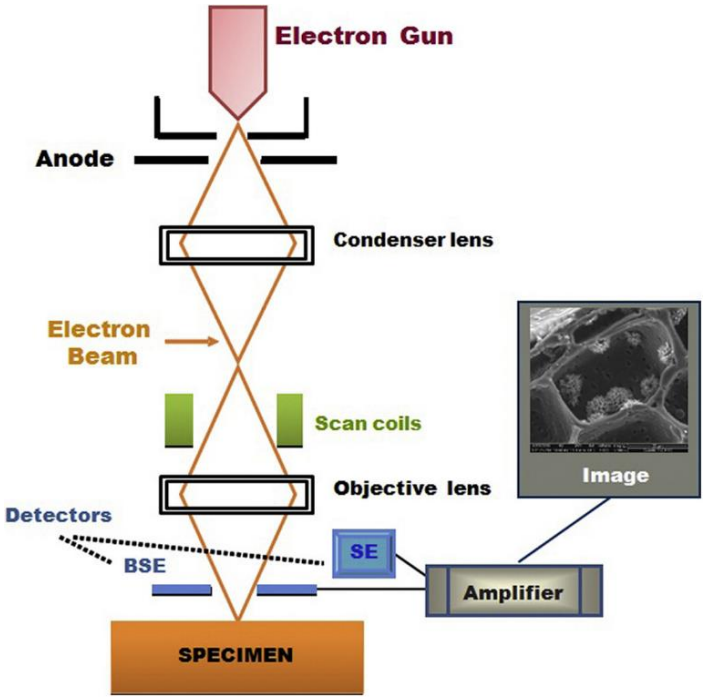


FIGURE IV.2.2 – *Description schématique du fonctionnement d'un MEB (Kwiecińska, 2019)*

Les premiers MET ont été fabriqués vers la fin des années 1940 et son principe repose sur un faisceau d'électrons traversant un échantillon de très faible épaisseur. La figure IV.2.3 illustre les principaux éléments composant ce matériel, dont l'aspect technique est semblable au MEB. Deux modes de visualisation sont possibles, le mode image permettant d'observer l'échantillon par transparence, où les zones sombres correspondent à une diffraction du faisceau d'électrons incident, et le mode diffraction permettant d'identifier la présence de composés cristallisés en fonction de la direction et l'intensité de la diffraction induite.

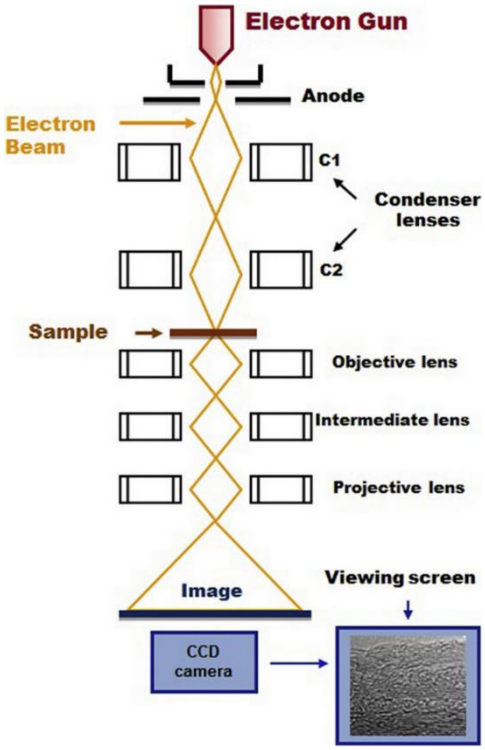


FIGURE IV.2.3 – *Description schématique du fonctionnement d'un MET (Kwiecińska, 2019)*

Afin d'obtenir une analyse qualitative et quantitative des éléments chimiques présents dans la matière en proche surface de l'échantillon, les MEB et les MET peuvent être couplés à un spectromètre à rayons X. La sonde EDX (Energy Dispersive X-ray) et la sonde WDX (Wavelength Dispersive X-ray) permettent d'analyser les photons produits par fluorescence de rayons X en fonction d'une caractérisation par énergie ou par longueur d'onde de ceux-ci. Pour rappel, l'énergie d'un photon E est directement liée à la fréquence de son onde électromagnétique ν par la relation de Planck-Einstein :

$$E = h \, . \nu \tag{IV.2.1}$$

où h correspond à la constante de Planck. L'analyse dispersive en longueur d'onde reste plus précise et permet notamment d'identifier la présence d'éléments sous la forme de trace dans la matière, c'est-à-dire une fraction massique inférieure à 1%, mais ce type de sonde reste rare en raison de son coût élevé. Les MET peuvent également fournir des informations complémentaires à travers la diffractométrie des rayons X (DRX). Cette technique d'analyse permet d'identifier et de quantifier les matériaux cristallins, ainsi que leur forme cristallographique, grâce à l'arrangement des différents atomes présents dans l'échantillon.

IV.2.2 Granulométrie des particules

Les produits de combustion solides issus de la flamme métallique ont été collectés directement dans l'écoulement des gaz brûlés avec une sonde en acier inoxydable. Lorsque l'essai de combustion est dans sa phase exploitable, celle-ci est insérée dans le panache tant que la richesse de la flamme Al /air reste comprise entre 0,9 et 1,1. Une fois en position, la sonde se situe à 90 mm au-dessus de la sortie du brûleur, soit à une distance d'environ 50 mm par rapport au sommet de la flamme métallique. La température au point de collecte a été évaluée via un thermocouple chemisé et vaut approximativement 1600 K, soit une température inférieure au point de fusion de l'alumine. La figure IV.2.4 présente plusieurs photos prises lors de la récupération de ces produits de combustion solides.

FIGURE IV.2.4 – *Photos des produits de combustion collectés par la sonde de prélèvement*

Durant l'essai, les produits de combustion solides se déposent progressivement sur la sonde pour former un bloc dur blanchâtre, soit une couleur caractéristique de l'oxyde d'aluminium. Celui-ci s'avère extrêmement friable et cassant sous une légère contrainte externe, indiquant peu d'adhésion entre les particules collectées. La figure IV.2.5 présente l'aspect macroscopique de ces petits morceaux, constitués exclusivement de produits de combustion agglomérés, via une visualisation au MEB basée sur les électrons secondaires.

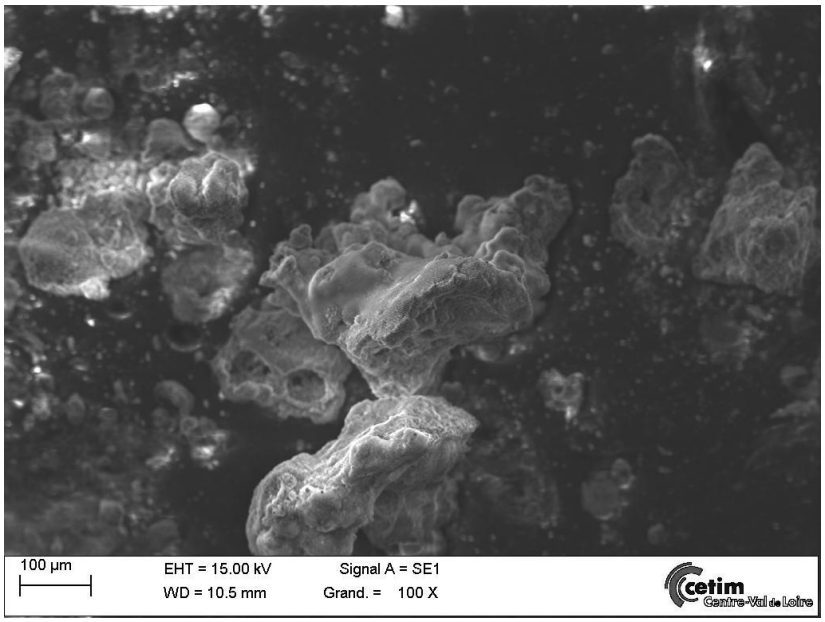


FIGURE IV.2.5 – *Vue générale des produits de combustion solides obtenue par MEB*

Afin d'obtenir une visualisation correctement au MEB, les produits de combustion solides ont été placés sur un scotch conducteur en carbone permettant une mise à la masse de l'échantillon pour évacuer l'excédent d'électrons à la surface de celui-ci. Contrairement à des composés isolants, les particules étudiées sont suffisamment conductrices pour s'abstenir d'une métallisation de l'échantillon. La figure IV.2.6 présente un agrandissement de la surface du petit morceau observable au centre de l'image précédente, dont la taille est d'environ 200 µm, via une visualisation au MEB basée sur les électrons secondaires. Les produits de combustion solides générés par la flamme Al / air sont alors essentiellement composés de particules nanométriques. Quelques sphères micrométriques sont visibles et, à la vue de leur faible nombre, celles-ci pourraient correspondre aux résidus d'alumine générés par les plus grosses particules métalliques initiales. En effet, au-delà de toutes réactions chimiques, une particule d'aluminium sphérique possédant un diamètre de 30 µm et une couche d'oxyde passive comprise entre 2 nm et 4 nm à sa surface induit un volume d'alumine équivalant à une sphère dont le diamètre oscillerait entre 2,2 µm et 2,8 µm. La visualisation des produits de combustion solides au MEB semble indiquer un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion des espèces gazeuse à l'échelle particulaire et les observations associées sont cohérentes avec les valeurs de la température de flamme estimées dans la section précédente.

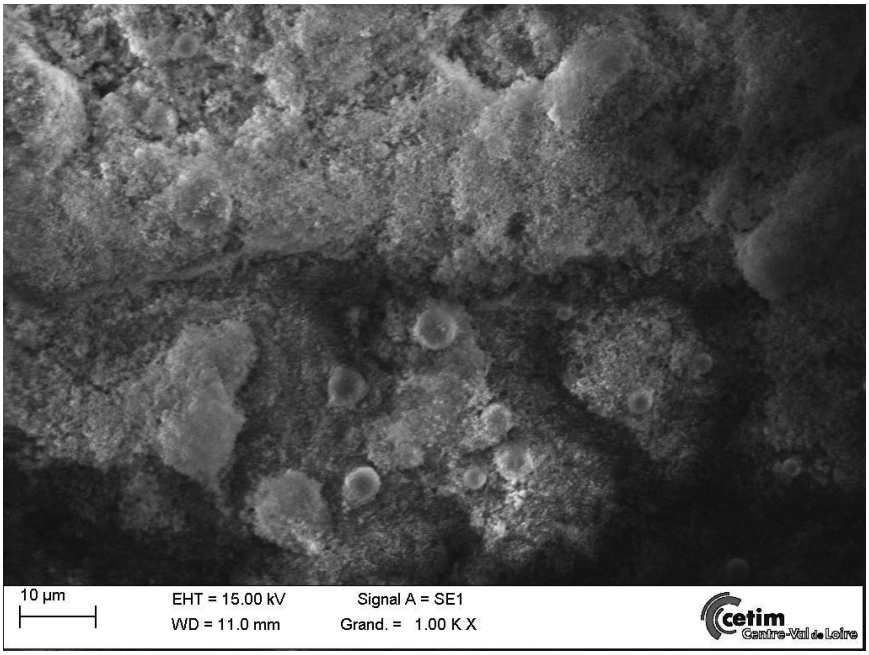


FIGURE IV.2.6 – *Vue détaillée des produits de combustion solides obtenue par MEB*

La figure IV.2.7 présente une vue détaillée des particules micrométriques observables dans les produits de combustion solides via une visualisation au MEB basée sur les électrons secondaires. L'image MEB de gauche dévoile une particule micrométrique typique possédant un diamètre de 5,4 µm. Celle-ci est positionnée au-dessus d'un ensemble de particules nanométriques agglomérées permettant d'illustrer le rapport de taille existant entre ces deux types de particules. La parfaite sphéricité de cette particule micrométrique indique que son point de fusion a été atteint avant de subir un refroidissement. Plus rarement, des particules inattendues possédant des formes hexagonales ou cubiques ont également été observées dans les produits de combustion collectés. L'image MEB de droite dévoile un exemple de plusieurs cubes micrométriques agglomérés dont les arêtes mesurent environ 1 µm.

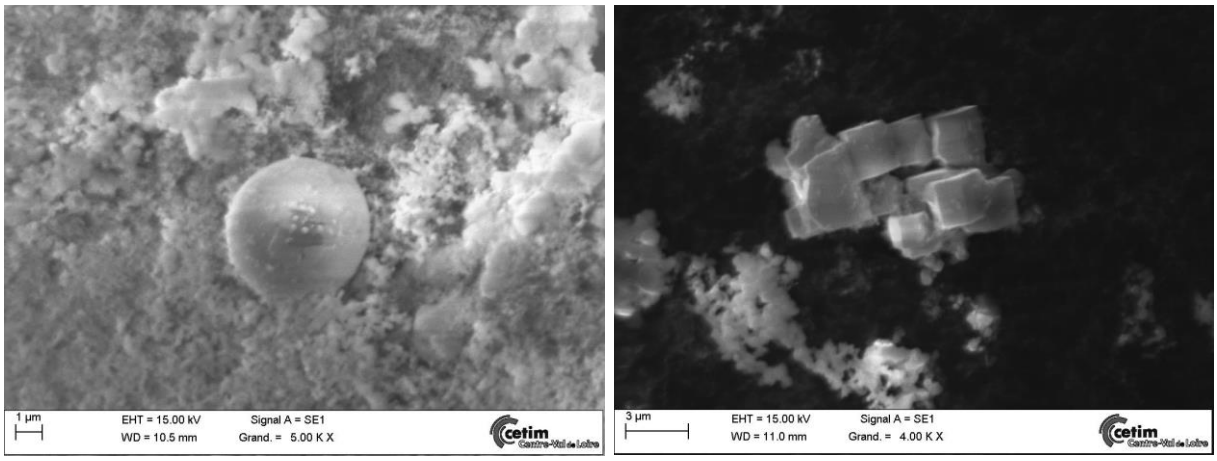


FIGURE IV.2.7 – *Images MEB identifiant une sphère micrométrique positionnée au-dessus de particules nanométriques et une agglomération de plusieurs cubes micrométriques*

Afin d'étudier plus précisément les particules nanométriques observées au MEB, une préparation spécifique a été réalisée sur les produits de combustion collectés. Les agglomérats présentés précédemment ont été broyés à l'aide d'un mortier en agate, évitant toute contamination externe. Lors de cette opération de broyage, de l'éthanol a été ajouté afin de disperser plus facilement les particules solides. Une goutte de ce mélange a ensuite été déposée sur une grille en cuivre recouverte d'une membrane en carbone amorphe trouée. Après avoir retiré l'excédent de matière avec un papier, l'échantillon a subi un séchage à l'air libre permettant à l'éthanol résiduel de s'évaporer. La figure IV.2.8 présente une vue générale de ces produits de combustion solides nanométriques via une visualisation au MET réalisée avec le mode image en champ clair. Ainsi, les trous dans la membrane correspondent aux zones blanches, le carbone amorphe est identifiable en gris très clair et les particules étudiées sont grises ou noires selon la diffraction subie par le faisceau d'électrons primaires incident.

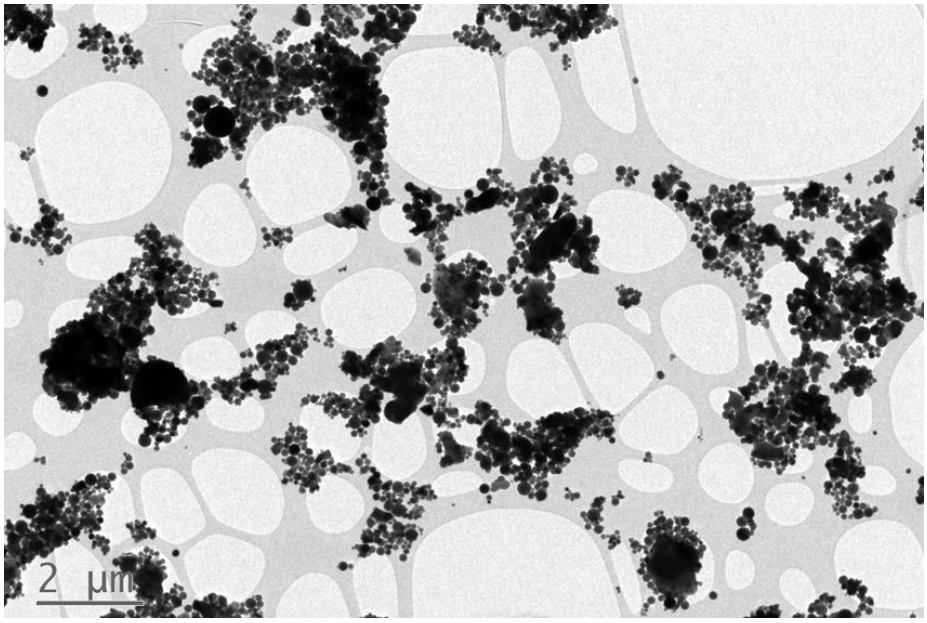


FIGURE IV.2.8 – *Vue générale des produits de combustion solides nanométriques, dispersés sur une membrane en carbone amorphe trouée, obtenue par une visualisation au MET*

La figure IV.2.9 présente une vue détaillée de ces produits de combustion solides nanométriques via une visualisation au MET réalisée avec le mode image en champ clair. En l'absence de particules fissurées, cassées ou déformées localement, ces images valident la méthodologie appliquée lors de la préparation de l'échantillon. Les produits de combustion visualisés sont principalement constitués de sphères cristallines, sans liaison forte entre elles ou zone de fusion commune. Quelques-unes de ces particules se facettent et tendent vers une forme hexagonale, rappelant les observations faites à l'échelle micrométrique sur la figure IV.2.7. Des formes particulières sont également observées, faisant penser à des « infondus ».

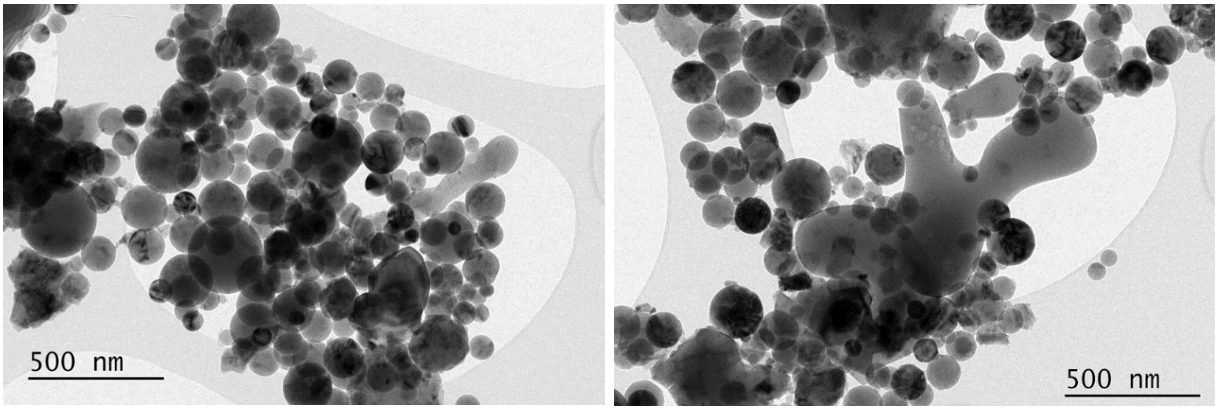


FIGURE IV.2.9 – *Vues détaillées des produits de combustion solides nanométriques obtenues par une visualisation au MET réalisée avec le mode image en champ clair*

Une analyse granulométrique des produits de combustion nanométriques a pu être réalisée par le CEMTHI sur l'ensemble de l'échantillon visualisé au MET. La figure IV.2.10 présente la répartition en taille de ces particules solides obtenue suivant le modèle d'une loi normale. Le diamètre moyen en nombre de ces produits de combustion nanométriques est alors estimé à 110 nm et la dispersion associée se traduit par un écart type d'environ 50 nm.

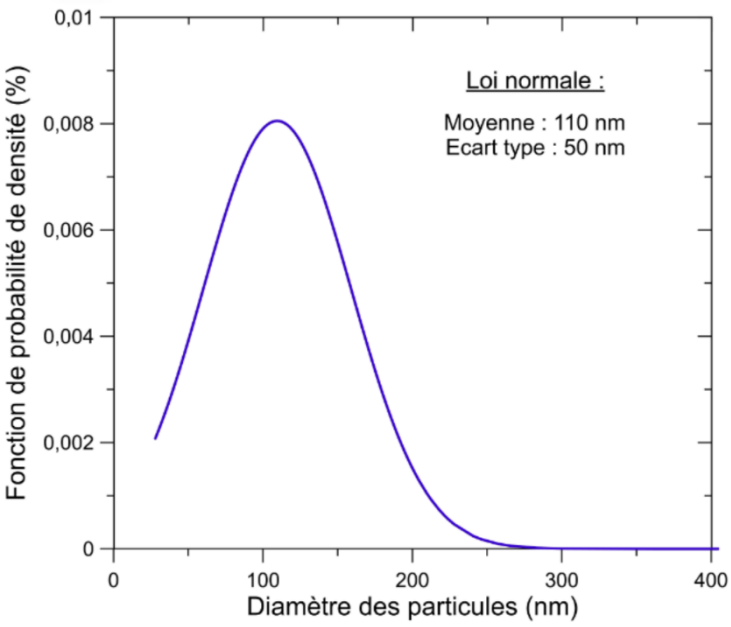


FIGURE IV.2.10 – *Répartition en taille des produits de combustion solides nanométriques*

IV.2.3 Composition chimique des particules

L'analyse des éléments chimiques présents à la surface des particules micrométriques a été réalisée via un spectromètre à rayons X utilisant une sonde EDX couplée au MEB. La figure IV.2.11 présente le spectre en dispersion d'énergie obtenu lors de l'analyse de la particule sphérique visible au centre de l'image de gauche sur la figure IV.2.7. Celle-ci possède environ 48% d'oxygène, 45,6% d'aluminium et 6,4% d'azote en termes de masse, équivalant à la formule chimique globale $Al_2O_{3,55}N_{0,54}$. L'espèce majoritaire semble alors être de l'Al_2O_3. La détection non négligeable d'azote indique aussi la présence d'oxynitrure d'aluminium.

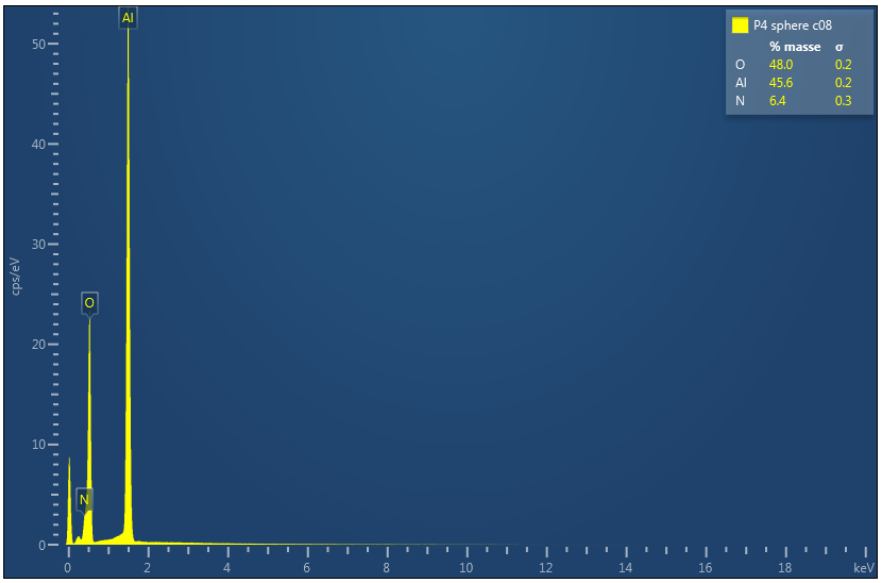


FIGURE IV.2.11 – *Analyse chimique de la sphère micrométrique présente au centre de l'image de gauche sur la figure IV.2.7 obtenue à travers la sonde EDX du MEB*

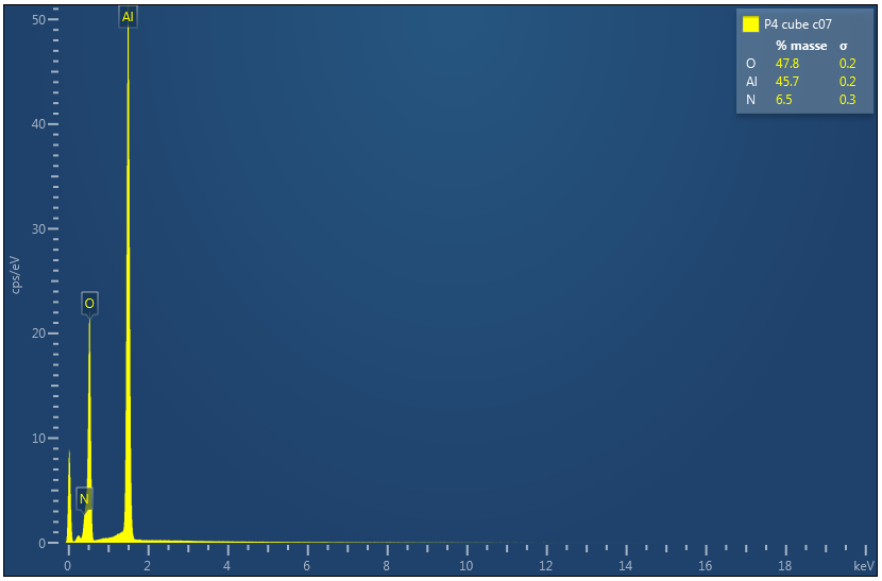


FIGURE IV.2.12 – *Analyse chimique d'un des cubes micrométriques présents au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.7 obtenue à travers la sonde EDX du MEB*

La figure IV.2.12 présente le spectre en dispersion d'énergie obtenu lors de l'analyse d'un des cubes micrométriques visibles au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.7. Celui-ci possède environ 47,8% d'oxygène, 45,7% d'aluminium et 6,5% d'azote en termes de masse, équivalant à la formule chimique globale $Al_2O_{3,53}N_{0,55}$. La composition chimique estimée à la surface des particules micrométriques est similaire entre les cubes et les sphères, ne pouvant donc pas expliquer directement l'écart de forme observé. En revanche, une vitesse de refroidissement différente durant la phase de solidification d'une matière cristalline pourrait expliquer ce phénomène, où un refroidissement lent permettrait aux molécules de s'arranger entre elles afin d'aboutir à des formes plus complexes possédant des arêtes vives.

La pénétration du faisceau d'électrons dans la matière, et par conséquent l'épaisseur sur laquelle l'analyse chimique peut être réalisée, dépend de la tension d'accélération appliquée aux électrons primaires et du numéro atomique des éléments constituant l'échantillon. Le volume d'analyse est alors d'environ 1 μm^3 pour les réglages sélectionnés sur le MEB et la nature de l'échantillon étudié, soit un volume nettement inférieur à celui des plus grosses particules micrométriques observées. Afin de s'assurer des éléments chimiques présents au cœur de ces particules, un échantillon a été spécifiquement préparé et étudié au MEB. Ainsi, les produits de combustion solides ont été broyés, compactés et noyés dans une résine d'enrobage thermoplastique transparente. L'échantillon a ensuite été poli jusqu'à atteindre une surface lisse, générant une coupe des plus grosses particules micrométriques. La figure IV.2.13 présente un agrandissement de la surface de cet échantillon à travers une visualisation au MEB. L'image de gauche provient des électrons secondaires collectés et montre une absence générale de relief, indiquant un tronçonnage réussi pour les particules micrométriques. Sur cette image, deux trous sont également visibles suite à l'arrachement d'une particule micrométrique durant l'opération de polissage. L'image de droite est issue des électrons rétrodiffusés et démontre qualitativement l'absence de différences chimiques entre l'intérieur de ces sphères et les particules nanométriques. L'hétérogénéité du compactage des produits de combustion est également visible entre la partie haute et basse de l'image.

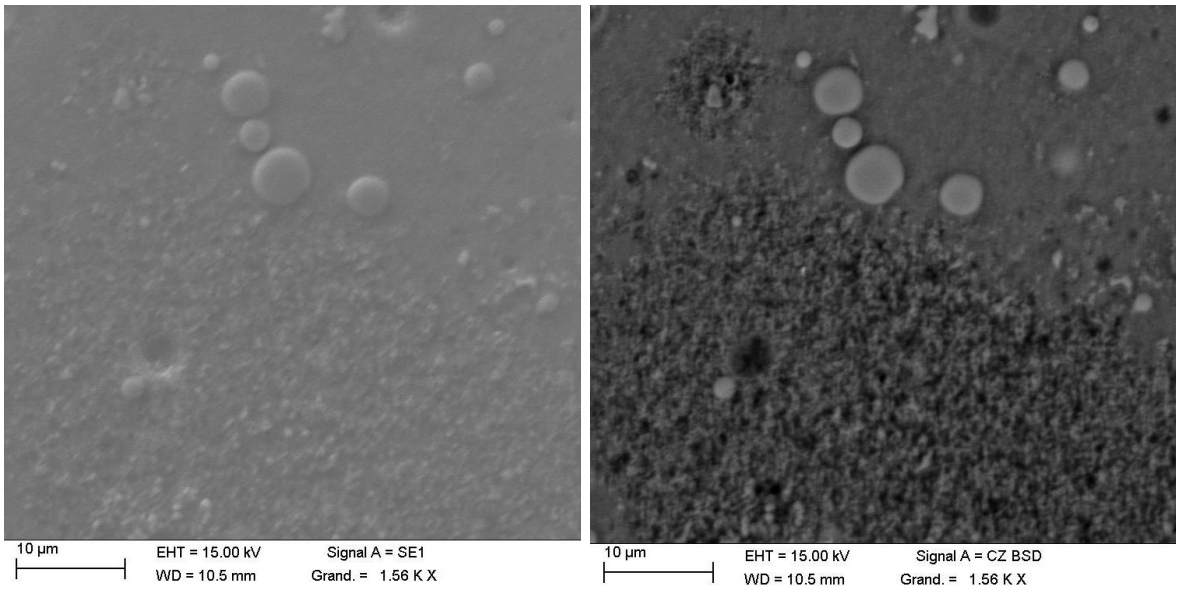


FIGURE IV.2.13 – *Comparaison des deux modes de visualisation possibles avec le MEB sur la surface de l'échantillon ayant subi un polissage*

La figure IV.2.14 présente à gauche le spectre en dispersion d'énergie obtenu lors de l'analyse de la plus grosse sphère micrométrique visible au centre des images sur la figure IV.2.13. L'analyse brute indique 41,8% d'oxygène, 55,9% d'aluminium et 2,2% de carbone en termes de masse, équivalant à la formule chimique globale $Al_2O_{2,52}$ au niveau de la particule puisque la détection du carbone provient de la résine d'enrobage. La figure présente à droite le spectre en dispersion d'énergie obtenu lors de l'analyse des particules nanométriques peu concentrées visibles en partie basse des images sur la figure IV.2.13. L'analyse brute indique 35,4% d'oxygène, 47,6% d'aluminium et 17,0% de carbone en termes de masse, équivalant à la formule chimique globale $Al_2O_{2,51}$ au niveau des particules. Ces deux compositions chimiques sont donc similaires et correspondent à de l'alumine sans la présence d'azote.

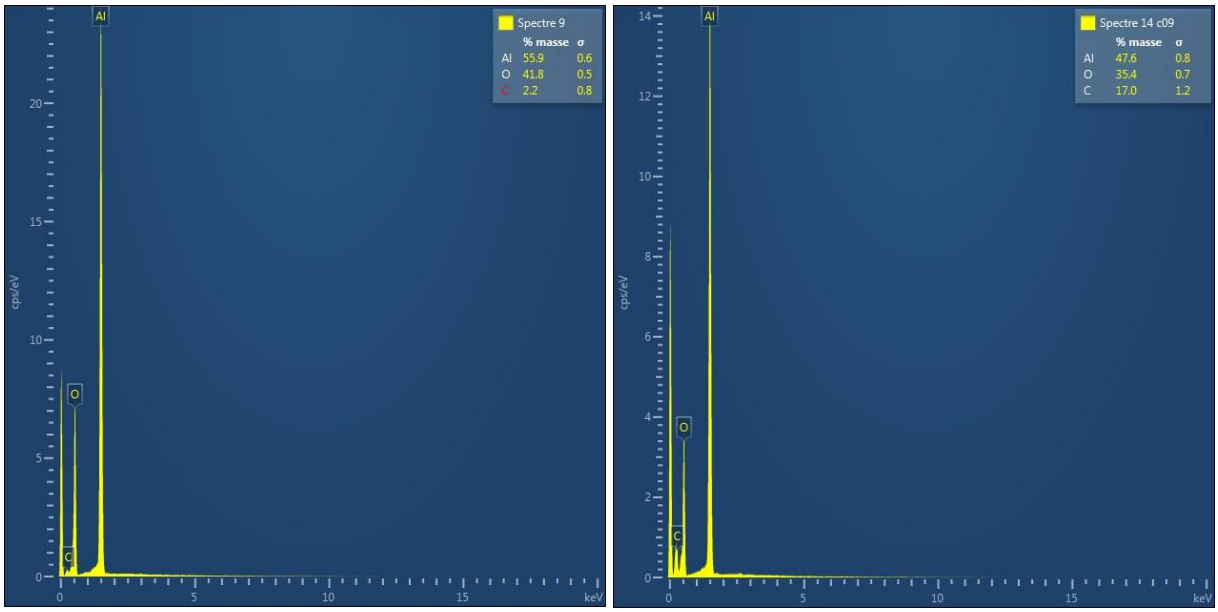


FIGURE IV.2.14 – *Analyse chimique, obtenue à travers la sonde EDX du MEB, de la particule micrométrique tronçonnée présente au centre des images et des particules nanométriques faiblement concentrées présentes en partie basse des images de la figure IV.2.13*

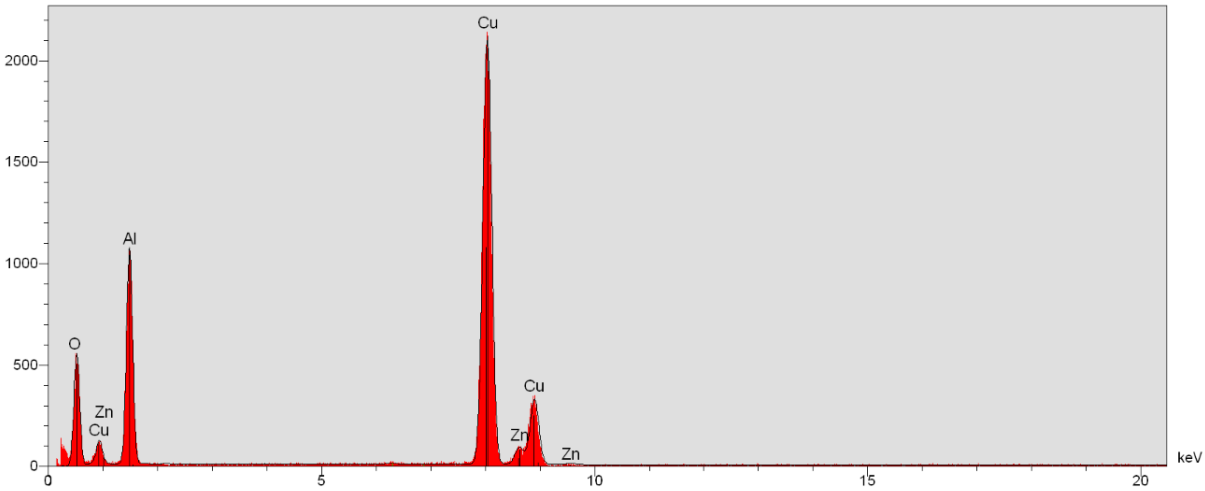


FIGURE IV.2.15 – *Analyse chimique de la particule nanométrique non sphérique présente au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.9 obtenue à travers la sonde EDX du MET*

Une analyse des éléments chimiques présents dans les produits de combustion solides nanométriques a également été réalisée via un spectromètre à rayons X utilisant une sonde EDX couplée au MET. La figure IV.2.15 présente le spectre en dispersion d'énergie obtenu lors de l'analyse de la particule non sphérique visible au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.9. Après l'élimination du cuivre et du zinc provenant du support de l'échantillon, celle-ci possède environ 55,5% d'oxygène et 44,5% d'aluminium en termes de masse, équivalant à la formule chimique globale $Al_2O_{4,21}$. En revanche, l'oxygène correspond à un élément léger et sa quantification par spectrométrie à rayon X reste approximative. Lors de l'étude de l'échantillon au MET, 5 autres analyses ont été réalisées sur des particules non sphériques et la formule chimique globale associée varie entre $Al_2O_{3,50}$ et $Al_2O_{5,23}$. Concernant les produits de combustion sphériques et facettés visibles sur les images MET de la figure IV.2.9, au minimum 9 analyses ont été effectuées sur différentes particules et la formule chimique globale associée oscille entre $Al_2O_{4,20}$ et $Al_2O_{4,90}$. Les compositions chimiques sont donc similaires quelle que soit la forme de la particule et les produits de combustion solides nanométriques correspondent à de l'alumine sans la présence d'oxynitrure d'aluminium.

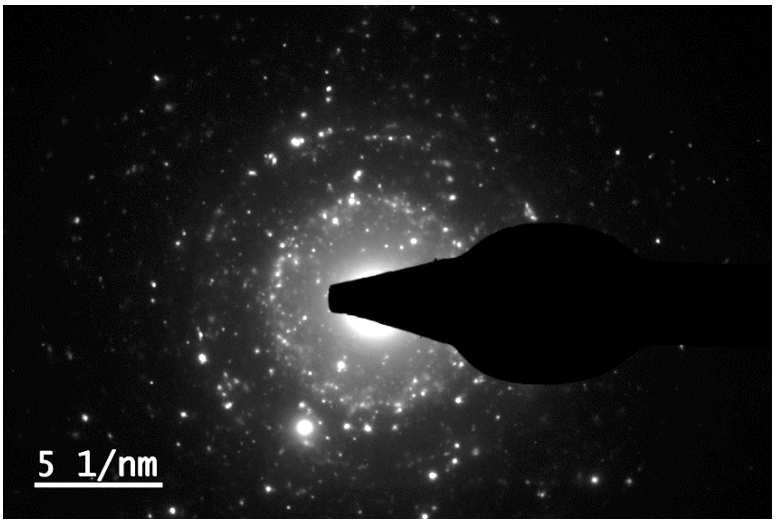


FIGURE IV.2.16 – *Cliché de diffraction des produits de combustion solides nanométriques présentés sur la figure IV.2.8 obtenu au MET*

Afin de maximiser les informations sur les produits de combustion nanométriques, le comportement ondulatoire des électrons primaires a été étudié en recueillant les différents faisceaux diffractés dans le plan focal. La figure IV.2.16 présente un cliché de diffraction des particules nanométriques visibles sur la figure IV.2.8. En cohérence avec les visualisations obtenues par le mode image en champ clair du MET, ce cliché montre un grand nombre de tâches de diffraction signifiant une matière très cristalline. La diffractométrie des rayons X peut alors être utilisée afin d'identifier et de quantifier cette matière grâce à l'arrangement de ces atomes. La figure IV.2.17 présente le diagramme de diffraction associé à l'analyse des espèces cristallines existantes dans l'échantillon. Plusieurs phases cristallines ont été identifiées via la DRX, où l'alumine sous sa forme alpha constitue la principale espèce présente dans l'échantillon. Une faible quantité d'alumine sous sa forme delta et quelques traces résiduelles d'aluminium sont également détectées dans l'échantillon. Cette analyse cristallographie confirme ainsi les différentes analyses chimiques réalisées par spectrométrie à rayon X à travers le MEB ou le MET.

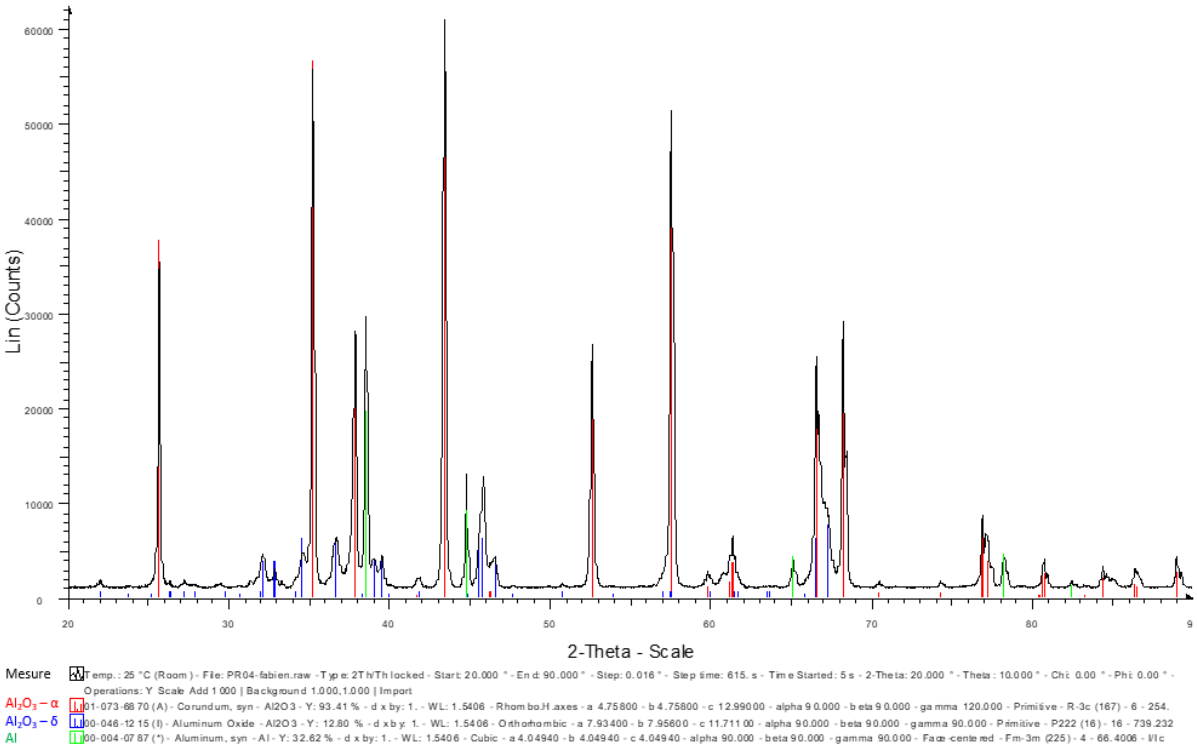


FIGURE IV.2.17 – *Diagramme de diffraction fournissant l'analyse des espèces cristallines présentes dans les produits de combustion nanométriques visibles sur la Figure IV.2.8*

IV.2.4 Bilan

Grâce à une sonde de prélèvement, les produits de combustion solides ont été collectés directement dans le panache des gaz brûlés pour une richesse Al /air variant entre 0,9 et 1,1. Les particules se sont alors déposées progressivement sur la sonde pour former un bloc dur blanchâtre, où celles-ci possèdent très peu d'adhésion entre elles. La visualisation des produits de combustion au MEB et au MET indique que ceux-ci sont essentiellement composés de particules nanométriques sphériques dont le diamètre moyen est estimé à environ 110 nm. La granulométrie de ces produits de combustion confirme ainsi l'hypothèse d'une oxydation contrôlée par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire malgré la taille des particules métalliques initiales, où une combustion de groupe influencerait les échanges thermiques au niveau d'une seule particule. Quelques sphères micrométriques sont également visibles dans les produits de combustion et celles-ci semblent provenir de la couche d'alumine passive présente initialement à la surface des plus grosses particules d'aluminium. Les différentes analyses chimiques indiquent que les produits de combustion, micrométriques ou nanométriques, sont principalement constitués d'alumine. Contrairement aux données bibliographiques présentées pour d'autres dispositifs expérimentaux, un rendement de combustion de 1 peut être retenu pour un brûleur de type Bunsen en champ libre. Des atomes d'azote ont également été détectés à la surface des sphères micrométriques et semblent indiquer la présence d'oxynitrure d'aluminium en surface de celles-ci. Ce phénomène pourrait être expliqué par une rétrodiffusion du NO réagissant ensuite à la surface de la goutte métallique lors de son oxydation. La figure IV.2.18 résume schématiquement les phénomènes en jeu lors de la combustion d'une particule métallique dans la zone de réaction.

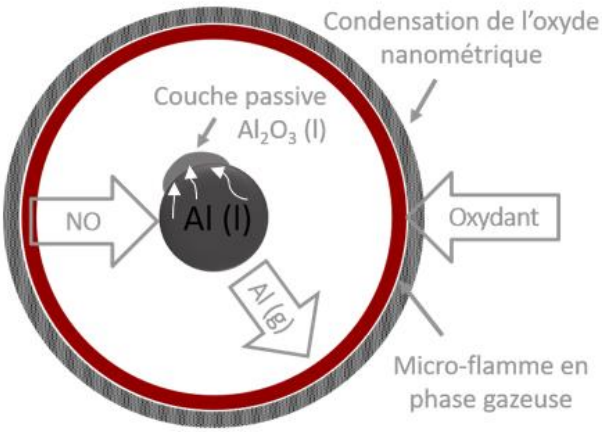


FIGURE IV.2.18 – *Schématisation des phénomènes en jeu à l'échelle particulaire lors de la combustion en groupe de particules d'aluminium possédant un diamètre moyen de 7,5 µm*

IV.3 Rayonnement de l'ensemble flamme / panache

Afin d'étudier les possibilités de valorisation de l'énergie libérée par une flamme Al / air, et donc la viabilité du vecteur énergétique basé sur des poudres d'aluminium, il est indispensable de comprendre macroscopiquement la répartition énergétique entre la partie convectée dans les effluents gazeux, la partie rayonnée vers l'extérieur et l'énergie restante dans la phase condensée. Ainsi, un autre objectif de la thèse consiste alors à estimer cette part d'énergie rayonnée vers l'environnement extérieur.

Avec une température de flamme multiphasique supérieure à 3000 K dans nos conditions expérimentales, les flammes Al / air sont très lumineuses. Le rayonnement de celles-ci est alors composé d'une émission provenant de transitions rotationnelles-vibrationnelles des niveaux électroniques des espèces gazeuses présentes et d'une émission de fond continu due au rayonnement thermique de la phase condensée (voir la sous-section IV.1.3). Néanmoins, la présence de cette phase condensée rend l'estimation de la part rayonnée uniquement issue de la flamme extrêmement compliquée. En effet, celle-ci est à la fois présente dans la région de préchauffage des gaz frais, la zone de réaction et les gaz brûlés, mais avec des propriétés complètement différentes à chaque localité. En plus des variations de température impactant l'émissivité des particules, leurs tailles / compositions chimiques / concentrations changent selon ces différentes zones. Ainsi, pour limiter les hypothèses et approximations, c'est le rayonnement vers l'extérieur de l'ensemble flamme / panache qui sera analysé ici.

IV.3.1 Techniques de mesure expérimentales

En ce qui concerne les flammes gazeuses prémélangées traditionnelles, générées sur un brûleur en champ libre, plusieurs méthodes ont déjà été développées pour évaluer la fraction d'énergie rayonnée vers l'environnement. Une approche indirecte simple consiste à obtenir une cartographie des températures à une hauteur donnée dans le panache afin de déterminer une température moyenne $\bar{T}_{panache}$. Ainsi, en connaissant la composition

chimique des gaz brûlés et en estimant le débit d'air extérieur entraîné à cette hauteur, la puissance convectée par le panache $\dot{Q}_{conv\,panache}$ peut alors être estimée avec la relation :

$$\dot{Q}_{conv\,panache} = \dot{m}_{panache} \cdot C_{p\,panache} \cdot (\overline{T}_{panache} - T_{amb}) \qquad \text{(IV.3.1)}$$

où $\dot{m}_{panache}$ est l'addition du débit massique des gaz brûlés avec celui de l'air entraîné, $C_{p\,panache}$ est la chaleur massique à pression constante moyenne dans le panache et T_{amb} est la température de l'environnement extérieur. Pour ce type de flamme gazeuse, la puissance totale libérée lors de la réaction chimique $\dot{Q}_{react}$ est égale à la somme de la puissance convectée par le panache et de celle rayonnée par l'ensemble flamme / panache $\dot{Q}_{ray}$. La fraction d'énergie rayonnée vers extérieur $\mathcal{X}_{ray}$ peut donc s'écrire selon l'équation (IV.3.3).

$$\dot{Q}_{react} = \dot{Q}_{conv\,panache} + \dot{Q}_{ray} \qquad \text{(IV.3.2)}$$

$$\mathcal{X}_{ray} = 1 - \frac{\dot{Q}_{conv\,panache}}{\dot{Q}_{react}} \qquad \text{(IV.3.3)}$$

Néanmoins, cette méthode fournit plutôt un ordre de grandeur pour $\mathcal{X}_{ray}$ en raison des approximations faites dans l'estimation du débit d'air entraîné et de l'hétérogénéité de la température dans la section transversale du panache pour une hauteur donnée. D'autres techniques de mesure plus précises ont été mises en place, notamment pour les flammes turbulentes à jet, où le flux radiatif est directement déterminé à l'aide d'un capteur. La figure IV.3.1 illustre la manière de mesurer le flux radiatif émis vers l'extérieur à partir d'un seul point de mesure, où un capteur de flux à grand angle de vue serait placé à mi-hauteur de la flamme (Sivathanu, 1993).

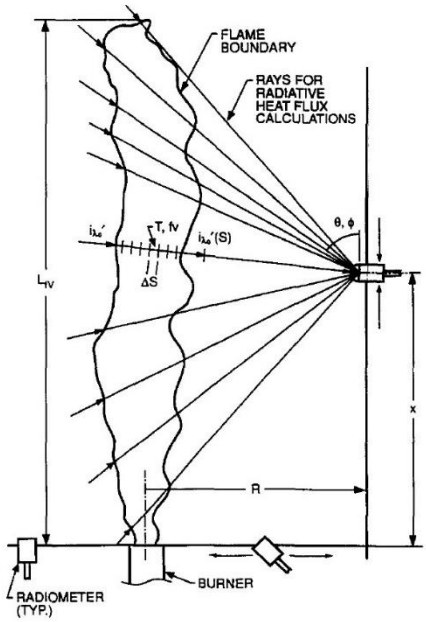


FIGURE IV.3.1 – *Technique de mesure du flux radiatif à partir d'un seul point de mesure (Sivathanu, 1993)*

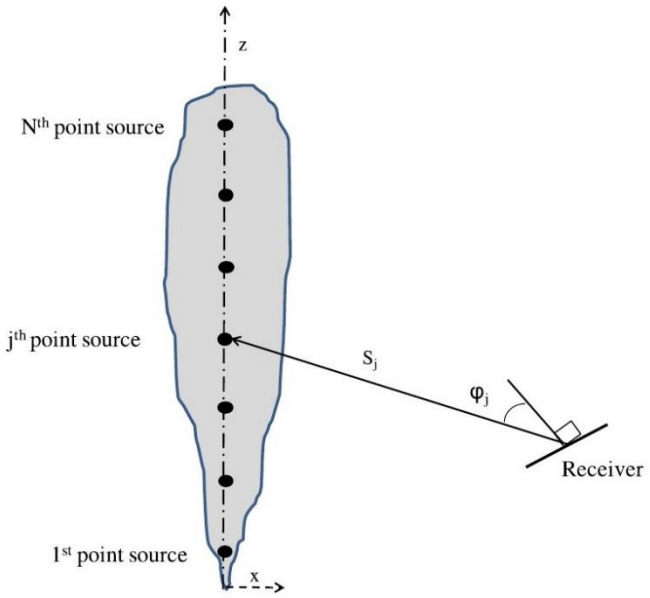


FIGURE IV.3.2 – *Technique de mesure du flux radiatif avec le modèle multipoints à partir de la rotation du capteur (Hankinson, 2012)*

De cette façon, la puissance radiative générée par la flamme s'obtient alors avec l'équation suivante :

$$\dot{Q}_{ray\ flamme} = \varphi_{ray} \cdot S_{capteur} \cdot F_{flamme \rightarrow capteur} \qquad \text{(IV.3.4)}$$

où φ_{ray} est la densité de flux radiatif reçue par le capteur, $S_{capteur}$ est la surface utile de l'appareil de mesure et $F_{flamme \rightarrow capteur}$ est le facteur de forme obtenu en considérant des formes géométriques simples pour la flamme ou en l'estimant numériquement avec la méthode de Monte-Carlo par exemple. Une autre technique expérimentale, schématisée sur la figure IV.3.2, consiste à reproduire le modèle de sources multipoints pondérées dans lequel le rayonnement provient d'un certain nombre de sources ponctuelles réparties le long de l'axe de la flamme. Pour une position spatiale donnée, la technique repose sur le balayage angulaire axial de la flamme par un capteur radiatif à faible angle de vue. Le rayonnement incident total reçu est alors déterminé comme étant la somme vectorielle du rayonnement individuel de chaque point. Cependant, au-delà de la faible hauteur des flammes Al / air générées sur le brûleur, ces deux méthodologies ne sont pas appropriées aux flammes métalliques en raison d'une phase condensée émettant différemment en dehors de la zone de réaction et pouvant produire une possible absorption du rayonnement au sein des gaz frais et du panache.

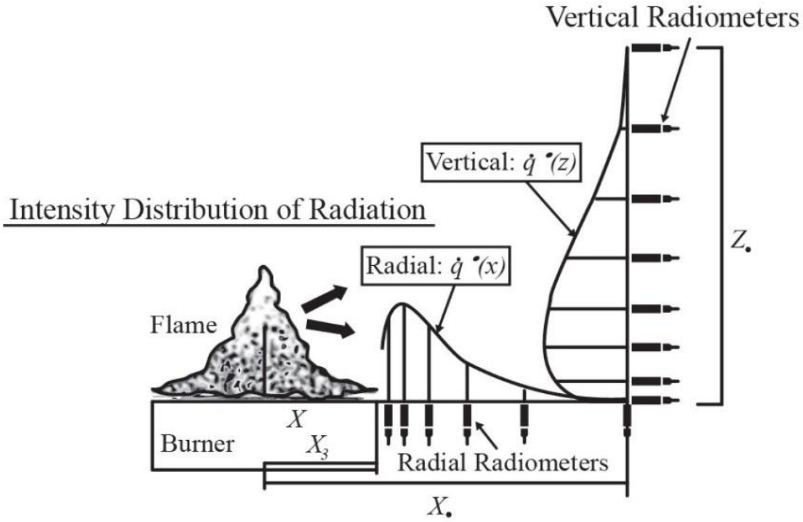


FIGURE IV.3.3 – *Technique de mesure de la puissance radiative à partir des profils de la densité de flux rayonné (Bergman, 2013)*

Afin d'obtenir la part rayonnée vers l'extérieur de façon précise, une dernière méthode peut être utilisée pour des flammes axisymétriques. Illustrée sur la figure IV.3.3, elle consiste notamment en un balayage horizontal et vertical d'un capteur radiatif à grand angle de vue dans le but d'acquérir le profil axial et radial de la densité de flux rayonné. Défini par l'équation (IV.3.5), le rayonnement total émis vers l'environnement est alors directement connu par l'intégration de ces profils sur une surface fermée, soit un cylindre imaginaire dans notre cas. La première partie de l'équation intègre le profil radial de la puissance surfacique rayonnée sur la base du cylindre imaginaire alors que la deuxième partie intègre le profil axial à travers la surface latérale de celui-ci. Néanmoins, il est supposé que le flux rayonné traversant la surface supérieure du cylindre fictif est négligeable dès lors que le capteur, déplacé axialement vers le haut, ne relève plus une valeur significative pour la densité de flux rayonné.

$$\dot{Q}_{ray} = 2\pi \int_0^{X_0} x \,.\, \varphi_{ray}(x) \,.\, dx + 2\pi \,.\, X_0 \int_0^{Z_0} \varphi_{ray}(z) \,.\, dz \qquad \text{(IV.3.5)}$$

L'intérêt de cette technique expérimentale réside donc dans le fait d'englober virtuellement la flamme et son panache, de façon à obtenir un facteur de forme proche de l'unité. Ainsi, toute la puissance rayonnée vers l'extérieur traverse obligatoirement cette enveloppe imaginaire et le flux de chaleur mesuré ne dépend pas d'hypothèses sur les régions émettrices de rayonnement, les concentrations locales en particules, l'absorption partielle par la phase condensée ou encore les valeurs d'émissivité des particules. Par conséquent, c'est cette méthode expérimentale qui a été retenue et adaptée pour déterminer la puissance rayonnée par l'ensemble flamme Al-air / panache vers l'environnement.

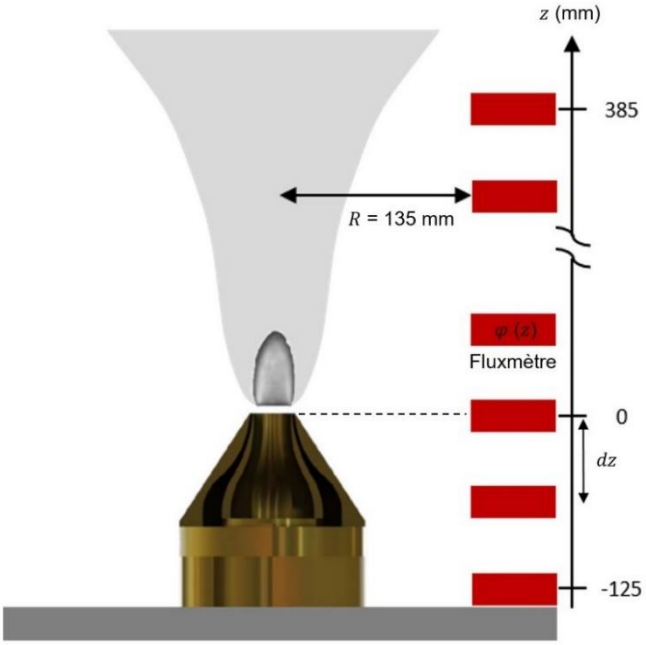


FIGURE IV.3.4 – *Technique expérimentale utilisée pour obtenir le profil axial de la densité de flux radiatif*

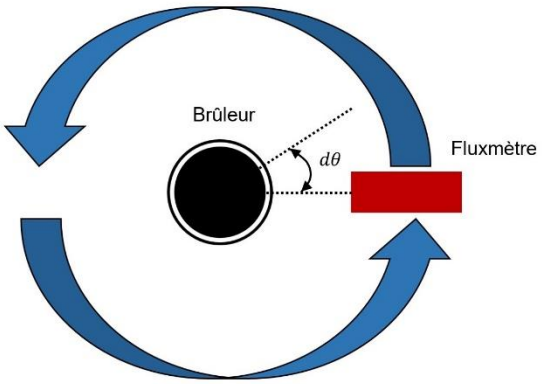


FIGURE IV.3.5 – *Schématisation de l'intégration du profil axial de la densité de flux rayonné*

Sur le brûleur expérimental, la technique de mesure mise en œuvre pour estimer les pertes thermiques par rayonnement de l'ensemble flamme / panache vers l'extérieur est alors détaillée sur la figure IV.3.4. Celle-ci reste basée sur l'obtention d'un cylindre imaginaire. La méthode consiste uniquement en l'acquisition du profil axial de la densité de flux radiatif réalisée par le balayage vertical d'un fluxmètre à une distance constante de 135 mm entre la surface utile du capteur et l'axe du brûleur. Étant limitée par la platine de maintien du brûleur et le tube d'aspiration des gaz brûlés, la position verticale du centre du fluxmètre oscille respectivement entre -125 mm et 385 mm, où la hauteur zéro correspond à la base de la sortie du brûleur. Sur ce dispositif expérimental, le balayage horizontal peut être alors éliminé puisque l'ensemble de la base du cylindre fictif est privé de rayonnement à cause de la tête du brûleur. Étant en laiton et avec un état de surface d'usinage, la tête du brûleur possède une émissivité d'environ 0,03 et donc une réflectivité proche de 100% (Pooley, 2016). Ainsi, en raison de l'angle d'inclinaison de la tête du brûleur, presque l'intégralité du rayonnement traversant normalement la base du cylindre imaginaire sera réfléchi vers les côtés et donc

directement pris en compte dans le profil axial de la densité de flux radiatif. Puisque la flamme et le panache sont supposés axisymétriques, la puissance totale rayonnée vers l'environnement $\dot{Q}_{ray}$ correspond alors à l'intégration du profil axial obtenu sur la surface latérale du cylindre imaginaire, comme illustré sur la figure IV.3.5, et se traduit par l'équation :

$$\dot{Q}_{ray} = \int_0^{2\pi} \int_{Z_{min}}^{z_{max}} R \,.\, \varphi_{ray}(z) \,.\, d\theta \,.\, dz \qquad \text{(IV.3.6)}$$

où z est la position verticale du centre du fluxmètre et R correspond à la distance entre la surface utile du capteur et l'axe du brûleur.

IV.3.2 Validation de la méthodologie

Aucune étude n'ayant été trouvée dans la littérature pour décrire le rayonnement généré par des flammes Al / air prémélangées, il n'existe alors pas de points de référence pour comparer les résultats obtenus. La première étape consiste donc à valider la méthodologie de mesure grâce à la combustion d'un autre composé, dont la fraction en énergie rayonnée vers l'extérieur est déjà connue dans la littérature (flamme CH_4 / air). Cependant, le comportement du fluxmètre a été vérifié avant de procéder à cette étape de validation.

Le fluxmètre utilisé, dont le principe de fonctionnement a été décrit dans la section III.4, a été fourni avec un coefficient de sensibilité unique issu de la calibration du fournisseur. L'objectif est donc de contrôler, à une longueur d'onde donnée, la réaction de celui-ci sur une gamme de puissance similaire à celle rencontrée lors des essais avec une flamme prémélangée Al / air. Le montage utilise un laser COHERENT Verdi G20 comme source modulable de rayonnement, créant un faisceau de 2,25 mm de diamètre avec une longueur d'onde centrée à 532 nm ± 2 nm. La puissance générée est ainsi mesurée grâce à un puissance-mètre laser LM10 COHERENT raccordé à un compteur de puissance à détection automatique FM COHERENT, possédant un élément détecteur en thermopile d'un diamètre de 16 mm et mesurant des puissances entre 10 mW et 10 W pour un bruit équivalent à 0,4 mW.

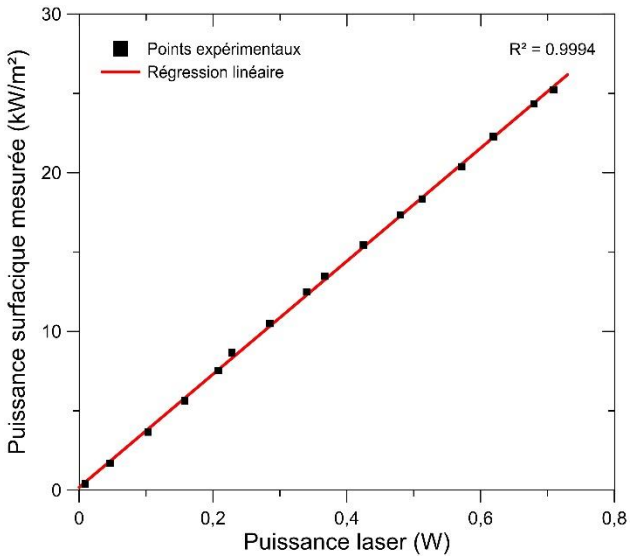


FIGURE IV.3.6 – *Comportement du fluxmètre pour une sollicitation laser à 532 nm*

Pour chaque essai, après la mesure de la puissance du faisceau laser par le puissance-mètre, celui-ci impacte le centre de la zone noire du fluxmètre pour fournir une puissance surfacique rayonnée moyenne. Les valeurs relevées avec le fluxmètre pour ces différentes puissances laser sont représentées sur la figure IV.3.6, après soustraction du bruit de fond. Les données obtenues démontrent alors un comportement linéaire du capteur en fonction de la puissance rayonnée par la source radiative. Le coefficient de sensibilité donné constant par le fabricant est donc confirmé, et les valeurs mesurées ne demandent pas de corrections.

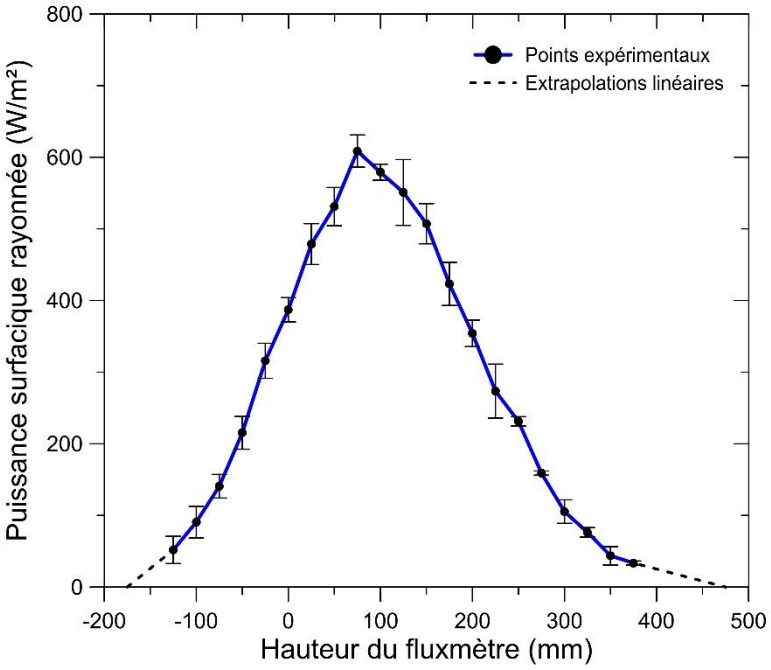


FIGURE IV.3.7 – *Profil axial de la densité de flux rayonnée par une flamme de diffusion CH_4 / air*

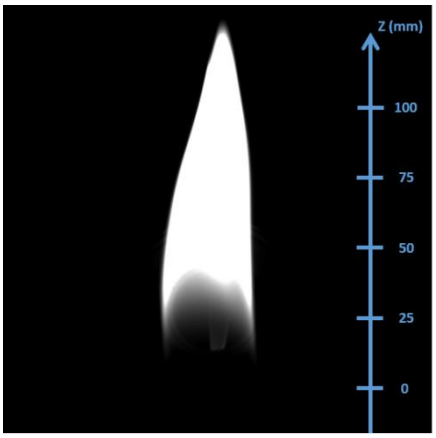


FIGURE IV.3.8 – *Image d'une flamme de diffusion CH_4 / air générée sur le brûleur*

Étant déjà installé sur le dispositif expérimental, le méthane est choisi comme combustible pour valider la technique de mesure permettant l'estimation de la puissance rayonnée par la flamme et son panache vers l'environnement. Peu de résultats existent sur la part rayonnée d'une flamme laminaire CH_4 / air prémélangée. Néanmoins, en raison d'une utilisation plus répandue dans le secteur industriel, plusieurs travaux ont été réalisés pour des flammes de diffusion CH_4 / air en champ libre. C'est donc ce type de flamme qui a été générée sur le brûleur pour confirmer la méthodologie de mesure en validant la proportion d'énergie rayonnée vers l'extérieur. La figure IV.3.8 présente une image par visualisation directe d'une flamme de diffusion stabilisée à la sortie du brûleur, sans flamme pilote et pour un débit en CH_4 de 1,20 l/min. Il en résulte une flamme possédant un léger battement axial, avec une puissance chimique potentielle $\dot{Q}_{tot}$ de 671 W et un sommet à environ 38 mm de la base du brûleur. Cependant, la flamme est très peu perceptible avec la caméra AVT MAKO G-419B POE (caractéristiques données dans la section III.4). La partie lumineuse présente sur l'image correspond principalement au rayonnement thermique des particules de suie chaudes créées par l'hétérogénéité des richesses locales dans la zone de réaction.

Le profil axial de la densité de flux radiatif reçu par rayonnement à une distance de 135 mm de l'axe du brûleur a été obtenu à l'aide du fluxmètre. Celui-ci est illustré sur la figure

IV.3.7 pour la flamme de diffusion CH_4 / air précédemment décrite. Ce profil axial est constitué de 21 points expérimentaux, espacés tous les 25 mm sur la hauteur. Les données sont issues de la moyenne des valeurs mesurées sur environ 2 minutes d'essai, avec une fréquence d'acquisition du fluxmètre à 10 Hz, après la soustraction du bruit de fond. Sur ce graphique, les barres d'erreur des points expérimentaux sont alors dues à la dispersion statistique des mesures réalisées à chaque position du capteur. L'extrapolation linéaire à droite du profil axial a été choisie pour prolonger la tendance de la courbe expérimentale et atteindre une valeur nulle à 475 mm de la sortie du brûleur. Concernant la partie gauche du profil, l'extrapolation linéaire a été déterminée directement par la position de la platine de maintien du brûleur (voir la figure IV.3.4), située à une hauteur de -175 mm. Les résultats montrent ainsi que le profil axial de la densité de flux rayonné tend vers la forme obtenue pour une source ponctuelle (voir dans la section III.4), où le maximum de la puissance surfacique mesurée par le fluxmètre se situe au niveau du milieu de la zone lumineuse générée par les suies. Ce type de profil provient alors directement du déplacement vertical du fluxmètre, générant à la fois une variation de l'angle entre le rayonnement incident et la normale à la surface de mesure du capteur, et une augmentation de la distance entre le terme source radiatif et le fluxmètre. Cette analyse de profil coïncide alors avec des observations déjà faites dans la littérature pour des flammes de diffusion générées sur brûleur et en champ libre (Hurley, 2015).

Après intégration du profil axial de la densité de flux radiatif suivant l'équation (IV.3.6), la puissance rayonnée par la flamme de diffusion CH_4 / air vers l'extérieur $\dot{Q}_{ray}$ est estimée à 156 W ± 11 W. La proportion d'énergie rayonnée par la flamme et son panache $\mathcal{X}_{ray}$ est alors définie par l'équation suivante :

$$\mathcal{X}_{ray} = \frac{\dot{Q}_{ray}}{\dot{Q}_{tot}} = \frac{\dot{Q}_{ray}}{\dot{m}_{comb} \cdot \Delta H_c} \qquad \text{(IV.3.7)}$$

où $\dot{m}_{comb}$ est le débit massique en combustible et ΔH_c est l'enthalpie standard de combustion. Ainsi, la part rayonnée par la flamme de diffusion CH_4 / air et son panache contenant les suies, présentée sur la figure IV.3.8, est évaluée à 19,7 % ± 0,4 %.

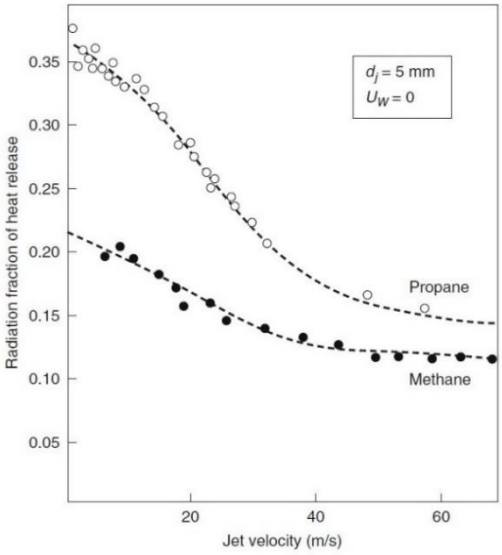


FIGURE IV.3.9 – *Effet de la vitesse d'éjection du combustible sur la fraction d'énergie rayonnée par les flammes de diffusion (Brzustowski, 1975)*

Comme illustré sur la figure IV.3.9, il a été démontré que la vitesse d'éjection du méthane à la sortie du brûleur joue un rôle dans la valeur de la part rayonnée pour ce type de flamme. Avec une vitesse d'éjection du méthane à 25 mm/s pour la flamme de diffusion CH_4 / air produite, les données bibliographiques indiquent une fraction d'énergie perdue par rayonnement entre 19 % et 23 % pour des conditions comparables [(Brzustowski, 1971), (Burgess, 1974), (Tan, 1967), (Kent, 1964), (McCaffrey, 1981)]. Les données issues de la littérature sont en accord avec la valeur déterminée expérimentalement. La méthodologie présentée précédemment semble donc cohérente pour estimer la puissance rayonnée par l'ensemble flamme / panache, et par conséquent la part d'énergie rayonnée vers l'extérieur.

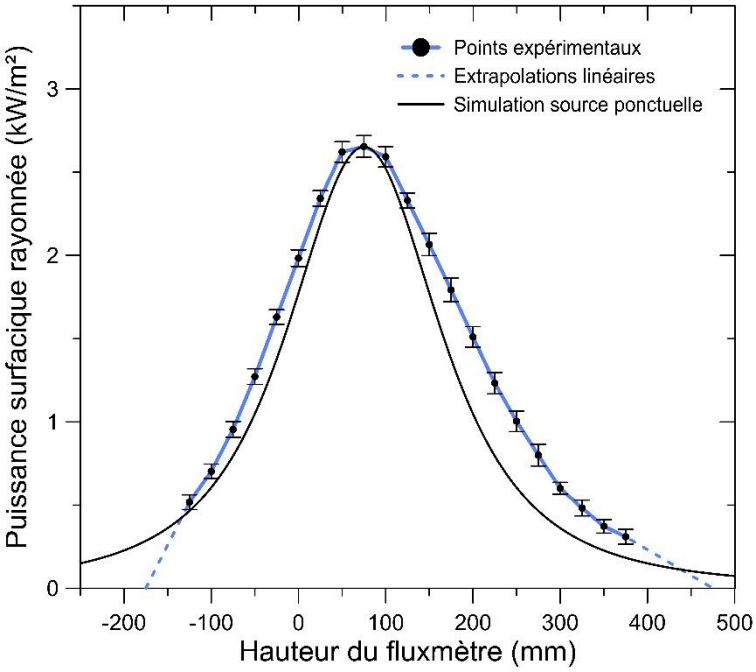


FIGURE IV.3.10 – *Profil axial de la densité de flux rayonnée par une flamme prémélangée CH_4 / air*

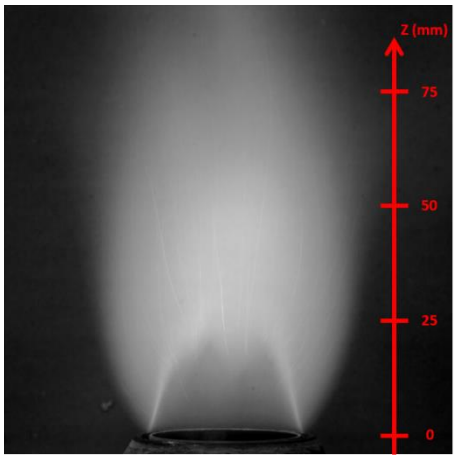


FIGURE IV.3.11 – *Image d'une flamme prémélangée CH_4 / air générée sur le brûleur*

Cependant, puisque le rayonnement issu de la combustion de poudres métalliques est encore globalement méconnu, l'étude des flammes Al / air produites sur le brûleur ne peut pas être comparée directement. Ainsi, c'est une flamme prémélangée de méthane qui servira de référence avec des propriétés géométriques similaires aux flammes d'aluminium étudiées. La figure IV.3.11 présente ainsi une image obtenue par visualisation directe de l'émission d'une flamme prémélangée CH_4 / air, stabilisée à la sortie du brûleur sans flamme pilote et pour des débits en CH_4 de 5,63 l/min et en air de 53,78 l/min. Pour contrôler finement les paramètres au niveau de la flamme de méthane, l'aspiration par le cône de venturi est bouchée sur cet essai et le débit total en air est identique au débit d'air injecté. Il en résulte alors une flamme prémélangée établie dans des conditions stœchiométriques, d'une puissance chimique potentielle de 3,15 kW et d'une hauteur moyenne d'environ 32 mm. Pour ce type de configuration, la flamme est légèrement discernable avec la caméra AVT MAKO G-419B POE grâce aux émissions radiatives supplémentaires des différents intermédiaires de réaction excités présents dans la zone de réaction comme OH^*, CH^* ou C_2^*(Kojima, 2000). Parmi les produits de combustion, seul le composé CO_2 émet un rayonnement en partie perceptible par la caméra. En effet, le reste du potentiel radiatif du dioxyde de carbone et

celui de la vapeur d'eau possèdent des pics d'intensité importants dans les gammes de longueurs d'onde suivantes : 1,8-2,1 µm / 2,5-3 µm / 4-5 µm (Faeth, 1989). Ainsi, en raison du rayonnement moléculaire du CO_2, le panache des gaz brûlés est aussi observable sur l'image.

Avec une procédure identique à la démarche utilisée pour la flamme de diffusion, le profil axial de la puissance surfacique rayonnée par la flamme prémélangée CH_4 / air précédemment décrite est présenté sur la figure IV.3.10. La forme de ce profil axial est alors comparée à la géométrie attendue pour le balayage vertical d'une source lumineuse ponctuelle avec un fluxmètre possédant un angle de vue de 180° (détails dans la section III.4). D'une manière générale, cette tendance théorique proposée est en cohérence avec les mesures expérimentales réalisées. Ainsi, la valeur maximale du profil simulé et de la puissance surfacique radiative mesurée par le fluxmètre coïncident à une hauteur d'environ 75 mm, soit largement au-dessus du sommet de la flamme. La position de ce maximum indique donc que le panache des gaz brûlés émet considérablement plus de rayonnement que la flamme sur l'ensemble du spectre perceptible par le capteur, c'est-à-dire entre 0,3 et 20 µm. L'émission radiative de la zone de réaction semble alors noyée dans l'émission moléculaire des produits de combustion gazeux. Cette information est aussi confirmée par les images obtenues en visualisation directe, où le contraste entre la zone de réaction et le panache des gaz brûlés est peu marqué dans le domaine spectral visible par la caméra, c'est-à-dire entre 400 et 1000 nm.

Dans le cas de la flamme prémélangée CH_4 / air, et contrairement à l'observation expérimentale faite dans la section III.4, les valeurs de la densité de flux radiatif mesurées avec le fluxmètre sont toutes supérieures au profil simulé. Ce constat révèle alors que l'ensemble du rayonnement généré par la flamme et son panache ne peut pas être considéré comme provenant d'une source ponctuelle, élargissant ainsi le profil axial de la densité de flux radiatif par rapport à la courbe simulée. Sur la partie gauche du graphique, aucun changement dans la tendance des mesures expérimentales n'est constaté, même lorsque le fluxmètre se situe au niveau de la flamme. Cette observation s'avère confirmer le fait que la contribution de la zone de réaction n'est pas majoritaire dans le rayonnement total émis. De plus, le fluxmètre semble percevoir l'intégralité du rayonnement généré vers la partie basse, sous la hauteur de 0 mm, indiquant alors que la géométrie de la tête du brûleur n'influence pas significativement les mesures de la densité de flux radiatif dans cette zone. Cependant, au-delà d'une hauteur de 75 mm, il est constaté un écart plus important entre les données expérimentales et le profil simulé. Ce surcroît de rayonnement au regard de la partie gauche du graphique impose un profil axial de la densité de flux radiatif légèrement dissymétrique par rapport au maximum du profil, provenant d'une forme verticale asymétrique induite par le panache des gaz brûlés.

IV.3.3 Mesures issues d'une flamme Al / air

Après la validation de la méthodologie pour estimer la puissance rayonnée par l'ensemble flamme / panache et le choix d'utiliser une flamme prémélangée CH_4 / air comme référence de comparaison, voici l'étude du rayonnement fourni par la combustion de particules d'aluminium dans l'air à pression atmosphérique. Pour cette analyse, une flamme prémélangée aluminium / air est générée sur le brûleur pour un débit total en air d'environ 49,40 l/min et une richesse en aluminium oscillant entre 0,7 et 1,15. Comme présentée dans la section III.1, une flamme pilote annulaire prémélangée CH_4 / air est présente pour aider à

la stabilisation de la flamme métallique. Réglée sur un mélange stœchiométrique, cette flamme pilote possède une puissance chimique potentielle de 178 W pour un débit en air de 3,06 l/min et un débit en CH_4 de 0,32 l/min.

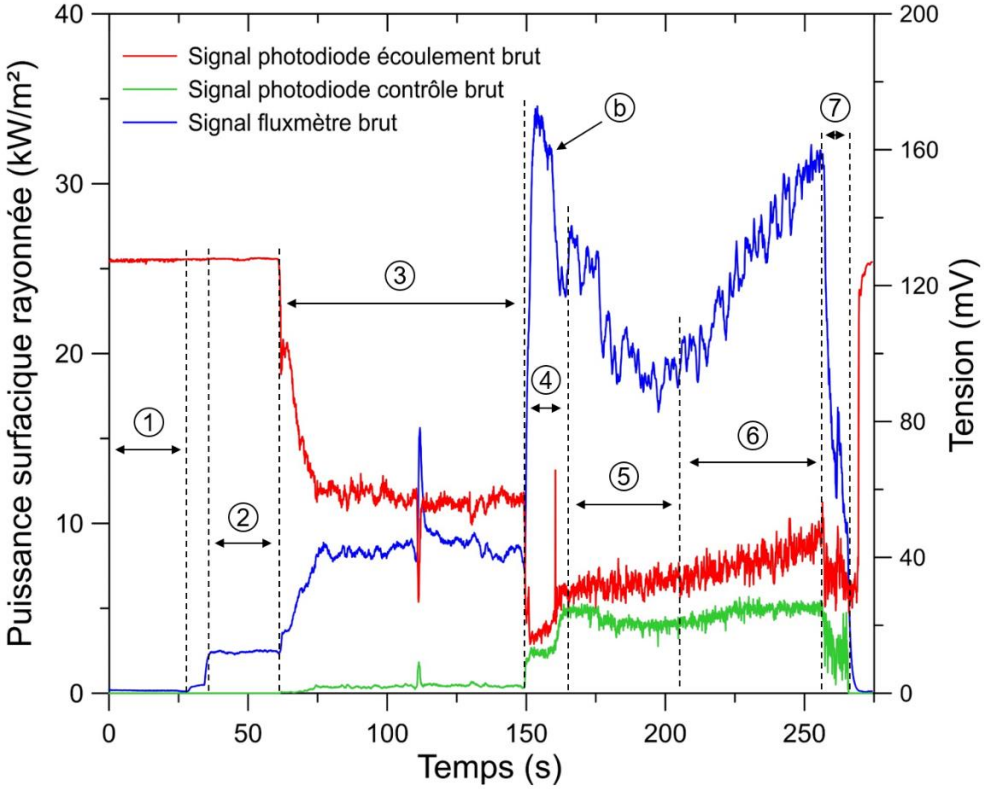


FIGURE IV.3.12 – *Déroulement complet d'un essai avec le fluxmètre positionné à 100 mm au-dessus de la sortie de brûleur*

L'intégralité des résultats présentés dans cette sous-section est ainsi issue d'essais réalisés dans des conditions opératoires identiques. La figure IV.3.12 illustre le déroulement complet d'un essai et l'acquisition des signaux bruts nécessaires à l'étude du rayonnement généré par la flamme aluminium / air et son panache. Le fluxmètre se situe à une position de 100 mm au-dessus de la sortie du brûleur dans l'exemple proposé. Avec le protocole expérimental instauré, on peut généralement décomposer un essai en 7 parties. Celles-ci sont ainsi visibles sur la figure IV.3.12 et définies de la manière suivante :

1) Mise en place de la flamme pilote CH_4 / air sur une période minimale de 30 secondes afin de pouvoir supprimer par la suite la contribution du bruit de fond et l'effet de la flamme pilote sur les mesures de la puissance surfacique rayonnée.

2) Établissement d'une flamme prémélangée méthane / air dans des conditions stœchiométriques au niveau de l'écoulement principal, avec un débit en air injecté de 32,71 l/min et un débit en CH_4 de 5,63 l/min, afin de pouvoir réaliser un allumage homogène de la flamme métallique.

3) Mise en fonctionnement du système de dispersion permettant l'injection de particules d'aluminium dans l'écoulement principal. Néanmoins, l'encrassement aux parois

internes du brûleur limite la quantité d'aluminium traversant le front de flamme (voir la sous-section IV.1.1). Il en résulte plutôt une flamme de prémélange CH_4 / air avec un ensemencement en particule d'aluminium, où l'ajout de ces particules augmente la densité de flux radiatif perçue par le fluxmètre. Ce surplus de rayonnement, principalement généré par le rayonnement thermique de la phase condensée (voir la sous-section IV.1.3), possède une contribution d'émission sous 1100 nm de longueur d'onde et est ainsi également perceptible sur le signal de la photodiode de contrôle.

4) Dès lors que la couche de poudre d'aluminium recouvre complètement les parois internes du brûleur, la concentration en aluminium à la sortie du dispositif augmente et est alors suffisante pour obtenir une authentique flamme hybride Al / CH_4 / air. Le fluxmètre reçoit alors une puissance surfacique rayonnée 15 fois supérieure à celle mesurée dans la partie 2 et environ 4 fois plus importante par rapport à la flamme de méthane ensemencée. Cette hausse significative de rayonnement sur l'ensemble du spectre provient de l'augmentation de la concentration en particule d'aluminium à la sortie du brûleur, mais aussi de l'élévation de la température de flamme générant un rayonnement thermique plus important de la phase condensée avec un gain supérieur à 500 K (Julien, 2014). Ces deux phénomènes engendrent également une nette évolution du rayonnement émis entre 200 et 1100 nm, produisant alors l'importante augmentation du signal généré par la photodiode de contrôle.

   L'injection du méthane est ensuite coupée progressivement et le débit en air injecté est ramené à 30 l/min à partir du point 4.b. Le débit volumique total en gaz est alors réduit d'environ 30% dans l'écoulement principal, formant ainsi une flamme métallique plus petite que la flamme hybride. Le signal de la photodiode de contrôle augmente alors de manière notoire grâce à une flamme Al / air plus compacte située à la même hauteur que la photodiode, une nouvelle élévation de la température de flamme de plus de 400 K et une émission radiative de l'$AlO_{(g)}$ plus grande dans le système spectral bleu-vert (Lomba, 2016). Malgré le rayonnement supplémentaire de la flamme, le changement géométrique de celle-ci se traduit néanmoins par la diminution de la densité de flux rayonnée impactant le fluxmètre à une hauteur de 100 mm au-dessus de la sortie du brûleur. De manière identique au signal de la photodiode de contrôle, l'effet inverse est constaté dans le cas où le fluxmètre se situe à 22 mm de hauteur, c'est-à-dire une augmentation de la densité de flux radiatif est constatée pour le passage de la flamme hybride à la flamme Al / air.

5) Une fois que la flamme métallique est stabilisée dans les conditions expérimentales souhaitées et pour un débit total en air de 49,40 l/min, les données sont exploitables jusqu'à atteindre la fin du réservoir de poudre d'aluminium, soit une période d'environ 60 secondes.

6) Dès que le réservoir du disperseur est vide, la flamme prémélangée Al / air continue alors à exister grâce à l'alimentation en aluminium issue de l'arrachement des particules présentes sur les parois internes du brûleur. Les signaux enregistrés ne sont donc plus utilisables pour déterminer la richesse du mélange en raison d'une modification du débit volumique en air aspiré qui n'a pas été caractérisée.

7) À la fin de l'essai, le débit volumique total en air est alors largement augmenté par rapport à la partie 5, induisant une plus grande vitesse du mélange à la sortie du brûleur. Sous l'effet de la compétition entre la vitesse de propagation de flamme et la vitesse de l'écoulement prémélangé, la flamme aluminium / air s'allonge, puis se déstructure complètement, jusqu'à finir par être soufflée. Les figures IV.3.13 et IV.3.14 illustrent la fin de vie de la flamme métallique avec respectivement cette phase d'allongement et sa déstructuration avant soufflage. Ces deux images sont issues de la visualisation directe avec la caméra basse fréquence et le filtre $AlO_{(g)}$ centré à 486 nm, pour un temps d'intégration de 10 µs. L'image de gauche présente ainsi une flamme Al / air globalement conique, possédant une hauteur d'environ 56 mm, pour une stabilisation à 6 mm au-dessus de la sortie du brûleur. L'image de droite montre, quant à elle, la combustion métallique Al / air à une hauteur de stabilisation de 60 mm au-dessus de la sortie du brûleur.

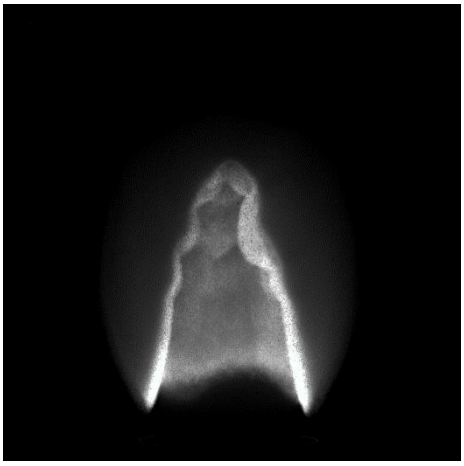


FIGURE IV.3.13 – *Image de l'allongement de la flamme Al / air en fin de vie*

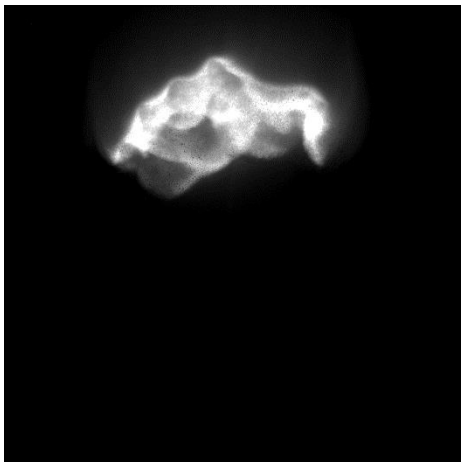


FIGURE IV.3.14 – *Image de la déstructuration de la flamme Al / air avant soufflage*

Ainsi, seules les informations mesurées pendant la 5ème partie d'un essai sont utilisées comme données expérimentales brutes et tous ces signaux sont ensuite traités avec un filtre analogique passe-bas à 1 Hz (voir la sous-section IV.1.1). Cependant, grâce aux relevés effectués durant la première partie de chaque essai, l'influence de la flamme pilote et celle du bruit numérique sont supprimées des mesures de la densité de flux radiatif perçue par le fluxmètre. Les données de la photodiode de contrôle permettent également de soustraire l'effet du rayonnement de la flamme et du panache sur le signal de la photodiode mesurant l'atténuation laser provoquée par l'écoulement prémélangé. La richesse du mélange à la sortie du brûleur est alors déterminée par la loi de Beer-Lambert, suivant la procédure décrite dans la sous-section IV.1.1. La figure IV.3.15 présente ainsi les résultats expérimentaux obtenus après filtrage des signaux pour une position verticale du fluxmètre à 100 mm au-dessus de la sortie du brûleur, c'est-à-dire pour l'essai illustré sur la figure IV.3.12. D'une manière générale, la richesse du mélange à la sortie du dispositif décroît légèrement durant cette phase exploitable, comme lors des essais sans combustion, mais avec de légères fluctuations. Sur ce graphique, il est également constaté une évolution visiblement similaire entre la densité de flux radiatif reçue par le fluxmètre et la richesse en aluminium. Les variations de la puissance surfacique rayonnée semblent alors être directement liées aux modifications de la richesse de l'écoulement prémélangé à la sortie du brûleur.

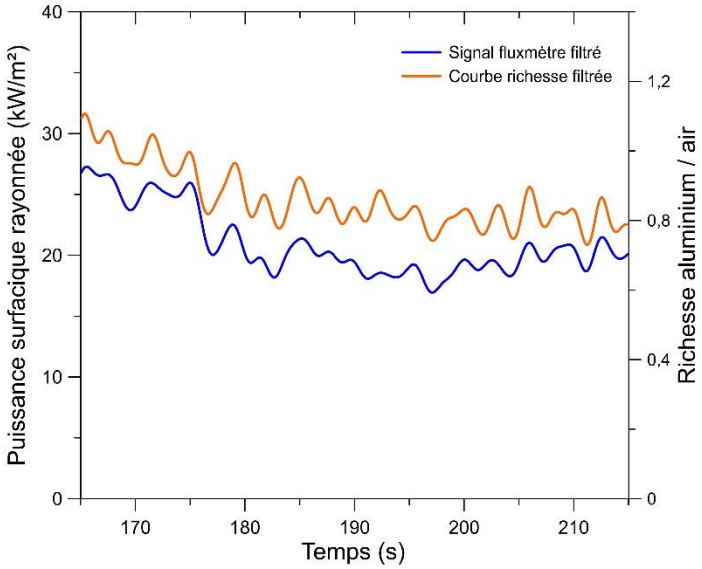


FIGURE IV.3.15 – *Exemple de données expérimentales utilisables et filtrées à 1 Hz pour un positionnement du fluxmètre à 100 mm de la sortie du brûleur*

Afin de mettre en évidence cette relation directe, la densité de flux radiatif mesurée par le fluxmètre est exprimée en fonction de la richesse obtenue par l'atténuation laser de l'écoulement. Des données de puissance surfacique rayonnée et de richesse en aluminium sont aussi collectées pour 12 autres positions axiales du capteur, selon toujours le même protocole expérimental décrit précédemment. La figure IV.3.16 présente alors la dépendance de la densité de flux radiatif en fonction de la richesse. Les valeurs expérimentales mesurées ont été représentées sur ce graphique pour 4 positions différentes du fluxmètre, respectivement à 0 mm, 150 mm, 200 mm et 300 mm au-dessus de la sortie du brûleur.

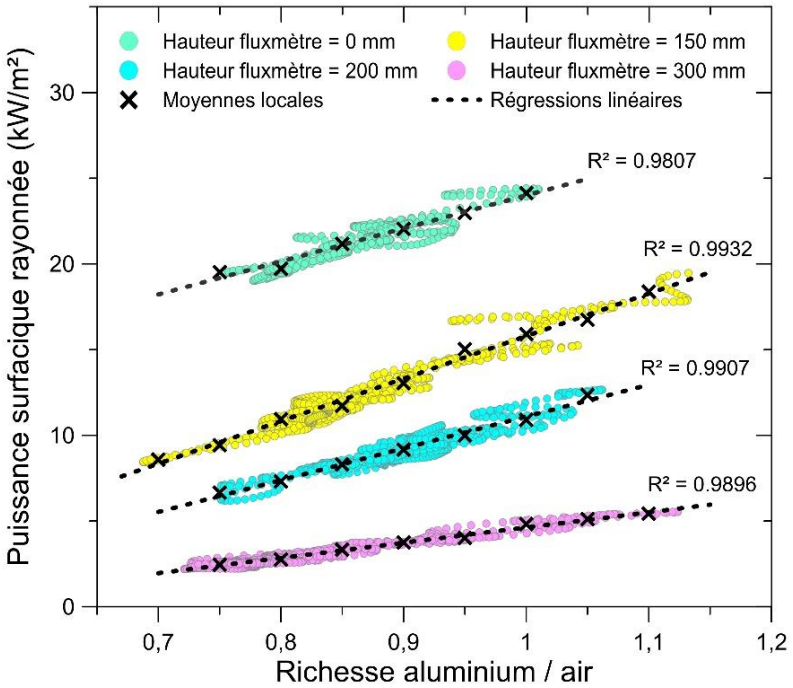


FIGURE IV.3.16 – *Évolution de la puissance surfacique rayonnée en fonction de la richesse Al / air pour différentes positions verticales du fluxmètre*

À partir des données expérimentales obtenues, des moyennes locales sont réalisées pour une richesse à ± 0,01 et serviront pour la constitution des profils axiaux de la densité de flux radiatif générés par une flamme prémélangée aluminium / air. D'un point de vue global, la valeur absolue de la puissance surfacique rayonnée peut varier énormément en fonction de la hauteur du fluxmètre. Par exemple, pour une flamme Al / air dans des conditions stœchiométriques, un rapport d'environ 7,6 est noté entre la valeur mesurée par le fluxmètre pour une hauteur de 22 mm et celle relevée à 350 mm au-dessus de la sortie du brûleur (données non représentées sur la figure IV.3.16 par souci de clarté). De plus, quelle que soit la hauteur du fluxmètre, il est également constaté que les moyennes locales de la puissance surfacique rayonnée évoluent linéairement avec la richesse en particule pour des concentrations en aluminium allant de 215 g/m^3 à 315 g/m^3. La pente de cette régression linéaire est différente à chaque essai et semble donc être directement liée à la position axiale du capteur. Grâce aux différentes relations affines obtenues, la densité de flux radiatif reçue par le fluxmètre peut alors être prédite sur les 13 hauteurs étudiées pour une richesse donnée.

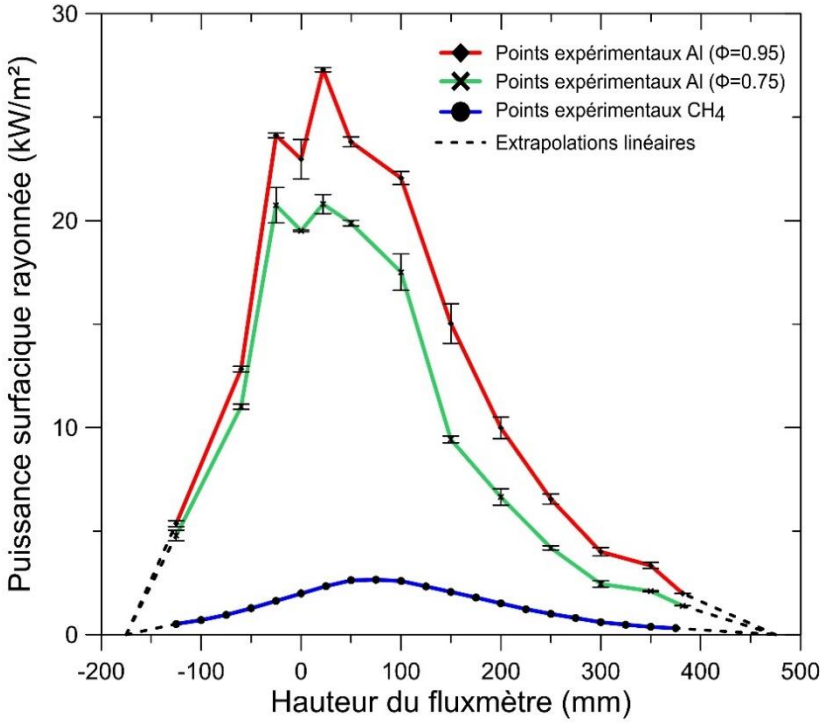


FIGURE IV.3.17 – *Profils axiaux de la densité de flux radiatif, reçue par le fluxmètre à 135 mm de l'axe du brûleur, pour la flamme Al / air et la flamme prémélangée CH_4 / air*

La figure IV.3.17 révèle ainsi les profils axiaux de la puissance surfacique rayonnée pour une flamme prémélangée aluminium / air avec une richesse de 0,75 et 0,95. Les points expérimentaux présentés sur ce graphique correspondent aux valeurs des moyennes locales estimées précédemment et les barres d'erreur sont issues de la dispersion statistique des mesures obtenues avec le fluxmètre par rapport à ces moyennes locales. Il est constaté que tous les profils axiaux relevés expérimentalement pour différentes richesses en aluminium possèdent une géométrie globalement similaire. Les valeurs à chaque position du fluxmètre évoluent alors comme les résultats présentés sur la figure IV.3.16. Par ailleurs, un pic sur le profil axial de la puissance surfacique rayonnée est toujours observé à la hauteur du fluxmètre -25 mm et pourrait s'expliquer par des réflexions sur la tête du brûleur. À titre de comparaison,

le profil axial de la densité de flux radiatif déterminé pour la flamme prémélangée CH_4 / air est aussi affiché sur ce graphique. D'un point de vue global, malgré une puissance chimique potentielle plus faible d'un facteur 1,9 à 2,4 par rapport aux flammes Al / air étudiées sur cette figure, un écart du rayonnement émis vers l'extérieur est largement constaté entre les deux combustibles. Les profils axiaux de la densité de flux radiatif semblent alors présager une grande différence dans la valeur de la proportion d'énergie rayonnée par l'ensemble flamme / panache pour une combustion prémélangée Al / air et CH_4 / air.

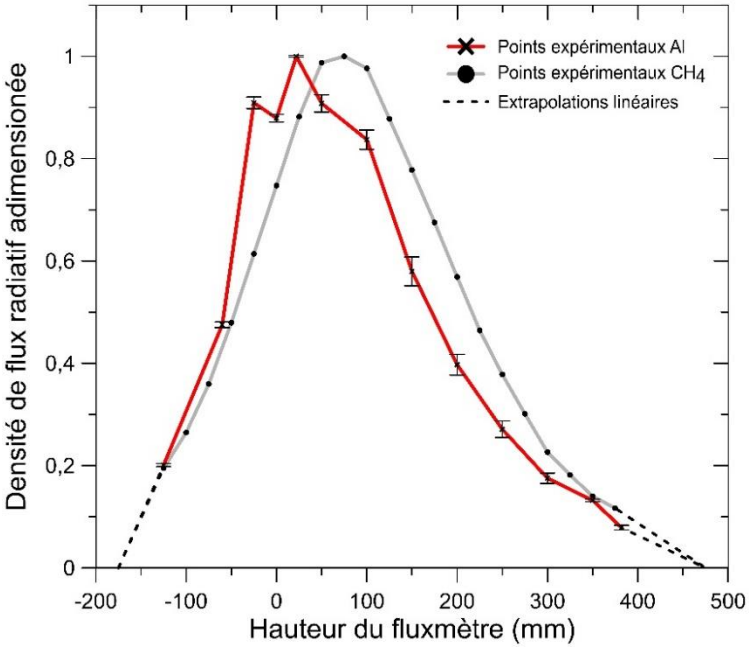


FIGURE IV.3.18 – *Comparaison des profils axiaux de la densité de flux radiatif adimensionnée pour la flamme Al / air et la flamme prémélangée CH_4 / air*

Afin de comparer plus facilement les profils axiaux obtenus pour les flammes Al / air avec celui de référence provenant de la flamme prémélangée méthane / air, les densités de flux radiatif sont adimensionnées par rapport à la valeur maximale du profil. La figure IV.3.18 présente ainsi les valeurs expérimentales adimensionnées pour une flamme aluminium / air dans des conditions stœchiométriques et le profil axial adimensionné de la flamme méthane / air présentée sur la figure IV.3.11. Globalement, les deux géométries des profils axiaux de la puissance surfacique rayonnée paraissent semblables, avec néanmoins deux différences marquées. La première divergence observable concerne la position du sommet du profil axial de la flamme Al / air. Celui-ci est décalé et se rapproche de la sortie du brûleur, provoquant finalement une déformation généralisée de l'ensemble du profil axial adimensionné par rapport à celui de la flamme méthane / air. Le maximum du profil axial de la flamme Al / air se situe alors à 22 mm au-dessus de la sortie du brûleur, c'est-à-dire globalement au milieu de la flamme métallique. Malgré des caractéristiques géométries de flamme similaires entre la combustion prémélangée méthane / air et Al / air, le décalage du sommet semble indiquer un changement dans la répartition spatiale de l'émission du rayonnement par rapport à la flamme d'hydrocarbure de référence. Comme supposé dans la section IV.1.3 et contrairement à la flamme prémélangée méthane / air, la position du maximum de la densité de flux radiatif localisée à mi-hauteur de flamme laisse présager que le rayonnement provient essentiellement de cette région, soit de la zone de réaction. Cette

supposition semble se confirmer davantage avec l'autre différence également visible au niveau des sommets des deux profils axiaux adimensionnés. La forme légèrement arrondie du sommet du profil axial de la flamme CH_4 / air semble indiquer que le phénomène émettant le plus de rayonnement est plutôt constant sur plus de 50 mm de hauteur. A contrario, le sommet du profil axial de la flamme Al / air semble présenter une singularité sur 50 mm avec un pic nettement marqué pour la valeur maximale. Cette observation pourrait aussi être expliquée par le rayonnement plus important de la flamme, créant alors un sursaut dans les mesures de la densité de flux rayonnée au niveau de la mi-hauteur de flamme.

Dans le but d'apporter une justification supplémentaire sur la position de la principale zone émettrice de rayonnement lors de la combustion Al / air, des mesures complémentaires ont été réalisées avec un tube emmanché sur le fluxmètre. Le tube est réalisé en polychlorure de vinyle avec la paroi interne recouverte d'une protection laser noir mat afin de limiter les réflexions parasites internes jusqu'au capteur de flux, alors que la paroi extérieure est coiffée d'un scotch en aluminium pour réfléchir au maximum le rayonnement incident et restreindre l'augmentation en température du tube. L'objectif de cette modification est alors de réduire l'angle de vue du capteur en bloquant les émissions incidentes arrivant avec un trop grand angle par rapport à la normale de la surface utile du fluxmètre. Cette technique permet donc de discrétiser spatialement le rayonnement émis et de détecter plus facilement la région générant le plus de rayonnement. La figure IV.3.19 montre ainsi la différence de perception du capteur, dans la configuration avec et sans tube, en utilisant une source radiative ponctuelle identique à la caractérisation présentée dans la section III.4. L'angle de vue du fluxmètre passe alors de 150° à 35° pour une longueur de tube rajouté de 65 mm. L'écart de valeur constaté sur la densité adimensionnée de flux radiatif commence ainsi à devenir important au-delà d'un déplacement vertical de 20 mm par rapport à la source de rayonnement ponctuelle. Ce changement de perception s'accentue avec le déplacement du fluxmètre jusqu'à ne plus recevoir de rayonnement au-delà d'une course verticale de 40 mm.

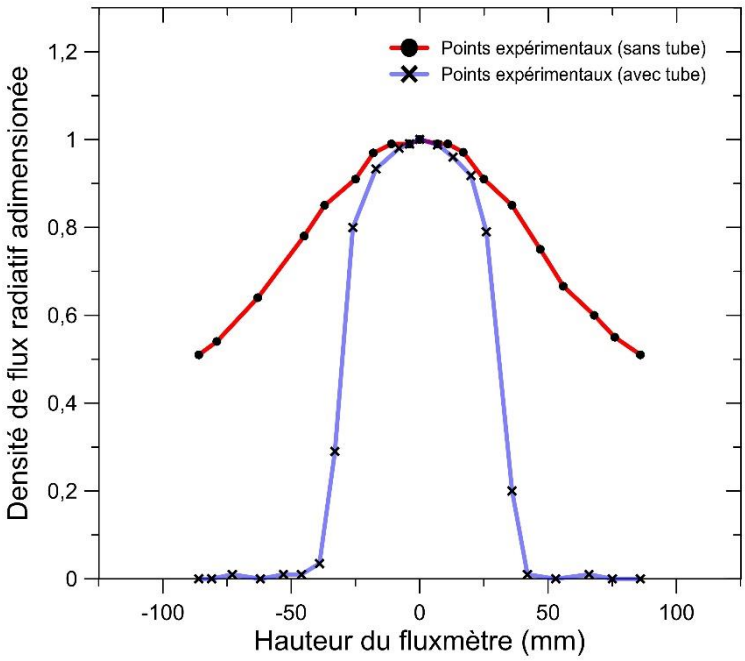


FIGURE IV.3.19 – *Caractérisation du rayonnement perçu par le fluxmètre, pour une configuration avec et sans tube emmanché, en utilisant une source radiative ponctuelle*

La combustion métallique a donc été étudiée avec le tube emmanché sur le fluxmètre pour trois positions axiales différentes, respectivement à 22 mm, 100 mm et 200 mm au-dessus de la sortie du brûleur. Pour des conditions de mélange stœchiométriques, les valeurs mesurées de la densité de flux radiatif ont été adimensionnées par le maximum du profil axial obtenu avec le fluxmètre seul et sont présentées sur la figure IV.3.20. À 22 mm de hauteur, c'est-à-dire à environ mi-hauteur de la flamme Al / air, la densité de flux radiatif mesurée avec le tube représente environ 60% de la valeur obtenue sans le tube. L'écart entre ces deux mesures peut être justifié par une réduction de la perception du fluxmètre sur l'ensemble de la hauteur de la flamme et par la suppression de la majeure partie du rayonnement provenant du panache. À une hauteur de 100 mm, la zone de réaction n'est plus visible par le fluxmètre équipé du tube et la densité de flux radiatif mesurée correspond seulement à 23% de la valeur obtenue sans le tube. Cette faible contribution radiale renforce l'hypothèse d'une émission radiative principalement générée au niveau de la flamme. Néanmoins, il est confirmé que le panache chaud en proche flamme a un rôle non négligeable dans le rayonnement total émis par l'ensemble flamme / panache. Pour la dernière position étudiée, la densité de flux radiatif mesurée avec le tube équivaut à 8% de la valeur obtenue pour le fluxmètre seul, montrant ainsi une réduction du rayonnement axial avec la hauteur en raison d'un panache refroidi certainement par rayonnement thermique.

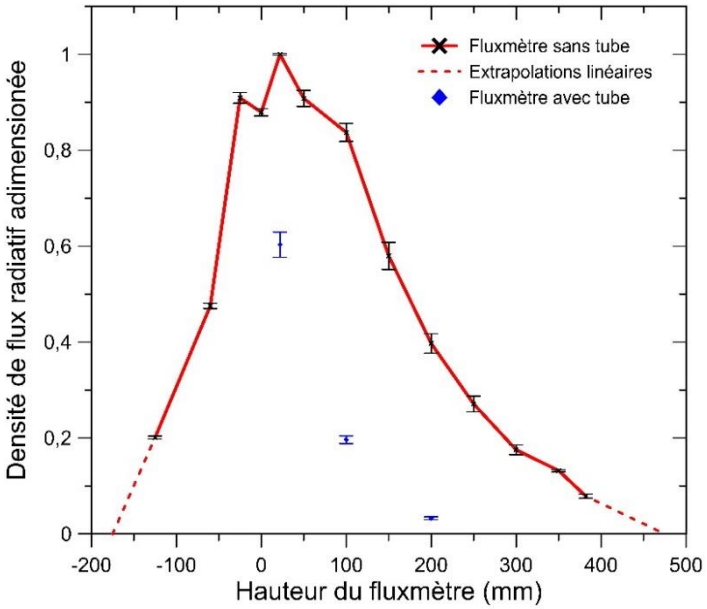


FIGURE IV.3.20 – *Effet de la réduction de l'angle de vue du fluxmètre sur les mesures de la densité de flux radiatif adimensionnée d'une flamme Al / air avec une richesse de 0,95*

De par la concordance des images de l'ensemble flamme / panache en visualisation directe, des estimations de la température de la phase condensée dans les différentes zones et des mesures de rayonnement réalisées avec le fluxmètre, il est donc possible de conclure que la principale quantité de rayonnement est émise par la zone de réaction. Cependant, la contribution des gaz brûlés sur le rayonnement total émis vers l'extérieur ne peut pas être négligée, mais ne peut pas être déterminée précisément non plus avec ces résultats expérimentaux. Ainsi, il n'est alors pas possible d'évaluer la proportion d'énergie rayonnée uniquement par la flamme, ni d'estimer une émissivité globale de la zone de combustion. C'est donc la part rayonnée par l'ensemble flamme / panache qui est étudiée ci-dessous.

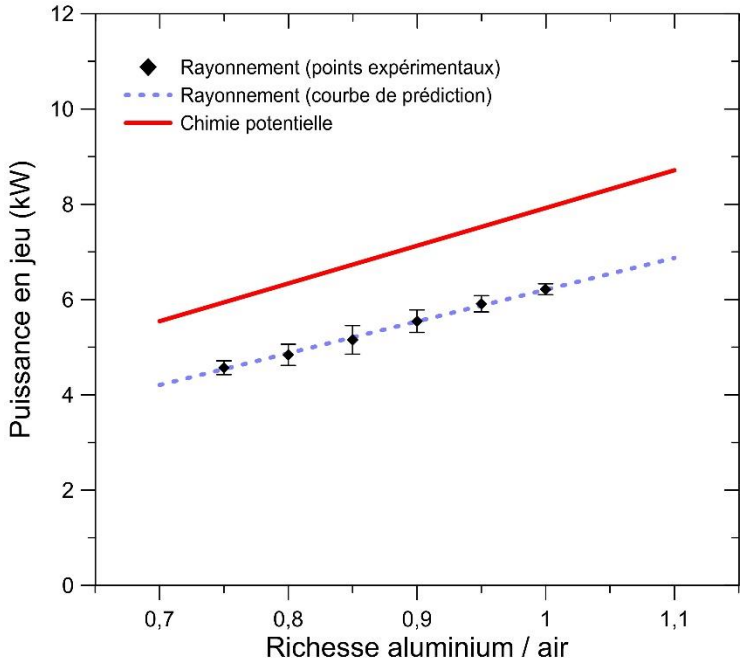


FIGURE IV.3.21 – *Comparaison de la puissance chimique potentielle en jeu et de la puissance radiative générée par l'ensemble flamme / panache en fonction de la richesse du mélange*

Comme illustré sur la figure IV.3.5, la puissance totale rayonnée par la flamme Al / air et son panache $\dot{Q}_{ray}$ est alors déterminée avec l'équation (IV.3.6), c'est-à-dire par l'intégration du profil axial de la densité de flux radiatif. Les points expérimentaux de la puissance totale rayonnée vers l'extérieur sont ainsi obtenus uniquement à partir des profils axiaux possédant des mesures de la puissance surfacique radiative sur l'ensemble des 13 hauteurs étudiées. Il est également à noter que ces valeurs correspondent à une information intégrée temporelle, liée à la fréquence d'acquisition des mesures, durant laquelle la concentration en poudres métalliques peut fluctuer légèrement. Cette puissance rayonnée peut également être prédite via l'intégration d'un profil axial construit grâce aux régressions linéaires entre la densité de flux radiatif mesurée et la richesse de l'écoulement pour toutes les hauteurs qui constituent le profil axial (voir la figure IV.3.16). La figure IV.3.21 présente alors ces deux résultats et les barres d'erreur exposées proviennent directement de la dispersion statistique des valeurs de la puissance surfacique rayonnée à chaque point du profil axial (voir la figure IV.3.17). À titre de comparaison, la puissance chimique potentielle des gaz frais $\dot{Q}_{tot}$ est également affichée sur ce graphique et est définie par l'expression suivante :

$$\dot{Q}_{tot} = \dot{m}_{Al} \,.\, \Delta H_{c\,Al/air} \qquad \text{(IV.3.8)}$$

où $\dot{m}_{Al}$ est le débit massique en aluminium dans les gaz frais, soit 99,8% du débit massique total de la poudre éjectée à la sortie du brûleur en considérant la couche d'oxydation passive moyenne des particules, et $\Delta H_{c\,Al/air}$ est l'enthalpie standard de combustion pour une réaction aluminium / air. La tendance de la puissance rayonnée à travers la courbe de prédiction semble donc en accord avec les points déterminés expérimentalement et montre une dépendance presque linéaire entre la puissance totale rayonnée vers l'extérieur et la richesse du mélange avant combustion. Il est également constaté que la puissance chimique potentielle augmente d'une manière plus significative avec la richesse de l'écoulement.

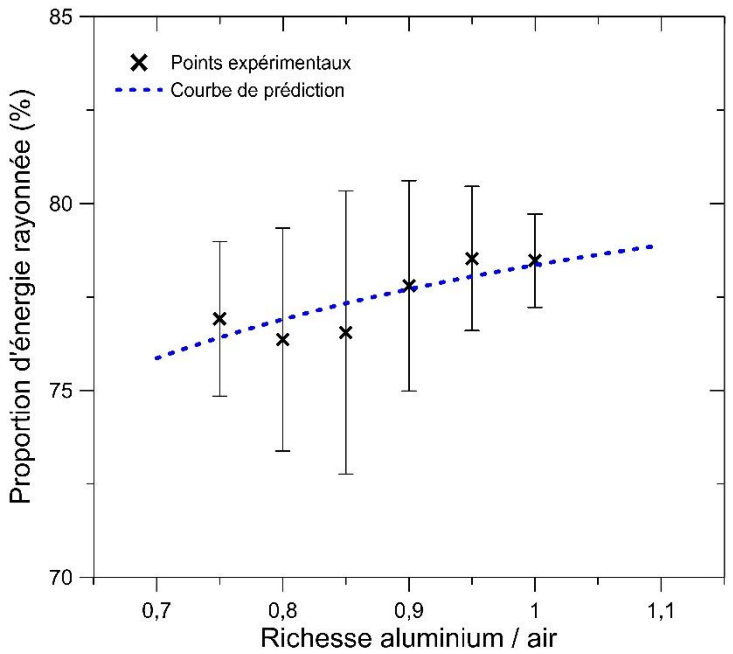


FIGURE IV.3.22 – *Évolution de la part rayonnée en fonction de la concentration en particules pour une flamme prémélangée aluminium / air*

Au-delà de la valeur absolue, il est intéressant de comparer directement la puissance totale rayonnée par la flamme Al / air et son panache avec la puissance chimique potentielle des gaz frais. La proportion d'énergie rayonnée par la flamme et son panache $\mathcal{X}_{ray}$ peut alors être directement évaluée selon l'équation (IV.3.7). Puisque la section IV.2 semble montrer que le rendement de combustion est de l'ordre de l'unité dans nos conditions expérimentales, la composante radiative liée à l'efficacité de combustion sera identique à la part totale rayonnée par l'ensemble flamme / panache. La figure IV.3.22 dévoile ainsi les valeurs de cette proportion d'énergie chimique rayonnée pour une flamme prémélangée Al / air avec une richesse allant de 0,7 à 1,1. Les points expérimentaux et les barres d'erreur sont issus des données présentées dans le graphique précédent. La courbe de prédiction de la part rayonnée est donc obtenue en normalisant la courbe de prédiction de la puissance totale radiative, présentée sur la figure IV.3.21, par la puissance chimique potentielle de l'écoulement. Cette courbe de prédiction montre ainsi que la proportion d'énergie rayonnée a tendance à augmenter légèrement avec la richesse des gaz frais, variant de 76% pour une richesse de 0,7 à 79% pour une richesse de 1,1. Celle-ci peut alors être mathématiquement décrite grâce un polynôme du second degré ($R^2 = 0{,}9998$), reflétant ainsi une tendance similaire aux données expérimentales issues du spectre d'émission de la zone de réaction Al / air et présentées dans la sous-section IV.1.3. Par conservation de l'énergie, cette observation implique donc que la part d'énergie convectée par les gaz brûlés décroît légèrement avec la richesse. Ce phénomène peut être expliqué notamment à travers différentes mesures de température réalisées à plusieurs positions dans le panache avec un thermocouple et montrant que la température globale de celui-ci augmente avec la richesse. En effet, le dispositif expérimental fonctionne avec un débit d'air fixe à la sortie du brûleur et c'est la variation de la concentration en poudre d'aluminium qui modifie la richesse de la flamme Al / air. Ainsi, la puissance convectée par le panache augmente avec la richesse de l'écoulement, d'où une élévation généralisée de la température au sein du panache selon l'équation (IV.3.1). Or, la puissance convectée s'exprime en fonction de la température du panache alors que la puissance

rayonnée par celui-ci s'exprime avec la température à la puissance 4, entraînant ainsi un écart dans l'évolution de ces deux puissances et donc cette légère modification de la balance énergétique avec la richesse pour garantir la conversation de l'énergie.

L'autre information importante concerne les valeurs très élevées de la part rayonnée révélées par cette étude, avec environ 78% de l'énergie chimique qui est rayonnée par la flamme Al / air et son panache dans des conditions stœchiométriques. Il est à noter que la nécessité d'ajouter un filtre atténuateur avec une transmittance de 1% sur la chaîne optique du spectromètre d'émission informait déjà d'un rayonnement important au niveau de la zone de réaction (voir la section III.4). Des proportions importantes d'énergie rayonnée ont également été constatées auparavant pour certaines flammes d'hydrocarbures produisant des quantités conséquentes de suie. En effet, une flamme de diffusion de 1, 3-butadiène possède une part rayonnée d'environ 43% en dépit d'une température de flamme nettement inférieure à celle d'une combustion Al / air (Markstein, 1985). En comparaison, la part rayonnée lors de la combustion dans l'air d'une particule isolée de magnésium avec un diamètre entre 1 et 2,5 mm a été estimée à environ 40% (Shoshin, 2002). Dans nos conditions expérimentales, cette valeur est quasiment doublée et la différence de balance énergétique entre ces deux combustibles métalliques pourrait provenir de trois raisons. Premièrement, dans des conditions opératoires identiques, il a été montré que la température de flamme obtenue avec de la poudre de magnésium est légèrement plus faible que pour des particules d'aluminium (Lomba, 2016). Ensuite, un écart significatif existe entre la température d'ébullition du magnésium et celle de l'aluminium, représentant ainsi 1425 K de différence à pression atmosphérique en faveur de l'aluminium (Glassman, 2008). Malgré une plus grande émissivité par rapport à l'aluminium, le rayonnement thermique de la goutte de magnésium semble alors fortement réduit en raison d'une dépendance en fonction de la température de goutte à la puissance 4. Or, dans la sous-section IV.1.2, il a été montré que le rayonnement thermique de la goutte d'aluminium représente une partie notable des émissions radiatives dans nos conditions expérimentales, avec une contribution dans le domaine visible d'environ 23% du spectre d'émission de la phase condensée présente dans la zone de réaction. Enfin, les conditions de combustion divergent entre les deux études, avec un effet de groupe modifiant les transferts thermiques à l'échelle de la particule (Julien, 2015). Comme expliqué dans la section précédente, en raison d'un milieu ambiant froid, la combustion d'une particule isolée s'accompagne de pertes de chaleur vers l'extérieur plus importantes, réduisant alors la température de la microflamme et le rayonnement induit. De plus, dans le cas d'une flamme métallique stabilisée sur brûleur avec un écoulement permanent, le rayonnement provenant du panache contribue au chauffage des particules injectées en amont, et celui-ci est donc un terme source d'énergie à prendre en compte. Ce phénomène n'existe pas pour la combustion d'une particule isolée, où l'énergie convectée est directement dispersée dans le gaz environnant froid.

En validant la méthodologie avec un autre combustible et grâce aux nombreuses mesures de flux radiatif réalisées, les valeurs obtenues pour la part totale rayonnée par la flamme Al / air et son panache semblent alors cohérentes avec les conditions de l'étude. Située à 382 mm au-dessus de la sortie du brûleur, la température moyenne des gaz brûlés au niveau de l'extraction des fumées est mesurée par thermocouple à environ 420°C pour un mélange stœchiométrique. Dans ces conditions et avec un rendement de combustion estimé à 1, environ 22% de l'énergie totale libérée reste encore convectée par le panache à cette

position. Connaissant le débit massique en particule à la sortie du brûleur et avec l'hypothèse d'une température homogène entre les gaz brûlés et les produits de combustion condensés, l'énergie convectée au sein du panache est alors distribuée globalement à 12% dans les particules solides et 88% dans les gaz. Dans une configuration en champ libre, cette répartition énergétique dans le panache dépend de la quantité d'air entraîné par celui-ci et donc de la hauteur à laquelle le bilan énergétique est effectué. Néanmoins, cette estimation de la balance énergétique en champ libre révèle le fort potentiel du rayonnement et permet alors de fournir les premières données chiffrées afin de déterminer les meilleures solutions technologiques à mettre en place pour valoriser efficacement l'énergie libérée lors d'une combustion prémélangée aluminium / air.

IV.3.4 Bilan

L'objectif de cette partie est d'obtenir de nouvelles données scientifiques qui aideront au dimensionnement et au développement d'un convertisseur énergétique complet. Ce système aura alors pour objectif de transformer l'énergie chimique contenue dans l'aluminium en énergie électrique. Ces résultats préliminaires apportent également des éléments permettant d'évaluer la viabilité du concept de vecteur énergétique métallique basé sur la poudre d'aluminium. Enfin, effectuer un bilan énergétique d'une flamme prémélangée Al / air est indispensable pour définir les solutions technologiques à mettre en place afin de maximiser le rendement des systèmes futurs.

Pour obtenir la proportion de l'énergie chimique potentielle rayonnée vers l'extérieur, un fluxmètre à grand angle de vue est utilisé. Le profil axial de la densité de flux radiatif est alors obtenu grâce à un balayage vertical du capteur le long de l'axe du brûleur. Celui-ci est ensuite intégré sur la surface latérale d'un cylindre imaginaire, possédant un rayon équivalent à la distance entre l'axe du brûleur et la surface de mesure du fluxmètre, de manière à estimer la puissance totale rayonnée vers l'extérieur. La proportion d'énergie rayonnée est alors déterminée en adimensionnant la puissance rayonnée par la puissance chimique disponible. L'intégralité de cette méthodologie expérimentale a été validée avec des essais préliminaires réalisés sur une flamme de diffusion CH_4 stabilisée sur le brûleur.

Les résultats obtenus montrent que la densité de flux radiatif évolue de façon linéaire avec la richesse des gaz frais pour toutes les hauteurs étudiées. Il est également démontré que la principale source de rayonnement provient de la zone de réaction Al / air, même si la contribution du panache des gaz brûlés ne peut pas être négligée. Ainsi, c'est l'ensemble flamme / panache qui a été analysé dans cette étude. La proportion d'énergie rayonnée par la flamme Al / air et son panache semble alors augmenter progressivement avec la richesse de l'écoulement. Pour nos conditions expérimentales, la proportion d'énergie rayonnée vers l'extérieur fluctue entre 76% et 79% selon la richesse du mélange, alors que la part d'énergie chimique restante dans les produits de combustion condensés représente moins de 3% en raison d'une importante quantité d'air ambiant entraîné par le panache.

Bien que les valeurs obtenues dépendent du dispositif expérimental mis en œuvre, elles fournissent un ordre de grandeur dimensionnant pour le développement des convertisseurs énergétiques. Sous réserve d'aucune modification du processus de

combustion, ces valeurs pourraient encore augmenter légèrement avec l'utilisation d'un système confiné. En effet, contrairement à la configuration en champ libre, la présence d'une chambre de combustion supprimerait l'entraînement d'air ambiant et, par conséquent, le refroidissement induit des gaz brûlés. De plus, sans air entraîné dans le panache, la répartition de l'énergie convectée entre les gaz et la phase condensée devrait énormément varier pour un fonctionnement en mode confiné. Néanmoins, ces résultats montrent l'importance du rayonnement généré par ces flammes Al / air et la nécessité de prendre en compte cette forme de transfert de chaleur pour choisir les solutions technologiques qui seront associées au brûleur pour valoriser l'énergie libérée lors de la combustion métallique. Par exemple, la solution de convertisseur énergétique présentée schématiquement dans la section I.3 n'est donc pas viable puisque l'énergie restante dans les gaz chauds après filtration des particules devient extrêmement faible, même pour un fonctionnement en système fermé.

Chapitre V

Conclusions générales et perspectives

Face à l'intensification du dérèglement climatique et du réchauffement planétaire durant ces dernières décennies, les enjeux sociétaux et environnementaux liés à la transition énergétique deviennent prépondérants. L'intermittence des différentes sources d'énergies renouvelables, associée aux difficultés pour stocker massivement l'énergie résultante, limite le déploiement généralisé de ces solutions décarbonées et pousse à rechercher de nouveaux vecteurs énergétiques propres. Une alternative aux énergies fossiles traditionnelles pourrait être les poudres métalliques en raison de leurs propriétés énergétiques intéressantes. L'énergie serait alors directement véhiculée par ces poudres selon un cycle itératif simple, sans la création de déchets ou de gaz à effet de serre. Cependant, le potentiel de ce vecteur reste encore à être démontré dans sa globalité et certains verrous techniques et scientifiques subsistent dans les phases de stockage et de restitution de l'énergie. Le but de cette thèse expérimentale est donc de participer à l'évaluation des capacités de ce vecteur à restituer l'énergie chimiquement stockée dans la poudre métallique en se focalisant sur l'étape d'oxydation des particules. Afin de s'inscrire dans une approche industrielle, le métal choisi pour caractériser cette phase de restitution du vecteur énergétique est l'aluminium.

Au-delà du rendement de combustion, la capacité énergétique des poudres d'aluminium décroît avec la réduction de leur granulométrie. Intrinsèquement liée à une importante fraction massique d'alumine dans la composition chimique globale des particules métalliques, l'utilisation d'une poudre d'aluminium nanométrique perdrait tout son sens pour une application comme vecteur énergétique métallique appliqué au domaine du transport. L'emploi de particules possédant un diamètre moyen de l'ordre de 5 µm est à privilégier pour maximiser les propriétés énergétiques d'une poudre d'aluminium en conservant une bonne réactivité avec un mélange Al / air.

Le processus d'allumage de ces particules d'aluminium reste une combinaison de plusieurs phénomènes complexes, notamment en raison de la couche d'oxyde métallique présente à la surface de celles-ci. La température nécessaire pour amorcer la combustion d'une poudre en suspension dans de l'air demeure approximative et dépend de la taille des particules d'aluminium, de la richesse de l'aérosol et du délai d'allumage souhaité. Néanmoins, la quantité de chaleur dégagée par la combustion d'un mélange CH_4 / air dans

des conditions stœchiométriques est suffisante pour enflammer des particules d'aluminium micrométriques avec un diamètre moyen d'environ 10 µm. Cette solution permet de faciliter l'allumage d'une flamme métallique en réduisant la possibilité d'instabilités.

Les différentes observations constatées sur des particules isolées révèlent que la fin de leur cycle de combustion dépend de phénomènes multiphysiques complexes encore méconnus et peut conduire à un reste d'aluminium imbrûlé. Durant ce type de combustion, la formation d'oxynitrure d'aluminium engendrée par la croissance du lobe d'alumine en surface de la goutte métallique pourrait jouer un rôle dans la fin d'oxydation chaotique de celles-ci. Cependant, ce comportement reste difficilement identifiable pour la combustion d'un aérosol en raison de la complexité à étudier une seule particule dans l'épaisseur d'une flamme métallique. L'effet de groupe sur la combustion est peu documenté dans la littérature, mais celui-ci impacte directement le mode d'oxydation à l'échelle particulaire, passant d'un régime piloté par les réactions hétérogènes de surface pour la combustion d'une seule particule nanométrique à un régime contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses lors de la combustion d'une poudre nanométrique en suspension. Les données existantes sur le rendement de combustion associée à l'oxydation d'un nuage de particules d'aluminium indiquent des valeurs assez faibles qui pourraient être liées à la fin d'oxydation observée sur les particules isolées. Néanmoins, pour une potentielle application industrielle, ce paramètre doit être déterminé avec des dispositifs expérimentaux où la flamme métallique est temporellement stabilisée comme avec l'utilisation d'un brûleur de type Bunsen.

La stabilisation temporelle d'une flamme métallique reste assez complexe en raison du caractère diphasique de l'écoulement prémélangé généré en amont de la combustion. L'emploi d'une poudre micrométrique possédant une faible granulométrie permet d'augmenter la réactivité des gaz frais et de réduire les impacts liés à des hétérogénéités de richesse locale ou de taille de particules sur la vitesse de flamme laminaire, favorisant alors une meilleure stabilité du front de flamme. Cependant, la valeur de la vitesse de propagation du front de flamme peut varier d'un facteur 3 selon les données bibliographiques et cette dispersion ne permet pas un dimensionnement automatique de l'écoulement prémélangé. Ce paramètre doit donc être évalué pour chaque dispositif expérimental et chaque poudre métallique utilisée.

La température de flamme est également un paramètre important pour des applications énergétiques et plusieurs méthodes permettent de l'estimer durant la combustion d'un aérosol. L'utilisation du spectre d'émission de la flamme métallique semble être la solution la plus viable pour estimer la température de flamme, mais les hypothèses actuellement utilisées ne sont pas cohérentes avec la visualisation directe de la combustion d'une particule d'aluminium isolée. Considérer deux températures distinctes, pour la goutte d'aluminium et pour les particules d'alumine nanométriques en périphérie de celle-ci, permettrait éventuellement de gagner en cohérence. Au-delà de la température de flamme, estimer la répartition énergétique entre la partie rayonnée et celle qui est convectée dans les gaz brûlés est indispensable pour récupérer correctement l'énergie issue de la combustion métallique et dimensionner des systèmes industriels.

De manière générale, les études portant sur la combustion d'un nuage de particules d'aluminium sont donc assez récentes et les flammes multiphasiques qui en découlent restent

encore globalement méconnues par rapport aux flammes d'hydrocarbures traditionnelles. Les travaux présentés dans ce manuscrit s'appuient simultanément sur une étude microscopique et macroscopique d'une flamme prémélangée issue de la combustion d'une poudre d'aluminium, possédant un diamètre moyen en volume de 7,6 µm, en suspension dans de l'air. Cette flamme purement métallique est stabilisée en champ libre grâce à un brûleur de type Bunsen, où son allumage nécessite ponctuellement la combustion d'un mélange CH_4 / air. Un système d'extraction et de filtration des fumées a également été développé afin de collecter l'ensemble des produits de combustion solides induit par la combustion Al / air. Les objectifs de cette thèse consistent alors en la caractérisation des propriétés fondamentales de la flamme métallique et l'estimation de paramètres nécessaires au dimensionnement d'un convertisseur énergétique basé sur l'utilisation d'une poudre d'aluminium micrométrique. Afin de répondre à ces problématiques, le manuscrit et les travaux associés traitent des points suivants :

- La première étape consiste à qualifier l'écoulement prémélangé à la sortie du brûleur en renseignant notamment la vitesse et le niveau de turbulence de celui-ci, l'homogénéité du mélange particules / air et la richesse des gaz frais durant la phase de combustion. Le but est alors de connaître le plus fidèlement possible les conditions rencontrées par le front de flamme Al / air.

- Ensuite, les propriétés fondamentales de la flamme métallique, telles que la géométrie de la zone de réaction ou la vitesse de flamme laminaire, sont évaluées afin de cartographier la réactivité de l'aérosol en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans les gaz frais. D'une manière plus microscopique, la combustion à l'échelle particulaire est également étudiée grâce à l'analyse des températures de la phase condensée présentes dans la zone de réaction.

- Les produits de combustion solides générés par la flamme Al / air sont également collectés dans le panache des gaz brûlés. L'étude de leurs tailles et compositions chimiques fournit alors des informations directes sur le mode de combustion subi par ces particules d'aluminium et le rendement de combustion global associé à la poudre métallique utilisée. Ces données sont également nécessaires pour concevoir un système de filtration efficace et industriellement viable.

- La dernière étape de ces travaux consiste à mesurer le rayonnement émis vers l'extérieur par la flamme Al / air et son panache chargé en particules. L'objectif final est d'estimer la part rayonnée par l'ensemble flamme / panache en fonction de la richesse en aluminium et d'évaluer la répartition énergétique globale entre les différents modes de transfert de chaleur. L'ensemble de ces résultats donne des indications sur la capacité du vecteur énergétique métallique à restituer l'énergie stockée chimiquement dans le métal pur.

Les travaux expérimentaux présentés dans ce manuscrit permettent d'analyser certaines propriétés fondamentales telles que le mode d'oxydation des particules d'aluminium, la vitesse de flamme laminaire ou encore les températures en jeu dans la zone de réaction. Ces diverses propriétés, d'ordre macroscopique ou à l'échelle particulaire, sont à mettre en parallèle avec la richesse des gaz frais fixant directement les conditions générales

de combustion. Pour ce faire, la concentration en particules d'aluminium est déterminée dans l'écoulement prémélangé à partir d'une méthode optique se basant sur l'atténuation laser. Cette technique permet une mesure instantanée et continue durant l'essai de combustion Al / air avec une précision de 25 g/m^3 pour une confiance de 95%, soit une information deux fois plus précise que celles indiquées dans la littérature pour des flammes métalliques.

L'exploitation des images obtenues auparavant par tomographie laser permet une meilleure compréhension de la structure de flamme Al / air. La zone sombre présente sur celles-ci, initialement attribuée à la vaporisation de l'aluminium et à l'expansion des gaz chauds, serait plutôt liée à une diminution de l'émissivité directionnelle des particules. Ce changement brusque serait induit par le retrait de la couche d'oxyde métallique en un lobe d'alumine, modifiant alors les propriétés optiques des particules à travers l'exposition de l'aluminium au rayonnement laser. Cette hypothèse semble également être confirmée par les données PIV, donnant lieu à une nouvelle position du front de flamme Al / air et à un recalage de la vitesse de flamme laminaire. L'estimation de cette vitesse est de 33,5 cm/s pour un mélange stœchiométrique, soit un écart relatif de 16% par rapport aux précédents travaux. D'une manière générale, la vitesse de propagation du front de flamme augmente légèrement sur la plage de richesse allant de 0,82 à 1,42.

La visualisation directe de la flamme métallique à travers la longueur d'onde principale de l'émission radiative de l'$AlO_{(g)}$, soit 486 nm, permet de cibler la zone de réaction Al / air. Cette technique peut renseigner sur l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme en utilisant la géométrie de la flamme et en la normalisant par rapport à celle obtenue pour des conditions stœchiométriques. Cette méthodologie simplifiée fournit une précision sur la vitesse de flamme laminaire normalisée équivalente à celle obtenue en utilisant les données PIV. Deux lots de poudre d'aluminium provenant d'une même référence fournisseur, mais issus d'une fabrication différente, ont été testés sur le brûleur. Ceux-ci possèdent une dispersion sur la granulométrie des particules d'aluminium et le changement d'un diamètre moyen en volume de 7,6 µm à 9,1 µm induit une diminution de 12% sur la vitesse de propagation du front de flamme à une richesse Al / air de 0,90. Dans nos conditions expérimentales, la vitesse de flamme laminaire est alors proportionnelle au diamètre moyen des particules d'aluminium selon $d^{-0,63}$. Au-delà d'un écart de valeurs potentiellement lié aux différents dispositifs expérimentaux, cette observation permet de rationaliser la dispersion des données bibliographiques constatée sur ce paramètre.

L'étude des différents spectres d'émission de la flamme métallique confirme une présence importante d'aluminium gazeux et de l'intermédiaire de réaction $AlO_{(g)}$ dans la zone de réaction, indiquant un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire. Contrairement à la méthodologie présentée dans la littérature, le rayonnement thermique induit par ce mode de combustion ne peut pas être simulé à travers une émissivité globale des particules et une température unique. Le fond continu se compose alors de l'émission radiative de la goutte métallique ayant un comportement de type corps gris et du rayonnement thermique des particules d'alumine nanométriques possédant une émissivité proportionnelle à λ^{-2}. Sur la plage de richesse étudiée, la température en surface de la goutte d'aluminium est globalement constante à environ 2250 K, soit une valeur équivalente à 80% du point d'ébullition de ce métal à 1 atm. Cette température serait issue d'une faible pression partielle en aluminium gazeux autour de la goutte, en raison de sa rapide

consommation dans la microflamme, et pourrait être un indicateur supplémentaire sur le régime de combustion subi par les particules métalliques. Concernant la température des particules d'alumine nanométriques, celle-ci décroît de 3630 K à 3345 K selon une loi polynomiale d'ordre 2 lorsque la richesse Al / air évolue de 0,70 à 1,10, traduisant potentiellement le manque progressif d'oxygène disponible au niveau des différentes microflammes. Entre 250 nm et 680 nm, le spectre d'émission de la flamme métallique est ainsi constitué à environ 12% de l'émission des éléments gazeux, 24% du rayonnement thermique de la goutte d'aluminium et 64% du rayonnement des particules d'alumine. Ces proportions varient uniquement de quelques pourcents sur la plage de richesse étudiée.

Grâce à une sonde de prélèvement, les produits de combustion solides ont été collectés directement dans le panache des gaz brûlés pour une richesse Al /air variant entre 0,9 et 1,1. Les particules se sont alors déposées progressivement sur la sonde pour former un bloc dur blanchâtre, où celles-ci possèdent très peu d'adhésions entre elles. La visualisation des produits de combustion au MEB et au MET indique que ceux-ci sont essentiellement composés de particules nanométriques sphériques dont le diamètre moyen est estimé à environ 110 nm. La granulométrie de ces produits de combustion confirme ainsi l'hypothèse d'une oxydation contrôlée par la diffusion des espèces gazeuses à l'échelle particulaire malgré la taille des particules métalliques initiales, où une combustion de groupe influencerait les échanges thermiques au niveau d'une seule particule. Quelques sphères micrométriques sont également visibles dans les produits de combustion et celles-ci semblent provenir de la couche d'alumine passive présente initialement à la surface des plus grosses particules d'aluminium. Les différentes analyses chimiques indiquent que les produits de combustion, micrométriques ou nanométriques, sont principalement constitués d'alumine. Contrairement aux données bibliographiques présentées pour d'autres dispositifs expérimentaux, un rendement de combustion de 1 peut alors être retenu pour un brûleur de type Bunsen en champ libre. Des atomes d'azote ont également été détectés à la surface des sphères micrométriques et semblent indiquer la présence d'oxynitrure d'aluminium en surface de celles-ci. Ce phénomène pourrait être expliqué par une rétrodiffusion du NO depuis la microflamme, réagissant ensuite à la surface de la goutte métallique lors de son oxydation.

Pour obtenir la proportion de l'énergie chimique potentielle rayonnée vers l'extérieur, un fluxmètre à grand angle de vue est utilisé. Le profil axial de la densité de flux radiatif est alors obtenu grâce à un balayage vertical du capteur le long de l'axe du brûleur. Celui-ci est ensuite intégré sur la surface latérale d'un cylindre imaginaire, possédant un rayon équivalent à la distance entre l'axe du brûleur et la surface de mesure du fluxmètre, de manière à estimer la puissance totale rayonnée vers l'extérieur. La proportion d'énergie rayonnée est alors déterminée en adimensionnant la puissance rayonnée par la puissance chimique libérée, où l'hypothèse d'un rendement de combustion égale à 1 est retenue. L'intégralité de cette méthodologie expérimentale a été validée avec des essais préliminaires réalisés sur une flamme de diffusion CH_4 stabilisée sur le brûleur.

Les résultats expérimentaux montrent que la densité de flux radiatif évolue de façon linéaire avec la richesse des gaz frais pour toutes les hauteurs étudiées et, même si la contribution des gaz brûlés ne peut pas être négligée, la principale source de rayonnement provient de la zone de réaction Al / air. Ainsi, c'est l'ensemble flamme / panache qui a été analysé dans cette étude. La proportion d'énergie rayonnée par la flamme Al / air et son

panache semble alors augmenter progressivement avec la richesse de l'écoulement. Pour nos conditions expérimentales, la proportion d'énergie rayonnée vers l'extérieur fluctue entre 76% et 79% selon la richesse du mélange, alors que la part d'énergie restante dans les produits de combustion condensés représente moins de 3% en raison d'une importante quantité d'air ambiant entraîné par le panache.

Bien que les valeurs obtenues dépendent du dispositif expérimental mis en œuvre, celles-ci fournissent un ordre de grandeur pour le développement des convertisseurs énergétiques. Sous réserve d'aucune modification du processus de combustion, ces valeurs pourraient encore augmenter légèrement avec l'utilisation d'un système confiné. En effet, contrairement à la configuration en champ libre, la présence d'une chambre de combustion supprimerait l'entraînement d'air ambiant et, par conséquent, le refroidissement des gaz brûlés associé. De plus, sans air entraîné dans le panache, la répartition de l'énergie convectée entre les gaz et la phase condensée devrait énormément varier pour un fonctionnement en mode confiné. Néanmoins, ces résultats montrent l'importance du rayonnement généré par ces flammes prémélangées Al / air et la nécessité de prendre en compte cette forme de transfert de chaleur pour choisir les solutions technologiques qui seront associées au brûleur pour valoriser l'énergie libérée lors de la combustion métallique. Par exemple, valoriser uniquement l'énergie restante dans les gaz chauds après la filtration des particules solides perdrait tout son sens, même pour un fonctionnement en système fermé.

Afin de résumer, le vecteur énergétique métallique basé sur l'utilisation de poudre d'aluminium pourrait être une alternative cohérente pour réduire notre dépendance aux énergies fossiles. Ces travaux démontrent la possibilité de stabiliser temporellement une combustion Al / air et la capacité à libérer l'énergie stockée dans le métal pur. En revanche, au-delà de la phase de régénération de la poudre d'aluminium à partir des produits de combustion, des verrous techniques majeurs restent à être levés comme la conversion de l'énergie radiative émise par la flamme métallique avec un rendement acceptable ou encore la filtration des gaz brûlés permettant une récupération facile des produits de combustion. De plus, l'encrassement du brûleur constitue une difficulté importante pour une application industrielle et celle-ci pourrait être corrigée par l'augmentation de la vitesse de l'écoulement des gaz frais, nécessitant la stabilisation d'une flamme métallique turbulente. Le confinement du brûleur engendre également des problématiques liées à l'aéraulique et la stabilité de la combustion métallique pourrait être impactée. L'aspect sécuritaire du système doit également être pris en compte pour une flamme prémélangée utilisant des gaz frais avec une grande réactivité et un faible seuil d'énergie d'activation. En raison des fortes températures en jeu dans la zone de réaction, la pollution atmosphérique doit aussi être étudiée à travers la production des NO_x thermiques, même si la formation d'oxynitrure d'aluminium milite pour des émissions réduites par rapport à l'utilisation d'autres métaux.

Bibliographie

J.M. Ané, and M. Huetz-Aubert, “Stratified media theory interpretation of measurements of the spectral polarized directional emissivity of some oxidized metals”, *International journal of thermophysics*, vol. 7, no 6, p. 1191-1208, 1986

S.K. Aslanov, V.G. Shevchuk, Y.N. Kostyshin, L.V. Boichuk, and S.V. Goroshin, “Oscillatory combustion of air suspensions”, *Combustion, Explosion and Shock Waves*, vol. 29, no 2, p. 163-169, 1993

I.G. Assovskiy, O.M. Zhigalina, and V.I. Kolesnikov-Svinarev, “Gravity effect in aluminum droplet ignition and combustion”, *5th International Microgravity Combustion Workshop, Cleveland, OH*, p. 18-20, 1999

D.R. Ballal, “Flame propagation through dust clouds of carbon, coal, aluminium and magnesium in an environment of zero gravity”, *Proceedings of the Royal Society of London, A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 385, no 1788, p. 21-51, 1983

G. Baudry, “Etude de l’inflammabilité d’un nuage de particules d’aluminium partiellement oxydées”, *Thèse de doctorat, Université d’Orléans*, 2007

G. Baudry, S. Bernard, and P. Gillard, “Influence of the oxide content on the ignition energies of aluminium powders”, *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 20, no 4-6, p. 330-336, 2007

T. Bazyn, H. Krier, and N.G. Glumac, “Evidence for the transition from the diffusion-limit in aluminum particle combustion”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, no 2, p. 2021-2028, 2007

A. Beer, “Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten”, *Annalen der physic und chemie*, vol. 86, p. 78-88, 1852

N.A. Bergman, and S. Chakraborty, “Accidental fires and radiation heat transfer: Investigating the effects of flame impingement on structures”, *The Journal of Purdue Undergraduate Research*, vol. 3, no 1, p. 4, 2013

J.M. Bergthorson, “Recyclable metal fuels for clean and compact zero-carbon power”, *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 68, p. 169-196, 2018

J.M. Bergthorson, S. Goroshin, M.J. Soo, P. Julien, J. Palecka, D.L. Frost, and D.J. Jarvis, “Direct combustion of recyclable metal fuels for zero-carbon heat and power”, *Applied Energy*, vol. 160, p. 368-382, 2015

P.E. Bocanegra, “Etudes expérimentales et modélisation de la combustion des nuages de particules micrométriques et nanométriques d’aluminium”, *Thèse de doctorat, Université d’Orléans*, 2007

P.E. Bocanegra, D. Davidenko, V. Sarou-Kanian, C. Chauveau, and I. Gokalp, “Experimental and numerical studies on the burning of aluminum micro and nanoparticle clouds in air”, *Combustion and Flame*, vol. 34, p. 299-307, 2010

C.F. Bohren, and D.R. Huffman, “Absorption and scattering by a sphere”, *Absorption and scattering of light by small particles, John Wiley & Sons*, vol. 4, p. 82-129, 1983

L.V. Boichuk, V.G. Shevchuk, and A.I. Shvets, “Flame propagation in two-component aluminum-boron gas suspensions”, *Combustion, Explosion and Shock Waves*, vol. 38, no 6, p. 651-654, 2002

B.T. Bojko, P.E. DesJardin, and E.B. Washburn, “On modeling the diffusion to kinetically controlled burning limits of micro-sized aluminium particules”, *Combustion and Flame*, vol. 161, no 12, p. 3211-3221, 2014

A. Boudrioua, M. Chakaroun, and A. Fischer, “Une introduction aux lasers organiques”, *ISTE Group*, vol. 1, 2017

A. Braconnier, “Etude expérimentale de la combustion d’une particule d’aluminium isolée : influence de la pression et de la composition de l’atmosphère oxydante”, *Thèse de doctorat, Université d’Orléans*, 2020

A. Braconnier, C. Chauveau, F. Halter, and 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*, vol. 17, no 2, p. 111-124, 2018

A. Braconnier, C. Chauveau, F. Halter, and S. Gallier, “Experimental investigation of the aluminum combustion in different O2 oxidizing mixtures: Effect of the diluent gases”, *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 117, 2020

T.A. Brzustowski, “Predicting radiant heating from flares”, *Esso Engineering Research and Development Report*, EE 15ER.71, 1971

T.A. Brzustowski, S.R. Gollahalli, M.P. Gupta, M. Kaptein, and H.F. Sullivan, “Radiant heating from flares”, *ASME paper*, no 75-HT, p. 4, 1975

P. Bucher, L. Ernst, F.L. Dryer, R.A. Yetter, T.P. Parr, and D.M. Hanson-Parr, “Detailed studies on the flame structure of aluminum particle combustion”, *Solid propellant chemistry, combustion and motor interior ballistics*, vol. 185, p. 689-722, 2000

P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, E.P. Vicenzi, T.P. Parr, and D.M. Hanson-Parr, “Condensed-phase species distributions about Al particles reacting in various oxidizers”, *Combustion and Flame*, vol. 117, no 1-2, p. 351-361, 1999

P. Bucher, R.A. Yetter, F.L. Dryer, T.P. Parr, D.M. Hanson-Parr and E.P. Viceni, “Flames structure measurement of single, isolated aluminum particles burning in air”, *Symposium (International) on Combustion, Elsevier,* vol. 26, no 2, p. 1899-1908, 1996

D.S. Burgess, and M. Hertzberg, “Radiation from pool fires”, *Heat transfer in flames*, vol. 2, p. 413-430, 1974

T. Campbell, R.K. Kalia, A. Nakano, P. Vashishta, S. Ogata, and S. Rodgers, “Dynamics of oxidation of aluminum nanoclusters using variable charge molecular-dynamics simulations on parallel computers”, *Physical review letters*, vol. 82, no 24, p. 4866, 1999

H.M. Cassel, “Some fundamental aspects of dust flames”, *US Department of the Interior, Bureau of Mines*, vol. 2, 1964

L. Catoire, J.F. Legrendre, and M. Giraud, “Kinetic model for aluminum-sensitized ram accelerator combustion”, *Journal of propulsion and power*, vol. 19, no 2, p. 196-202, 2003

J.A. Church, and N.J. Neil, “Sea-level rise from the late 19th to the early 21st century”, *Surveys in geophysics*, vol. 32, no 4, p. 585-602, 2011

Climate Action Tracker, “Some progress since Paris, but not enough, as governments amble towards 3°C of warming”, *Warming Projections Global Update*, 2018

C.H. Corliss, M. Henry, and H. Crosswhite, “Line spectra of the elements”, *Handbook of Chemistry and Physics, 79th edition, Section 10*, 1998

J. Coxon and 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

CRC, “Handbook of Chemistry and Physics”, *CRC press,* 73rd Edition, 1993

R. DeSalvo, A.A. Said, D.J. Hagan, E.W. Van Stryland, and M. Sheik-Bahae, “Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n/sub 2/in wide bandgap solids”, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 32, no 8, p. 1324-1333, 1996

R.W. Devillers, G. Le Besnerais, M. Nugue, and N. Cesco, “Experimental analysis of solid-propellant surface during combustion with shadowgraphy images: new tools to assist aluminum-agglomeration modelling”, *7th European Conference for Aeronautics and Space Sciences, Milan (Italy)*, p. 327-341, 2017

J.A. Dominguez, “Image processing for binarization enhancement via fuzzy reasoning”, *U.S. Patent and Trademark Office, no 7/496/237*, 2009

E.L. Dreizin, “Experimental study of aluminium particle flame evolution in normal and micro-gravity”, *Combustion and Flame*, vol. 116, no 3, p. 323-333, 1999

E.L. Dreizin, “Experimental study of stages in aluminium particle combustion in air”, *Combustion and Flame*, vol. 105, no 4, p. 541-556, 1996

E.L. Dreizin, “On the mechanism of asymmetric aluminum particle combustion”, *Combustion and Flame*, vol. 117, no 4, p. 841-850, 1999

B.Z. Eapen, V.K. Hoffmann, M. Schoenitz, and E.L. Dreizin, “Combustion of aerosolized spherical aluminum powders and flakes in air”, *Combustion, Science and Technology*, vol. 176, no 7, p. 1055-1069, 2004

Electric Power Research Institute, “Electrical energy storage technology options”, *Report 1020676*, 2010

K.H. Ewald, U. Anselmi-Tamburini, and Z.A. Munir, “Combustion of zirconium powders in oxygen”, *Materials Science and Engineering*, vol. 291, no 1-2, p. 118-130, 2000

G.M. Faeth, J.P. Gore, S.G. Chuech, and S.M. Jeng, “Radiation from turbulent diffusion flames”, *Annual Review of Heat Transfer*, vol. 2, 1989

Y. Feng, Z. Xia, L. Huang, and X. Yan, “Experimental investigation on the combustion characteristics of aluminum in air”, *Acta Astronautica*, vol. 129, p. 1-7, 2016

Y. Ferchichi, “Etude expérimentale du mouvement d’une particule sphérique à l’approche d’une interface liquide/fluide”, *Thèse de doctorat, Paris*, 2013

A.V. Filippov, and D.E. 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*, vol. 43, no 1, p. 127-138, 2000

R. Friedman, and A. Maček, “Ignition and combustion of aluminum particles in hot ambient gases”, *Combustion and Flame*, vol. 6, p. 9-19, 1962

N.A. Fuchs, “On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere”, *Geofisica pura e applicata*, vol. 56, no 1, p. 185-193, 1963

I. Glassman, and R.A. Yetter, “Combustion”, *Elsevier, 4th edition*, 2008

I. Glassman, R.A. Yetter, and N.G. Glumac, “Combustion Fifth Edition”, *Elsevier Academic Press*, 2014

R. Gomez-Garcia, and J.I. Alonso, “Systematic method for the exact synthesis of ultra-wideband filtering responses using high-pass and low-pass sections”, *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 54, no 10, p. 3751-3764, 2006

S. Goroshin, I. Fomenko, and J.H.S. Lee, “Burning velocities in fuel-rich aluminum dust clouds”, *International Symposium on Combustion*, vol. 26, no 2, p. 1961-1967, 1996

S. Goroshin, J. Mamen, A. Higgins, T. Bazyn, N. Glumac and H. Krier, “Emission spectroscopy of flame fronts in aluminum suspensions”, *Proceedings of the Combustion Institute,* vol. 31, no 2, p. 2011-2019, 2007

G.H. Han, and S. Hong-Gye, “A numerical study on heterogeneous aluminum dust combustion including particle surface and gas-phase reaction”, *Combustion and Flame*, vol. 206, p. 112-122, 2019

G.H. Han, and H.G. Sung, “A numerical study on heterogeneous aluminum dust combustion including particle surface and gas-phase reaction”, *Combustion and Flame*, vol. 206, p. 112-122, 2019

G. Hankinson, and B.J. Lowesmith, “A consideration of methods of determining the radiative characteristics of jet fires”, *Combustion and flame*, vol. 159, no 3, p. 1165-1177, 2012

J. Hansen, M. Sato, R. Ruedy, G. Schmidt, K. Lo, and A. Persin, “Global temperature in 2015”, *GIDD, NASA, NY. URL: http://data.giss.nasa.gov*, 2016

S. Helle, “Développement de matériaux d’anodes inertes pour la production d’aluminium”, *Thèse de doctorat, Université du Québec*, 2014

B.J. Henz, T. Hawa, and M.R. Zachariah, “On the role of built-in electric fields on the ignition of oxide coated nanoaluminum: Ion mobility versus Fickian diffusion”, *Journal of Applied Physics*, vol. 107, no 2, p. 24901-24909, 2010

M. Hillert, and S. Jonsson, “Thermodynamic Calculation of the Al-N-O System”, *Zeitschrift fur Metallkunde*, vol. 83, p. 714-719, 1992

Y. Huang, G.A. Risha, V. Yang, and R.A. Yetter, “Effect of particle size on combustion of aluminum particle dust in air”, *Combustion and Flame*, vol. 156, no 1, p. 5-13, 2009

L.K. Huang, and M.J.J. Wang, “Stratified media theory interpretation of measurements of the spectral polarized directional emissivity of some oxidized metals”, *Pattern recognition*, vol. 28, no 1, p. 41-51, 1995

M.J. Hurley, D.T. Gottuk, J.R. Hall Jr, K. Harada, E.D. Kuligowski, M. Puchovsky, J.M. Watts Jr, and C.J. Wieczorek, “SFPE handbook of fire protection engineering”, *Springer*, 2015

H. Ibrahim, A. Ilinca, and J. Perron, “Energy storage systems – characteristics and comparisons”, *Renewable and sustainable energy reviews*, vol. 12, no 5, p. 1221-1250, 2008

N. Ikemiya, J. Umemoto, S. Hara, and K. Ogino, “Surface tensions and densities of molten Al2O3, Ti2O3, V2O5 and Nb2O5”, *ISIJ international*, vol. 33, no 1, p. 156-165, 1993

Intergovernmental Panel on Climate Change, “Climate Change 2013”, *The Physical Science Basis*, 2013

Intergovernmental Panel on Climate Change, “Global Warming of 1.5 °C”, *Special Report*, 2018

International Energy Agency, “CO_2 emissions from fuel combustion 2017”, *Organization for Economic Co-operation and Development*, 2017

International Energy Agency, “International Energy Outlook 2017”, *Organization for Economic Co-operation and Development*, 2017

L.P.H. Jeurgens, W.G. Sloof, F.D Tichelaar, and E.J. Mittemeijer, “Thermodynamic stability of amorphous oxide films on metals: Application to aluminum oxide films on aluminum substrates”, *Physical Review B*, vol. 67, no 7, p. 4707, 2020

P. Julien, “On the study of flames in aluminum and iron suspensions”, *PhD thesis, McGill University, Montreal*, 2015

P. Julien, and J.M. Bergthorson, “Enabling the metal fuel economy: green recycling of metals fuels”, *Sustainable Energy & Fuels*, vol. 1, no 3, p. 615-625, 2017

P. Julien, M. Soo, S. Goroshin, D.L. Frost, J.M. Bergthorson, N. Glumac, and F. Zhang, “Combustion of aluminum suspensions in hydrocarbon flame products”, *Journal of Propulsion and Power*, vol. 30, no 4, p. 1047-1054, 2014

P. Julien, J. Vickery, S. Goroshin, D.L. Frost, and J.M. Bergthorson, “Freely-propagating flames in aluminum dust clouds”, *Combustion and Flame*, vol. 162, no 11, p. 4241-4253, 2015

P. Julien, J. Vickery, S. Whiteley, A. Wright, S. Goroshin, J.M. Bergthorson, and D.L. Frost, “Effect of scale on freely propagating flames in aluminum dust clouds”, *Journal of loss prevention in the process industries*, vol. 36, p. 230-236, 2015

P. Julien, S. Whiteley, M. Soo, S. Goroshin, D.L. Frost, and J.M. Bergthorson, “Flame speed measurements in aluminum suspensions using a counterflow burner”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 36, no 2, p. 2291-2298, 2017

D. Kaddour, “Conception et réalisation de filtres RF passe-bas à structures périodiques et filtres Ultra Large Bande, semi localisés en technologie planaire”, *Thèse de doctorat, Université Joseph-Fourrier, Grenoble*, 2016

J. Keniry, “The economics of inert anodes and wettable cathodes for aluminum reduction cells”, *JOM*, vol. 53, no 5, p. 43-47, 2001

G.R. Kent, “Practical design of flare stacks”, *Hydrocarbon Processing*, vol. 43, no 8, p. 121-125, 1964

J. Kojima, Y. Ikeda, and T. Nkajima, “Spatially resolved measurement of OH^*, CH^*, and C_2^* chemiluminescence in the reaction zone of laminar methane/air premixed flames”, *Proceedings of the Combustion institute*, vol. 28, no 2, p. 1757-1764, 2000

F. Kreith, “Transmission de la chaleur et thermodynamique”, *Masson et CIE*, 1967

H. Kuhn, “Powder metallurgy processing: the techniques and analyses”, *Elsevier*, 2012

R. Kullmer, “Heat transfer from small tungsten spheres into an ambient H2 atmosphere”, *Applied Physics B*, vol. 62, no 2, p. 191-196, 1996

B. Kwiecińska, S. Pusz and B.J. Valentine, “Application of electron microscopy TEM and SEM for analysis of coals, organic-rich shales and carbonaceous matter”, *International Journal of Coal Geology,* vol. 211, p. 103203, 2019

M. Lahmani, C. Bréchignac, and P. Houdy, “Les nanosciences Tome 2 : Nanomatériaux et nanochimie”, *Editions Belin*, 2006

D. Laraqui, G. Leyssens, C. Schonnenbeck, O. Allgaier, R. Lomba, C. Dumand, and J.F. Brilhac, “Heat recovery and metal oxide particles trapping in a power generation system using a swirl-stabilized metal-air burner”, *Applied Energy*, vol. 264, p. 114691, 2020

C.K. Law, and H.K. Law, “A d2-law for multicomponent droplet vaporization and combustion”, *AIAA journal*, vol. 20, no 4, p. 522-527, 1982

G. Lengelle, J. Duterque, and J.F. Trubert, “Physico-chemical mechanisms of solid propellant combustion”, *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, vol. 185, p. 287-334, 2000

R. Lomba, “Utilisation de la combustion métallique dans les machines thermiques”, *Thèse de doctorat, Orléans*, 2016

R. Lomba, S. Bernard, P. Gillard, C. Mounaïm-Rousselle, F. Halter, C. Chauveau, T. Tahtouh and O. Guézet, “Comparison of combustion characteristics of magnesium and aluminum powders”, *Combustion Science and Technology*, vol. 188, no 11-12, p. 1857-1877, 2016

R. Lomba, P. Laboureur, C. Dumand, C. Chauveau, and F. Halter, “Determination of aluminum-air burning velocities using PIV and Laser sheet tomography”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 37, no 3, p. 3143-3150, 2019

R. Lomba, F. Lespinasse, V. Largo, C. Chauveau, and F. Halter, “Burning characteristics of aluminum-air flames”, *27th International Colloquium on the Dynamics of Explosions and Reactive Systems*, 2014

A. Maček, “Fundamentals of combustion of single aluminum and beryllium particles”, *Symposium (International) on Combustion*, vol. 11, no 1 p. 203-217, 1967

V.I. Malinin, E.I. Kolomin, and I.S. Antipin, “Ignition and combustion of aluminum-air suspensions in a reactor for high-temperature synthesis of alumina powder”, *Combustion, Explosion and Shock Waves*, vol. 38, no 5, p. 525-534, 2002

S. Marhaba, “Influence de la morphologie sur les propriétés optiques de nano-objets métalliques uniques ”, *Thèse de doctorat, Lyon I*, 2008

M. Marion, “Etudes sur la combustion des particules d’aluminium sous pression”, *Thèse de doctorat, Université d’Orléans*, 1996

G.H. Markstein, “Relationship between smoke point and radiant emission from buoyant turbulent and laminar diffusion flames”, *Symposium (International) on Combustion*, vol. 20, no 1, p. 1055-1061, 1985

C. Mätzler, “MATLAB functions for Mie scattering and absorption, version 2”, *Technical report, Universität Bern, Institut für Angewandte Physik*, vol. 8, no 1, p. 9, 2002

Metals Handbook, “Properties and Selection: Nonferrous Alloys and Pure Metals”, *American Society for Metals*, 9th Edition, vol. 2, 1979

B.J. McBride and S. Gordon, “Computer Program for Calculation of Complex Chemical Equilibrium Compositions and Applications II. Users Manual and Program Description”, *Technical report,* NASA RP 1311, 1996

B.J. McCaffrey, “Some measurements of the radiative power output of diffusion flames”, WSS/CI 81-15, Western States Section, *Combustion Institute, Pittsburgh*, 1981

M. McRae, P. Julien, S. Salvo, S. Goroshin, D.L. Frost, and J.M. Bergthorson, “Stabilized, flat iron flames on a hot counterflow burner”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 37, no 3, p. 3185-3191, 2019

A.G. Merzhanov, Y.M. Grigorjev, and Y.A. Gal’Chenko, “Aluminum ignition”, *Combustion and Flame*, vol. 29, p. 1-14, 1977

G. Mie, “Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen”, *Annalen der physik*, vol. 330, no 3, p. 377-445, 1908

M.F. Modest, “Radiative heat transfer”, *Academic press*, 2013

S. Mohan, M.A. Trunov, and E.L. Dreizin, “On possibility of vapor-phase combustion for fine aluminum particles”, *Combustion and Flame*, vol. 156, no 11, p. 2213-2216, 2009

J.P. Monchau, “Mesure d’émissivité pour la thermographie infrarouge appliquée au diagnostic quantitatif des structures”, *Thèse de doctorat, Université de Paris Est*, 2013

C. Movileanu, M. Mitu, V. Brinzea, A. Musuc, M. Mocanu, D. Razus, and D. Oancea, “Adiabatic flame temperature of fuel-air mixtures in isobaric and isochoric combustion processes”, *Rev. Chim*, vol. 62, no 4, p. 376-379, 2011

M.G. Mungal, L.M. Lourenco, and A. Krothapalli, “Instantaneous velocity measurements in laminar and turbulent premixed flames using on-line PIV”, *Combustion Science and Technology*, vol. 106, no 4-6, p. 239-265, 1995

U. Muschelknautz, “Analytical approach for calculating the separation efficiency of uniflow cyclones”, *Chemical engineering & technology*, vol. 35, no 12, p. 2099-2106, 2012

T. Parr, C. Johnson, D. Haanson-Parr, K. Higa, and K. Wilson, “Evaluation of advanced fuels for underwater propulsion”, *39th JANNAF Combustion Subcommittee Meeting*, 2003

D.L. Parry and M.Q. Brewster, “Optical constants of Al2O3 smoke in propellant flames”, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 5, no 2, p. 142-149, 1991

H. Partridge, S.R. Langhoff, B. Lengsfield, and 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

M.A. Pooley, D.M. Anderson, H.W. Beckham, and J.F. Brennan, “Engineered emissivity of textile fabrics by the inclusion of ceramic particles”, *Optics express*, vol. 24, no 10, p. 10556-10564, 2016

A.D. Rakic, A.B. Djurisic, J.M. Elazar, and M.L. Majewski, “Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices”, *Applied optics*, vol. 37, no 22, p. 5271-5283, 1998

N. Rambure, “Mesure des propriétés thermo-optiques aux températures extrêmes”, *Thèse de doctorat, Université de Paris 10*, 2010

J. Rhodes, “Design formulas for stepped impedance distributed and digital wave maximally flat and chebyshev low-pass prototype filters”, *IEEE Transactions on Circuits and Systems*, vol. 22, no 11, p. 866-874, 1975

C.J. Rhodes, “The 2015 Paris climate change conference: COP21”, *Science progress*, vol. 99, no 1, p. 97-104, 2016

G. Risha, Y. Huang, R. Yetter, and V. Yang, “Experimental investigation of aluminum particle dust cloud combustion”, *43rd AIAA Aerospace SciencesMeeting and Exhibit*, p. 739, 2005

G.A. Risha, S.F. Son, R.A. Yetter, V. Yang, and B.C. Tappan, “Combustion of nano-aluminum and liquid water”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, no 2, p. 2029-2036, 2007

V. Sarou-Kanian, “Étude expérimentale de la combustion des gouttes d’aluminium en convection forcée. Influence de l’atmosphère gazeuse”, *Thèse de doctorat, Université d’Orléans*, 2003

V. Sarou-Kanian, J.C. Rifflet, F. Millot, G. Matzen, and I. Gökalp, “Influence of nitrogen in aluminum droplet combustion”, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, no 2, p. 2063-2070, 2005

R.D. Saunders, and J.B. Shumaker, “Optical radiation measurements: The 1973 NBS scale of spectral irradiance”, *Department of Commerce, National Bureau of Standards, Institute for Basic Materials, Optical Physics Division*, vol. 594, no 13, 1977

M. Schiemann, J.M. Bergthorson, P. Fischer, V. Scherer, D. Taroata, and G. Schmid, “A riview on lithium combustion”, *Applied Energy*, vol. 162, p. 948-965, 2016

J. Servaites, H. Krier, J.C. Melcher, and R.L. Burton, “Ignition and combustion of aluminum particles in shocked H2O/O2/Ar and CO2/O2/Ar mixtures”, *Combustion and Flame*, vol. 125, no 1-2, p. 1040-1054, 2001

C.E. Shannon, “Communication in the presence of noise”, *Proceedings of the Institute of Radio Engineers*, vol. 37, no 1, p. 10-21, 1949

Y.L. Shoshin, and I.S. Altman, “Integral radiation energy loss during single Mg particle combustion”, *Combustion Science and Technology*, vol. 174, no 8, p. 209-219, 2002

Y. Shoshin, and E.L. Dreizin, “Laminar lifted flame speed measurements for aerosols of metals and mechanical alloys”, *AIAA journal*, vol. 42, no 7 p. 1416-1426, 2004

Y.L. Shoshin, and E.L. Dreizin, “Particle combustion rates for mechanically alloyed Al-Ti and aluminum powders burning in air”, *Combustion and Flame,* vol. 145, no 4, p. 714-722, 2006

M. Silvestrini, B. Genova and F.J.L. Trujillo, “Correlations for flame speed and explosion overpressure of dust clouds inside industrial enclosures”, *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 21, p. 374-392, 2008

Y.R. Sivathanu, and J.P. Gore, “Total radiative heat loss in jet flames from single point radiative flux measurements”, *Combustion and flame*, vol. 94, no 3, p. 265-270, 1993

M. Soo, S. Goroshin, N. Glumac, K. Kumashiro, J. Vickery, D.L. Frost, and J.M. Bergthorson, “Emission and laser absorption spectroscopy of flat flames in aluminum suspensions”, *Combustion and Flame*, vol. 180, p. 230-238, 2017

J. Sun, R. Dobashi, and T. Hirano, “Structure of flames propagating through aluminum particles cloud and combustion process of particles”, *Journal of loss prevention in the process industries*, vol. 19, no 6, p. 769-773, 2006

D.S. Sundaram, P. Puri, and V. Yang, “A general theory of ignition and combustion of nano- and micro-sized aluminum particles”, *Combustion and Flame*, vol. 169, p. 94-109, 2016

D. Sundaram, V. Yang and R.A. Yetter, “Metal-based nanoenergetic materials : synthesis, properties, and applications”, *Progress in Energy and Combustion Science,* vol. 61, p. 293-365, 2017

T.A. Steinberg, D.B. Wilson, and F. Benz, “The combustion phase of burning metals”, *Combustion and Flame*, vol. 91, no 2, p. 200-208, 1992
P. Stoica, and R.L. Moses, “Spectral Analysis of Signals”, *Pearson Prentice Hall*, 2005

S.H. Tan, “Flare system design simplified”, *Hydrocarbon Processing*, vol. 46, no 1, p. 172-176, 1967

W. Thielicke, and E.J. Stamhuis, “PIVlab-time-resolved digital particle image velocimetry tool for matlab”, *Software Package, Version 1*, 2010

W. Thielicke, and E.J. Stamhuis, “PIVLab-towards user-friendly, affordable and accurate digital particle image velocimetry in MATLAB”, *Journal of open research software*, vol. 2, no 1, 2014

M.A. Trunov, M. Schoenitz, and E.L. Dreizin, “Effect of polymorphic phase transformations in alumina layer on ignition of aluminium particles”, *Combustion Theory and Modelling*, vol. 10, no 4, p. 603-623, 2006

M.A. Trunov, M. Schoenitz, X. Zhu, and E.L. Dreizin, “Effect of polymorphic phase transformations in Al2O3 film on oxidation kinetics of aluminum powders”, *Combustion and flame*, vol. 140, no 4, p. 310-318, 2005

J.I. Vovchuk, and N.I. Poletaev, “The temperature field of a laminar diffusion dust flame”, *Combustion and Flame*, vol. 99, no 3-4, p. 706-712, 1994

X. Wang, “Etude de l’émissivité des solides et liquides des températures cryogéniques aux très hautes températures”, *Thèse de doctorat, Université de Paris 10*, 2015

S. Wang, S. Mohan, and E.L. Dreizin, “Effect of flow conditions on burn rates of metal particles”, *Combustion and Flame*, vol. 168, p. 10-19, 2016

R.P. Wilson Jr, and F.A. Williams, “Experimental study of the combustion of single aluminium particles in O2/Ar”, *Symposium (International) on Combustion*, vol. 13, no 1, p. 833-845, 1971

World Wildlife Fund, “L’impact du changement climatique sur la biodiversité au Cœur des Ecorégions prioritaires du WWF”, *La nature face au choc climatique*, 2018

R. Xu, “Particle characterization: light scattering methods”, *Springer Science & Business Media*, vol. 13, 2001

S. Yuasa, Y. Zhu, and S. Sogo, “Ignition and combustion of aluminum in oxygen/nitrogen mixture streams”, *Combustion and Flame*, vol. 108, no 4, p. 387-396, 1997

M. Zemp, M. Huss, E. Thibert, N. Eckert, R. McNabb, J. Huber, and L. Thomson, ”Global glacier mass changes and their contributions to sea-level rise from 1961 to 2016”, *Nature*, vol. 568, no 7752, p. 382-386, 2019

A. Zribi, “Fluxmètre thermique : conception, modélisation, réalisation et caractérisation. Mesure de températures et de densités de flux thermiques”, *Thèse de doctorat, Franche-Comté*, 2016

Liste des figures

I.1.1 *Évolution historique de la consommation énergétique mondiale et prévisions attendues selon le cas de référence IEO 2017 (IEA, 2017)* 3

I.1.2 *Évolution historique de la consommation énergétique mondiale par source d'énergie primaire et prévisions attendues selon le cas de référence IEO 2017 (IEA, 2017)* 4

I.1.3 *Répartition des émissions globales de gaz à effet de serre anthropogéniques en 2014 (IEA, 2017)* 4

I.1.4 *Évolution des émissions mondiales de $C0_2$ issues de la combustion de combustibles fossiles (IEA, 2017)* 5

I.1.5 *Évolution moyennée par décennie de l'anomalie de température globale de surface basée sur la période de référence entre 1951 et 1980 (Hansen, 2016)* 6

I.1.6 *Évolution annuelle du minimum de glace sur l'océan Arctique de 1979 à 2012 (source : NASA/Goddard Space Flight Center Scientific Visualization Studio, https://svs.gsfc.nasa.gov/3991)* 6

I.2.1 *Estimation des espèces menacées d'extinction d'ici 2080 pour différents scénarii sur l'anomalie de température prévue en 2100 (WWF, 2018)* 7

I.2.2 *Évolution historique des émissions nettes de gaz à effet de serre et tendances nécessaires pour atteindre différents seuils de réchauffement en 2100 (CAT, 2018)* 8

I.2.3 *Champs d'application des différents moyens de stockage existant selon leurs caractéristiques énergétiques (EPRI, 2010)* 9

I.3.1 *Illustration du concept de vecteur énergétique métallique* 10

I.3.2 *Comparaison des propriétés énergétiques de différents combustibles (Bergthorson, 2015)* 10

I.3.3 *Description du vecteur énergétique métallique basé sur l'aluminium* 11

I.3.4 *Schématisation du processus de réduction par électrolyse de l'alumine sans l'émission de CO_2 (Keniry, 2001)* 11

I.3.5 *Exemple de convertisseur énergétique fonctionnant aux poudres métalliques et appliqué à différents domaines industriels (Bergthorson, 2018) 12*

II.1.1 *Impact de la taille des particules d'aluminium sur la fraction massique de la couche d'oxyde naturellement présente sur la particule métallique (Sundaram, 2017) 16*

II.2.1 *Schématisation des différents modes d'oxydation possibles durant la phase d'allumage d'une particule d'aluminium (Sundaram, 2016) 17*

II.2.2 *Caractérisation des étapes d'oxydation d'une particule d'aluminium, possédant un diamètre entre 10 et 14 µm, par mesure thermogravimétrique (Trunov, 2006) 18*

II.2.3 *Séquence d'allumage d'une particule micrométrique en lévitation dans l'air grâce à l'utilisation d'un laser CO_2 (Braconnier, 2020) 19*

II.2.4 *Synthèse des résultats expérimentaux portant sur la température d'allumage d'une particule d'aluminium en fonction de sa taille (Huang, 2009) 20*

II.2.5 *Influence de la température de l'oxydant gazeux sur le délai d'allumage d'une particule d'aluminium pour différentes tailles (Parr, 2003)) 20*

II.2.6 *Schématisation des modes d'oxydation possibles durant la phase de combustion d'une particule d'aluminium (Bazyn, 2007) 22*

II.2.7 *Image d'une particule d'aluminium micrométrique, en combustion dans l'air à pression atmosphérique, obtenue par visualisation directe (Braconnier, 2020) 23*

II.2.8 *Séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium micrométrique dans un environnement CO à pression atmosphérique (Braconnier, 2020) 24*

II.2.9 *Schématisation simplifiée d'une particule d'aluminium en combustion dans un milieu oxygéné et sous un régime d'oxydation contrôlé par la diffusion (Han, 2019) 25*

II.2.10 *Illustration d'une séquence de combustion caractéristique d'une particule d'aluminium micrométrique dans l'air à pression atmosphérique (Braconnier, 2020) 26*

II.2.11 *Migration de l'alumine liquide nanométrique présent dans la flamme durant la combustion d'une particule d'aluminium micrométrique évoluant dans un mélange 40% CO_2 / 60% O_2 à pression atmosphérique (Braconnier, 2020) 27*

II.2.12 *Séquences de combustions caractéristiques d'une particule d'aluminium micrométrique évoluant dans différents mélanges oxydants CO_2 / N_2 à pression atmosphérique (Braconnier, 2020) 28*

II.2.13 *Création d'une couche solide de $Al_xO_yN_z$ en surface lors de la combustion en phase vapeur d'une particule d'aluminium millimétrique dans un mélange 50% H_2O / 50% N_2 à pression atmosphérique (Sarou-Kanian, 2003) 29*

II.2.14 *Diagramme de phase simplifié du pseudo-binaire AlN – Al_2O_3 (Hillert, 1992) 29*

II.3.1 *Cartographie des régimes de propagation d'une flamme prémélangée en fonction de la proportion en oxygène et de la concentration en aluminium (Julien, 2015) 30*

II.3.2 *Visualisation directe d'une flamme plate générée à la sortie d'un brûleur et issue d'un prémélange Al / air possédant une richesse de 1,30 (Julien, 2017) 30*

II.3.3 *Visualisation directe d'une flamme se propageant dans un nuage de particules d'aluminium micrométriques 200 ms après l'allumage à sa base (Julien, 2015) 31*

II.3.4 *Composition radiale des espèces gazeuses lors de la combustion en phase vapeur d'une particule d'aluminium avec un milieu oxydant 21% 0_2 / 79% Ar (Bucher, 2000) 32*

II.3.5 *Exemple du spectre d'émission brut d'une flamme se propageant à travers des particules d'aluminium nanométriques en suspension dans l'air (Bocanegra, 2007) 33*

II.3.6 *Clichés MEB des produits de réaction obtenus après la combustion d'un mélange particules Al nanométriques / air avec une richesse proche de 3 (Bocanegra, 2007) 33*

II.3.7 *Schématisation du processus de combustion d'un nuage de particules Al nanométriques en suspension dans l'air à l'échelle d'un agglomérat (Bocanegra, 2010) 34*

II.3.8 *Exemple d'un spectre d'émission d'une flamme métallique générée par un mélange particules Al micrométriques / air avec une richesse de 1,30 (Lomba, 2016) 34*

II.3.9 *Clichés MEB et MET des produits de réaction obtenus après la combustion d'un mélange particules Al micrométriques / air avec une richesse de 3 (Bocanegra, 2007) 35*

II.3.10 *Influence de la taille des particules sur le rendement de combustion des poudres d'aluminium et de magnésium en enceinte à volume constant (Lomba, 2016) 37*

II.3.11 Schématisation de l'élévation en température du gaz porteur et de l'état de matière des particules dans l'épaisseur d'une flamme prémélangée Al / air *(Han, 2019) 38*

II.3.12 Spectrogramme inversé en nuances de gris d'une flamme Al / air plate et comparaison de deux spectres acquis avec l'émission théorique de l'$AlO_{(g)}$ *(Soo, 2017) 39*

II.3.13 Évolution de la température de flamme obtenue via le spectre d'émission de l'$AlO_{(g)}$ selon la richesse d'un mélange particules Al microscopiques / air *(Lomba, 2019) ... 39*

II.3.14 Profil de température, concentration et luminance de l'$AlO_{(g)}$ et l'$Al_2O_{3(l)}$ pour une particule d'aluminium d = 200 µm en combustion dans l'air *(Bocanegra, 2007) 40*

II.3.15 Comparaison des données spectrales acquises lors de la combustion d'un nuage de particules avec le modèle radiatif utilisant deux hypothèses *(Bocanegra, 2007) 42*

II.3.16 Estimation de la température de la phase condensée selon l'hypothèse d'émissivité des particules lors de la combustion d'un mélange Al / air (*Bocanegra, 2007) 42*

II.3.17 Estimation numérique de l'évolution en température de la phase gazeuse au sein d'une flamme prémélangée Al / air selon la richesse des gaz frais *(Han, 2019) 43*

II.3.18 Schématisation à l'échelle microscopique d'une flamme métallique et de sa propagation dans les gaz frais prémélangés *(Han, 2019) 44*

II.3.19 Évolution du seuil d'énergie amorçant la combustion d'un nuage de particules d'aluminium selon la richesse et la granulométrie de la poudre *(Baudry, 2007) 45*

II.3.20 Image d'une tomographie laser réalisée sur une flamme plate issue d'un écoulement composé d'air et de particules d'aluminium micrométriques *(Julien, 2017) 45*

II.3.21 Traces de pression relevées lors d'essais de combustion Al / air réalisés en enceinte à volume constant pour différentes granulométries de poudre *(Lomba, 2016) 46*

II.3.22 Série d'images illustrant la propagation d'une flamme métallique dans un tube lors de la combustion d'un nuage de nanoparticules d'aluminium *(Bocanegra, 2007) .. 47*

II.3.23 Comparaison de la vitesse de flamme laminaire lors d'une combustion Al / air selon la richesse du mélange et la taille des particules métalliques *(Bocanegra, 2010) 47*

II.3.24 Influence de la taille des particules sur la vitesse de flamme laminaire pour la combustion d'un mélange Al / air avec une richesse de 0,85 *(Huang, 2009) 48*

III.1.1 *Représentation schématique du dispositif expérimental 51*

III.1.2 *Calibration du débitmètre numérique pilotant le flux d'air injecté au niveau de la buse Venturi (T_{amb} = 19,5 °C et P_{amb} = 99,75 kPa) 52*

III.1.3 *Schématisation du système de dispersion utilisé (adapté de la description du fonctionnement par le constructeur (https://www.palas.de/en/product/beg1000) 53*

III.1.4 *Répétabilité du système de dispersion pour une vitesse du tapis roulant à 2,1 mm/s et un débit en air injecté de 30 l/min 53*

III.1.5 *Évolution du débit massique en poudre d'aluminium à la sortie du Palas selon la vitesse du tapis roulant ($\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min)* 54

III.1.6 *Image CAO d'une vue en coupe de la tête du brûleur (Lomba, 2016)* 55

III.1.7 *Photo de la flamme prémélangée CH_4 / air au début de la phase d'ensemencement en particules* 55

III.1.8 *Image CAO du système de filtration complétant le dispositif expérimental* 56

III.2.1 *Clichés MEB de la poudre d'aluminium obtenus à travers les électrons secondaires pour différents grossissements* 57

III.2.2 *Évolution temporelle de la prise de masse des particules d'aluminium étudiées en thermogravimétrie selon le gabarit de température présenté (Lomba, 2016)* 58

III.2.3 *Dérivées de l'évolution en masse des poudres d'aluminium étudiées durant les analyses thermogravimétriques présentées sur la figure III.2.2 (Lomba, 2016)* 59

III.2.4 *Schématisation du montage du granulomètre à la sortie du dispositif expérimental durant les essais sans combustion* 59

III.2.5 *Distribution moyenne de la taille des particules d'aluminium présentes dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur lors d'essais sans combustion* 60

III.3.1 *Évolution du débit d'air aspiré par la buse Venturi en fonction du débit massique en poudre à la sortie du générateur pour $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min (Lomba, 2016)* 61

III.3.2 *Analyse numérique des lignes de courant et du champ de vitesse au sein de l'écoulement principal du brûleur pour $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min (Lomba, 2016)* 62

III.3.3 *Image de tomographie rapide à la sortie du brûleur lors d'un essai sans combustion, pour les conditions $V_{tapis} = 2{,}1$ mm/s et $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min (Lomba, 2016)* 63

III.3.4 *Profil de vitesse obtenu par PIV à la sortie du brûleur lors d'un essai sans combustion, pour les conditions $V_{tapis} = 2{,}1$ mm/s et $\dot{Q}_{air\ injecté} = 30$ l/min (Lomba, 2016)* 64

III.4.1 *Schématisation des appareils de mesure montés sur le banc d'essai (F_x : Filtre passe-bande, L_x : lentille plan-convexe, RNDF : Filtre neutre réfléchissant)* 65

III.4.2 *Photo du capteur de flux radiatif avant son montage sur le banc d'essai* 66

IV.1.1 *Schématisation macroscopique simplifiée de l'interaction lumière / particule traitée par la théorie de Mie* 68

IV.1.2 *Schématisation de la distribution spatiale de la lumière diffusée par une particule sphérique selon sa taille (Nayfeh, 2018)* 69

IV.1.3 *Schématisation macroscopique de l'interaction lumière / milieu traversé par la théorie de Beer-Lambert-Bouguer* *70*

IV.1.4 *Exemple de dispositif expérimental utilisant l'atténuation laser (Julien, 2014)* *72*

IV.1.5 *Méthode de calibration du coefficient d'extinction (Julien, 2014)* *72*

IV.1.6 *Position du faisceau laser permettant la détermination de la richesse* *73*

IV.1.7 *Configuration des moyens optiques durant la phase de calibration* *73*

IV.1.8 *Comparaison de l'évolution en masse du réservoir avec l'encrassement du brûleur et l'atténuation laser provoquée par l'écoulement prémélangé* *74*

IV.1.9 *Moyennes des coefficients d'extinction déterminées pour plusieurs points de fonctionnement du système de dispersion* *76*

IV.1.10 *Exemple de signaux relevés pendant un essai de combustion avec une flamme Al / air stabilisée et sans le fonctionnement de la diode laser* *76*

IV.1.11 *Densité spectrale de puissance des signaux bruts de la tension mesurée aux bornes des photodiodes* *78*

IV.1.12 *Densité spectrale de puissance du signal brut de la densité de flux radiatif obtenue avec le fluxmètre* *78*

IV.1.13 *Évolution du gain obtenu avec un filtre à réponse impulsionnelle infinie Butterworth pour différents ordres* *79*

IV.1.14 *Évolution du gain linéaire appliqué au phénomène fréquentiel composant le signal brut pour un filtre de Butterworth avec une coupure au-delà de 1 Hz* *80*

IV.1.15 *Effet du filtre de Butterworth d'ordre 12 avec une fréquence de coupure de 1 Hz sur les signaux bruts relevés pendant un essai avec combustion Al / air* *80*

IV.1.16 *Corrélation entre le signal filtré de la photodiode de contrôle et celui de la photodiode laser, lors d'une combustion Al / air avec une configuration sans la diode laser* *81*

IV.1.17 *Comparaison de la tension de la photodiode laser après filtrage, produite par l'ensemble flamme / panache, et de son estimation à partir de la photodiode de contrôle* *82*

IV.1.18 *Écart relatif constaté entre le signal réellement généré par la photodiode laser après filtrage et son estimation pendant une combustion Al / air stabilisée* *82*

IV.1.19 *Détermination de la richesse des gaz frais durant la combustion Al / air grâce à l'atténuation laser mesurée par la photodiode laser après correction de son signal* 83

IV.1.20 *Visualisation par tomographie laser rapide de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur pour une richesse en aluminium estimée à 1,22 (Lomba, 2014)* 84

IV.1.21 *Évolution de l'émissivité directionnelle spectrale d'un acier en fonction de son niveau d'oxydation (Ané, 1986)* 85

IV.1.22 *Exemple d'émissivité directionnelle spectrale d'un diélectrique (Rambure, 2010)* 85

IV.1.23 *Émissivité directionnelle totale de plusieurs matériaux (Modest, 2013)* 86

IV.1.24 *Visualisation directe de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur avec le filtre $AlO_{(g)}$* 87

IV.1.25 *Conversion de l'image en niveaux de gris ci-contre en une image par nuances Rouge-Vert-Bleu* 87

IV.1.26 *Visualisation directe de la flamme Al / air générée à la sortie du brûleur pour différents filtres placés devant la caméra* 88

IV.1.27 *Modification structurelle de la flamme Al / air, observée par visualisation directe avec le filtre $AlO_{(g)}$, en fonction du paramétrage de la flamme pilote CH_4 / air* 89

IV.1.28 *Exemple d'une séquence, obtenue avec le filtre $AlO_{(g)}$, représentative de l'évolution de la structure de la flamme Al / air durant un essai* 90

IV.1.29 *Exemple de la détection du contour entre la zone sombre et la partie des gaz frais sur une image de tomographie laser rapide (Lomba, 2016)* 91

IV.1.30 *Cartographie des vitesses obtenues par mesure PIV sur les particules condensées présentes dans le plan de symétrie de la flamme Al / air* 92

IV.1.31 *Schématisation de la parallèle au front de flamme Al / air et de sa normale locale sur une image de tomographie laser rapide* 92

IV.1.32 *Évolution de la composante de la vitesse subie par les particules condensées suivant la normale au front de flamme* 93

IV.1.33 *Zoom sur une image de tomographie laser rapide avec le tracé du contour issu de la détection par traitement d'images et sa correction via les données PIV* 94

IV.1.34 *Comparaison des vitesses moyennes de flamme laminaire Al / air, obtenues par correction avec les données PIV, avec les valeurs bibliographiques existantes* 95

IV.1.35 *Détection de la zone de réaction Al / air du côté des gaz brûlés lors de la visualisation directe avec le filtre $AlO_{(g)}$ et définition des paramètres géométriques* 96

IV.1.36 *Évolution de la richesse des gaz frais et des caractéristiques géométriques associées à la flamme Al / air durant un essai représentatif* 96

IV.1.37 *Évolution de la hauteur moyenne de la flamme Al / air et du décollement de sa base par rapport au brûleur en fonction de la richesse de l'écoulement principal* 97

IV.1.38 *Évolution de la vitesse de flamme laminaire, adimensionnée par sa valeur stœchiométrique, selon la richesse Al / air des gaz frais et la technique de mesure employée* 98

IV.1.39 *Cliché MEB de la poudre d'aluminium issue du lot n°A par l'observation des électrons secondaires* 99

IV.1.40 *Cliché MEB de la poudre d'aluminium issue du lot n°B par l'observation des électrons secondaires* 99

IV.1.41 *Distribution de la taille des particules initiales selon leurs volumes pour différents lots de fabrication d'une même référence fournisseur en poudre* 99

IV.1.42 *Évolution de la structure de flamme Al / air à travers le filtre $AlO_{(g)}$ selon la variation granulométrique de la poudre au sein d'une même référence fournisseur* 100

IV.1.43 *Caractéristiques radiatives de la lampe de calibration en comparant les mesures obtenues par le fournisseur avec une courbe de prédiction* 101

IV.1.44 *Spectre d'émission brut de la lampe de calibration mesuré dans la configuration opératoire du spectromètre* 102

IV.1.45 *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la lampe de calibration et celui mesuré directement par le spectromètre* 103

IV.1.46 *Coefficient spectral de calibration pour un adimentionnement à 580 nm* 103

IV.1.47 *Exemple d'un spectre d'émission brut de la flamme Al / air obtenu dans la configuration opératoire du spectromètre* 104

IV.1.48 *Exemple d'un spectre d'émission réel de la flamme Al / air obtenu après la correction de l'intensité spectrale brute adimensionnée à 580 nm* 104

IV.1.49 *Détermination d'une température moyenne dans la phase condensée* 105

IV.1.50 *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme Al / air et les simulations du spectre d'émission de la phase condensée pour une seule température* 106

IV.1.51 *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme et la simulation des spectres d'émission de la phase condensée pour deux températures distinctes 107*

IV.1.52 *Comparaison entre le spectre d'émission réel de la flamme à l'allumage et la simulation des spectres d'émission de la phase condensée pour deux températures 108*

IV.1.53 *Évolution de la température en surface de la goutte métallique et de celle des particules d'alumine nanométriques durant un essai de combustion Al / air 109*

IV.1.54 *Évolution de la composition du spectre d'émission de la zone de réaction durant un essai de combustion Al / air 110*

IV.1.55 *Évolution de la température des particules d'alumine nanométriques et de la richesse des gaz frais durant un essai de combustion Al / air 111*

IV.1.56 *Évolution de la température des particules d'alumine nanométriques dans la zone de réaction en fonction de la richesse en aluminium des gaz frais 111*

IV.1.57 *Évolution de la composition du spectre d'émission de la zone de réaction en fonction de la richesse en aluminium des gaz frais 112*

IV.2.1 *Représentation schématique de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la matière d'un échantillon lors d'une visualisation par MEB ou MET (Kwiecińska, 2019) 115*

IV.2.2 *Description schématique du fonctionnement d'un MEB (Kwiecińska, 2019) 116*

IV.2.3 *Description schématique du fonctionnement d'un MET (Kwiecińska, 2019) 117*

IV.2.4 *Photos des produits de combustion collectés par la sonde de prélèvement 118*

IV.2.5 *Vue générale des produits de combustion solides obtenue par MEB 118*

IV.2.6 *Vue détaillée des produits de combustion solides obtenue par MEB 119*

IV.2.7 *Images MEB identifiant une sphère micrométrique positionnée au-dessus de particules nanométriques et une agglomération de plusieurs cubes micrométriques 120*

IV.2.8 *Vue générale des produits de combustion solides nanométriques, dispersés sur une membrane en carbone amorphe trouée, obtenue par une visualisation au MET 120*

IV.2.9 *Vues détaillées des produits de combustion solides nanométriques obtenues par une visualisation au MET réalisée avec le mode image en champ clair 121*

IV.2.10 *Répartition en taille des produits de combustion solides nanométriques 121*

IV.2.11 *Analyse chimique de la sphère micrométrique présente au centre de l'image de gauche sur la figure IV.2.7 obtenue à travers la sonde EDX du MEB 122*

IV.2.12 *Analyse chimique d'un des cubes micrométriques présents au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.7 obtenue à travers la sonde EDX du MEB 122*

IV.2.13 *Comparaison des deux modes de visualisation possibles avec le MEB sur la surface de l'échantillon ayant subi un polissage 123*

IV.2.14 *Analyse chimique, obtenue à travers la sonde EDX du MEB, de la particule micrométrique tronçonnée présente au centre des images et des particules nanométriques faiblement concentrées présentes en partie basse des images de la figure IV.2.13 ..... 124*

IV.2.15 *Analyse chimique de la particule nanométrique non sphérique présente au centre de l'image de droite sur la figure IV.2.9 obtenue à travers la sonde EDX du MET 124*

IV.2.16 *Cliché de diffraction des produits de combustion solides nanométriques présentés sur la figure IV.2.8 obtenu au MET 125*

IV.2.17 *Diagramme de diffraction fournissant l'analyse des espèces cristallines présentes dans les produits de combustion nanométriques visibles sur la Figure IV.2.8 ..... 126*

IV.2.18 *Schématisation des phénomènes en jeu à l'échelle particulaire lors de la combustion en groupe de particules d'aluminium possédant un diamètre moyen de 7,5 µm 127*

IV.3.1 *Technique de mesure du flux radiatif à partir d'un seul point de mesure (Sivathanu, 1993) 128*

IV.3.2 *Technique de mesure du flux radiatif avec le modèle multipoints à partir de la rotation du capteur (Hankinson, 2012) 128*

IV.3.3 *Technique de mesure de la puissance radiative à partir des profils de la densité de flux rayonné (Bergman, 2013) 129*

IV.3.4 *Technique expérimentale utilisée pour obtenir le profil axial de la densité de flux radiatif 130*

IV.3.5 *Schématisation de l'intégration du profil axial de la densité de flux rayonné 130*

IV.3.6 *Comportement du fluxmètre pour une sollicitation laser à 532 nm 131*

IV.3.7 *Profil axial de la densité de flux rayonnée par une flamme de diffusion CH_4 / air ... 132*

IV.3.8 *Image d'une flamme de diffusion CH_4 / air générée sur le brûleur 132*

IV.3.9 *Effet de la vitesse d'éjection du combustible sur la fraction d'énergie rayonnée par les flammes de diffusion (Brzustowski, 1975)* *133*

IV.3.10 *Profil axial de la densité de flux rayonnée par une flamme prémélangée CH_4 / air* *134*

IV.3.11 *Image d'une flamme prémélangée CH_4 / air générée sur le brûleur* *134*

IV.3.12 *Déroulement complet d'un essai avec le fluxmètre positionné à 100 mm au-dessus de la sortie de brûleur* *136*

IV.3.13 *Image de l'allongement de la flamme Al / air en fin de vie* *138*

IV.3.14 *Image de la déstructuration de la flamme Al / air avant soufflage* *138*

IV.3.15 *Exemple de données expérimentales utilisables et filtrées à 1 Hz pour un positionnement du fluxmètre à 100 mm de la sortie du brûleur* *139*

IV.3.16 *Évolution de la puissance surfacique rayonnée en fonction de la richesse Al / air pour différentes positions verticales du fluxmètre* *139*

IV.3.17 *Profils axiaux de la densité de flux radiatif, reçue par le fluxmètre à 135 mm de l'axe du brûleur, pour la flamme Al / air et la flamme prémélangée CH_4 / air* *140*

IV.3.18 *Comparaison des profils axiaux de la densité de flux radiatif adimensionnée pour la flamme Al / air et la flamme prémélangée CH_4 / air* *141*

IV.3.19 *Caractérisation du rayonnement perçu par le fluxmètre, pour une configuration avec et sans tube emmanché, en utilisant une source radiative ponctuelle* *142*

IV.3.20 *Effet de la réduction de l'angle de vue du fluxmètre sur les mesures de la densité de flux radiatif adimensionnée d'une flamme Al / air avec une richesse de 0,95* *143*

IV.3.21 *Comparaison de la puissance chimique potentielle en jeu et de la puissance radiative générée par l'ensemble flamme / panache en fonction de la richesse du mélange* *144*

IV.3.22 *Évolution de la part rayonnée en fonction de la concentration en particules pour une flamme prémélangée aluminium / air* *145*

Liste des tableaux

II.3.1 *Influence de la granulométrie des poudres sur les produits de réaction solides obtenus après la combustion d'un mélange Al / air stœchiométrique (Baudry, 2007) …….. 36*

III.2.1 *Granulométrie moyenne des particules d'aluminium présentes dans l'écoulement principal à la sortie du brûleur lors d'essais sans combustion …… 60*

IV.1.1 *Valeurs des constantes de l'équation (IV.1.27) optimisées pour les données fournisseur sur l'irradiance spectrale de la lampe de calibration …… 101*

Pascal LABOUREUR

Caractérisation expérimentale d'une flamme prémélangée aluminium / air

Résumé :

Face à l'intensification du dérèglement climatique et du réchauffement planétaire durant ces dernières décennies, les enjeux sociétaux et environnementaux liés à la transition énergétique deviennent prépondérants. L'intermittence des différentes sources d'énergies renouvelables, associée aux difficultés pour stocker massivement l'énergie résultante, limite le déploiement généralisé de ces solutions décarbonées et pousse à rechercher de nouveaux vecteurs énergétiques propres. Une alternative aux énergies fossiles traditionnelles pourrait être les poudres métalliques en raison de leurs propriétés énergétiques intéressantes. L'énergie serait alors directement véhiculée par ces poudres selon un cycle itératif simple, sans la création de déchets ou de gaz à effet de serre. Cependant, le potentiel de ce vecteur reste encore à être démontré et certains verrous techniques et scientifiques subsistent dans les phases de stockage et de restitution de l'énergie. Cette thèse se focalise sur l'étape d'oxydation des particules métalliques et participe à évaluer les capacités de restitution énergétique de ce nouveau vecteur en étudiant une flamme prémélangée aluminium / air générée à la sortie d'un brûleur de type Bunsen. Les objectifs consistent en la caractérisation des propriétés fondamentales de la flamme métallique et l'estimation de paramètres nécessaires au dimensionnement d'un convertisseur énergétique basé sur l'utilisation de ces poudres d'aluminium. La vitesse de flamme laminaire, les températures de la phase condensée dans la zone de réaction ou encore le bilan énergétique global ont pu être déterminés sur le dispositif expérimental. Il apparaît alors que l'aluminium possède des avantages majeurs pour une utilisation comme vecteur énergétique.

Mots clés : Aluminium, Poudre, Combustion, Flamme prémélangée, Rayonnement, Vecteur énergétique

Experimental characterization of an aluminum / air premixed flame

Summary :

In view of the intensification of climate change and global warming in recent decades, the societal and environmental challenges linked to the energy transition become essential. The intermittence of renewable energy sources, associated with the difficulties of massively storing the resulting energy, nevertheless slows down the widespread deployment of these carbon-free solutions and push to seek new clean energy carriers. An alternative to traditional fossil fuels could be metal powders because of their interesting energy properties. The energy would then be directly conveyed by these metal powders through a simple iterative cycle, without the creation of waste or greenhouse gases. However, the potential of this energy carrier remains to be demonstrated and several technical and scientific issues still exist in the phases of energy storage and release. This PhD thesis focuses on the oxidation step of metal particles and participates to evaluate the energy restitution capacities of this new energy carrier by studying an aluminum / air premixed flame generated at the exit of a Bunsen-type burner. The objectives consist in the characterization of the metallic flame fundamental properties and the estimation of parameters necessary to design an energy converter based on aluminum powders. The laminar flame velocity, the temperature of the condensed phase in the reaction zone or even the overall energy balance could be determined on the experimental apparatus. It then appears that aluminum has serious advantages for an application as an energy carrier.

Keywords : Aluminum, Powder, Combustion, Premixed flame, Radiation, Energy carrier

Institut de Combustion Aérothermique Réactivité Environnement (UPR 3021)

1C Avenue de la Recherche Scientifique CS 50060, 45071 ORLEANS cedex 2