

+ 1101 (double)

N° d'Ordre : E.C.L. 91-26

Année 1991

THESE

présentée devant

L'ECOLE CENTRALE DE LYON

pour obtenir

le titre de **Docteur**

Spécialité : **TRANSFERTS THERMIQUES**

Par **M. Naceur AYACHI**

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA FORMATION DE LA
SUIE DANS LES MILIEUX EN COMBUSTION
PAR LES METHODES OPTIQUES BASEES SUR LA
DIFFUSION DE LA LUMIERE**

Soutenue le 19 juillet 1991 devant la Commission d'Examen

Jury MM. BRUN M.
HAUPAIS A.
LAHAYE J.
MARTIN J-M.
ZELLAT M.

N° d'Ordre : E.C.L. 91-26

Année 1991

THESE

présentée devant

L'ECOLE CENTRALE DE LYON

pour obtenir

le titre de **Docteur**

Spécialité : **TRANSFERTS THERMIQUES**

Par **M. Naceur AYACHI**

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA FORMATION DE LA
SUIE DANS LES MILIEUX EN COMBUSTION
PAR LES METHODES OPTIQUES BASEES SUR LA
DIFFUSION DE LA LUMIERE**

Soutenue le 19 juillet 1991 devant la Commission d'Examen

Jury MM. BRUN M.
HAUPAIS A.
LAHAYE J.
MARTIN J-M.
ZELLAT M.

N° d'Ordre : E.C.L. 91-26

Année 1991

THESE

présentée devant

L'ECOLE CENTRALE DE LYON

pour obtenir

le titre de **Docteur**

Spécialité : **TRANSFERTS THERMIQUES**

Par **M. Naceur AYACHI**

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA FORMATION DE LA
SUIE DANS LES MILIEUX EN COMBUSTION
PAR LES METHODES OPTIQUES BASEES SUR LA
DIFFUSION DE LA LUMIERE**

Soutenue le 19 juillet 1991 devant la Commission d'Examen

Jury MM. BRUN M.
HAUPAIS A.
LAHAYE J.
MARTIN J-M.
ZELLAT M.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
Chapitre A FORMATION DES PARTICULES DE SUIE DANS LES MILIEUX EN COMBUSTION	5
A-I/ Morphologie et structure cristalline des particules de suie	7
A-II/ Propriétés optiques des particules de suie.....	10
A-III/ Etapes de production et d'oxydation.....	13
A-III-1/ Pyrolyse.....	14
A-III-2/ Nucléation.....	14
A-III-3/ Croissance.....	15
a/ Introduction.....	15
b/ Coagulation	16
c/ Croissance de surface.....	19
A-III-4/ Oxydation des particules de suie.....	20
A-III-5/ Conclusion	21
A-IV/ Influence du mode de combustion	22
A-IV-1/ Flamme de prémélange	22
A-IV-2/ Flamme de diffusion gazeuse	22
a/ Flamme laminaire.....	23
b/ Flamme turbulente.....	23
A-IV-3/ Flamme de diffusion liquide	24
A-IV-4/ Autres systèmes de combustion	25
A-V/ Influence des paramètres physiques et chimiques.....	26
A-V-1/ Influence de la pression dans la flamme	26
A-V-2/ Influence de la température.....	27
A-V-3/ La structure du combustible.....	27
A-V-4/ Intervention ionique.....	27
A-V-5/ Conclusion	28
A-VI/ Formation de la suie dans un moteur Diesel	28
A-VI-1/ Généralités	28
A-VI-2/ Paramètres influant sur la formation des particules de suie...	29
A-VI-3/ Caractéristiques des particules de suie issues d'un moteur Diesel	29
A-VI-4/ Possibilités de réduction des particules de suie	34
A-VII/ Modélisation de la formation et de l'oxydation des particules de suie..	34
A-VII-1/ Formulation générale.....	34
A-VII-2/ Modélisation de Tesner [1971].....	35
A-VII-3/ Modélisations appliquées au moteur Diesel	35
a/ Formation	36
b/ Oxydation	36
c/ Conclusion	36

Chapitre B	PRINCIPE DE LA MESURE ET MOYENS EXPERIMENTAUX.....	39
B-I/	Les méthodes optiques en combustion.....	41
B-I-1/	Spectroscopie.....	41
B-I-2/	Pyrométrie optique.....	41
B-I-3/	Diffusion de la lumière.....	41
B-I-4/	Fluorescence.....	42
B-I-5/	Diffusion Raman.....	42
B-I-6/	Conclusion.....	42
B-II/	La diffusion de la lumière et ses applications.....	43
B-II-1/	Aspect théorique.....	43
a/	Définition des paramètres.....	43
b/	Théorie de Rayleigh.....	47
c/	Théorie de Mie.....	49
B-II-2/	Diffusion de la lumière - Généralités - Estimations.....	52
B-II-3/	Mesure de la taille et de la concentration de particules dans un nuage.....	54
a/	Méthode du rapport d'anisotropie (figure B-5-a).....	54
b/	Méthode du rapport de polarisation.....	55
c/	Méthode du coefficient d'extinction.....	56
d/	Méthode du rapport diffusion-extinction.....	57
e/	Remarques générales.....	59
B-II-4/	Indice de réfraction et incertitudes.....	60
B-II-5/	Distribution du diamètre dans le volume de mesure.....	62
B-III/	Banc de mesures optiques.....	63
B-III-1/	Dispositif expérimental.....	63
B-III-2/	Influence de la précision de l'alignement sur la mesure.....	64
B-III-3/	Mesure du diamètre des billes de latex calibrées.....	66
Chapitre C	CARACTERISATION DES PARTICULES DE SUIE DANS UNE FLAMME LIBRE.....	69
C-I/	Applications précédentes de la diffusion de la lumière aux flammes laminaires de diffusion.....	71
C-II/	Dispositifs expérimentaux.....	74
C-II-1/	Principe.....	74
C-II-2/	La flamme expérimentale.....	74
C-II-3/	Le montage optique.....	75
C-III/	Mise en oeuvre de la méthode de diffusion-extinction.....	75
C-IV/	Etude des résultats expérimentaux.....	76
C-IV-1/	Résultats généraux.....	76
C-IV-2/	Paramètres cinétiques.....	77
a/	Nucléation.....	77
b/	Coagulation.....	77
c/	Recombustion des particules de suie.....	77
C-IV-3/	Conclusion.....	78

Chapitre D	MESURE INSTANTANEE DE LA TAILLE ET DE LA CONCENTRATION DES PARTICULES DE SUIE DANS LA CHAMBRE DE COMBUSTION D'UN MOTEUR DIESEL	93
D-I/	Support expérimental.....	95
D-I-1/	Le moteur Diesel utilisé.....	95
D-I-2/	Acquisition de données expérimentales.....	96
D-II/	Mesure locale du diamètre et de la concentration par les techniques de diffusion.....	101
D-II-1/	Choix de la méthode	101
D-II-2/	Coexistence de deux types de particules diffusantes 101	
D-II-3/	Montage optique.....	103
D-II-4/	Résultats des essais	106
a/	Conditions expérimentales	106
b/	Etalonnage des photomultiplicateurs	108
c/	Distinction suie-gouttelettes.....	109
d/	Evolution instantanée des particules de suie au cours d'un cycle	111
D-II-5/	Conclusion	111
D-III/	Mesure du volume de suie dans la chambre par atténuation de la lumière	119
D-III-1/	Bases théoriques.....	119
D-III-2/	Montages optiques	120
D-III-3/	Résultats et interprétation.....	124
a/	Mesures ponctuelles et globales	124
b/	Mesure par cinématographie rapide	131
D-IV/	Conclusion.....	139
CONCLUSION	141
ANNEXES	145
ANNEXE 1	Théorie de Mie.....	147
ANNEXE 2	Loi de Beer-Lambert.....	149
ANNEXE 3	Détection synchrone	151
ANNEXE 4	Lois de probabilité	157
ANNEXE 5	Caractéristiques du moteur LDA-100 dans sa version modifiée [Monteiro, 1987].....	159
ANNEXE 6	Résolution de la pelure d'oignon.....	161
BIBLIOGRAPHIE	163

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Machines Thermiques de l'Ecole Centrale de Lyon, sous la direction de Monsieur le Professeur M. BRUN. Je le prie de bien vouloir trouver ici l'expression de ma reconnaissance et de mes sentiments respectueux.

Monsieur J. LAHAYE, Directeur du Centre de Recherche sur la Physico-Chimie - MULHOUSE (68) m'a fait l'honneur de présider le Jury. Je lui en exprime ici toute ma gratitude.

J'adresse également tous mes remerciements pour leur participation à ce Jury à :

Monsieur A. HAUPAIS, Directeur du Centre de Recherche sur les Machines Thermiques - DARDILLY (69) ;

Monsieur J-M. MARTIN, Professeur au Laboratoire de Technologie des Surfaces de l'Ecole Centrale de Lyon ;

et Monsieur M. ZELLAT, Ingénieur à la Régie Nationale des Usines Renault (RNUR).

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur L.F. MONTEIRO qui a conçu et dessiné la culasse transparente dont l'importance est fondamentale dans ce travail.

Mes remerciements vont également à l'Agence Française pour la Maîtrise de l'Energie (AFME) ainsi qu'à la Régie Nationale des Usines Renault (RNUR) pour leur support financier.

Je remercie tout particulièrement Messieurs P. LAURENT et G. FLUZIN pour les nombreux conseils qu'ils m'ont prodigués afin de surmonter les problèmes d'ordre informatique rencontrés.

Monsieur J-M. VIGNON a été sollicité pour venir à bout de problèmes aussi bien expérimentaux que théoriques. Qu'il trouve ici l'expression de mes sincères remerciements.

Je tiens aussi à exprimer ma gratitude à Monsieur R. POINT, Maître de Conférences au Département de Machines Thermiques, qui m'a aidé dans la conception et la réalisation des instruments électroniques.

Que Messieurs GARAUDEE et HARDIANTO trouvent ici toute ma reconnaissance pour avoir fait avec moi les premiers pas (les plus difficiles) dans ce travail.

Je tiens également à remercier pour sa sollicitude toute l'équipe technique du Laboratoire pour la réalisation des pièces mécaniques et l'édition du document final. Je tiens à souligner l'importance et la qualité de leur travail.

NOTATIONS

Caractères latins

C_{abs}	Section efficace d'absorption (m^2)
C_{diff}	Section efficace de diffusion (m^2)
C_{ext}	Section efficace d'extinction (m^2)
$C_{XY,\Omega}$	Section efficace de diffusion angulaire dans la direction X pour une polarisation Y ($m^2.sr^{-1}$)
D	Diamètre (apparent) de particules sphériques (nm)
F_v	Fraction volumique de particules de suie ($m^3.m^{-3}$)
F_v, TPN	Les gaz étant ramenés aux conditions TPN
f	Focale d'une lentille (mm)
HPA	Hydrocarbures Polycycliques Aromatiques
h	Constante de Planck = $6,63 \cdot 10^{-34}$ J.s
Im()	Partie imaginaire d'un complexe
ID	Abréviation indiquant un moteur Diesel à Injection Directe
II	Abréviation indiquant un moteur Diesel à Injection Indirecte (à préchambre)
i	$\sqrt{-1}$: Racine complexe de (-1)
k_B	Constante de Boltzmann = $1,38 \cdot 10^{-23}$ J.K ⁻¹
K_{ext}	Coefficient d'extinction (m^{-1})
K_n	Nombre de Knudsen d'un aérosol
k_{th}	Constante de la vitesse de coagulation ($m^3.s^{-1}$)
$K_{XY,\Omega}$	Coefficient de diffusion angulaire pour une onde diffusée polarisée suivant X pour une onde incidente polarisée suivant Y
k	Partie imaginaire de l'indice de réfraction
L	Longueur de flamme traversée par le faisceau Laser (m)
LLS	Laser Light Scattering : terme regroupant toutes les techniques de caractérisation d'aérosols par diffusion de la lumière
m_e	Masse de l'électron (kg)
M_s	Masse de suie par unité de volume de gaz = $F_v \times \rho_s$
m	Indice de réfraction complexe d'un milieu ($m = n - i.k$)
N	Concentration : nombre de particules par unité de volume (m^{-3})
n	Partie réelle de l'indice de réfraction
P(D)	Distribution de probabilité du diamètre des particules (m^{-1})
PMH	Point Mort Haut : situation du piston d'un moteur alternatif à combustion interne lorsqu'il est à l'extrémum de sa course du côté culasse

P_x	Pression partielle d'un constituant x dans un mélange de gaz
Q_{abs}	Facteur d'efficacité d'absorption
Q_{diff}	Facteur d'efficacité de diffusion
Q_{ext}	Facteur d'efficacité d'extinction
R	Constante des gaz parfaits = $8,31 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$
$Re()$	Partie réelle d'un complexe
S	Surface totale de la suie par unité de volume de gaz = $N.\pi.D^2$ ($\text{m}^2 . \text{m}^{-3}$)
T	Température (K)
t	Temps (s)
u_m	Unité de masse atomique
V	Volume de mesure (m^3)
TPN	Conditions de température et de pression normales

Caractères grecs

α	Paramètre de taille $\left(\frac{\pi D}{\lambda}\right)$
Φ	Flux d'énergie, puissance (W)
Φ_λ	Flux d'énergie monochromatique (W.m^{-1})
$\Phi_{\lambda,\Omega}$	Flux d'énergie monochromatique angulaire ($\text{W.m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$)
Φ_Ω	Flux d'énergie angulaire (= Intensité) (W.sr^{-1})
γ	Rapport de polarisation
γ_i	Efficacité de collision
φ	Densité de flux (W.m^{-2})
λ	Longueur d'onde d'un rayonnement (nm)
θ	Angle de mesure dans le plan d'observation (rad ou degrés)
ρ_s	Masse volumique de la suie (kg.m^{-3})
σ	Ecart-type d'une loi de probabilité
τ	Transmission
Ω	Angle solide (sr)

Symboles

\sim	Signe de proportionnalité entre deux paramètres
$ \dots $	Module d'un complexe
$\langle \dots \rangle$	Valeur moyenne d'un paramètre
\ln	Logarithme népérien

INTRODUCTION

INTRODUCTION

Dans la majorité des procédés de libération d'énergie par combustion d'hydrocarbures (fours, chaudières, moteurs alternatifs ...), il se forme des produits indésirables tels que : NO_x , SO_2 , CO , CO_2 , suie et hydrocarbures polycycliques aromatiques (HPA). Ces polluants sont en général nocifs pour l'environnement et la santé de l'homme. En particulier, et bien que ce point soit parfois controversé, la suie accompagnée d'HPA est réputée cancérigène. Des efforts importants sont donc actuellement réalisés pour réduire la quantité de suie émise par les moteurs soit en diminuant la masse de suie formée au cours de la combustion soit en éliminant les particules émises à l'échappement. Néanmoins, et malgré l'abondance des travaux sur le premier point, le procédé exact de formation d'une particule de suie à partir de l'hydrocarbure initial n'est pas encore totalement élucidé.

L'objectif de ce travail est alors de mieux comprendre ce mécanisme de formation et d'oxydation de ces particules afin de permettre aux constructeurs concepteurs de moteurs d'une part de définir les procédés de réduction de polluants les plus adéquats et d'autre part de mettre au point des modèles de production de suie susceptibles d'être utilisés dans des codes de calcul en vue d'études paramétriques.

Le premier chapitre de cet exposé est consacré à une présentation de l'état des connaissances dans ce domaine. Ainsi, nous décrirons la morphologie et la structure cristalline des particules de suie puis les principales étapes de leur formation : pyrolyse de l'hydrocarbure initial, nucléation, croissance, agrégation et enfin oxydation partielle ou totale. Nous reviendrons sur les différents systèmes de combustion à l'origine de la formation de la suie et nous nous intéresserons en particulier au moteur Diesel.

Expérimentalement, les moyens de mesure susceptibles d'être utilisés pour la caractérisation de la suie sont multiples, mais on peut les classer en deux catégories : la première comprend les méthodes qui consistent à analyser un échantillon de suie prélevé dans le système en combustion, alors que la deuxième est constituée par toutes les mesures optiques in-situ. Ces dernières présentent l'avantage d'être instantanées et en général de ne pas perturber le système étudié. Nous avons choisi parmi ces méthodes celles basées sur la théorie de la diffusion de la lumière.

Le deuxième chapitre sera consacré à un rappel des éléments essentiels de la théorie électromagnétique de Mie suivi de ses différents modes d'exploitation et le principe général de la mise en oeuvre de ces mesures sera décrit.

La première partie de l'étude expérimentale (troisième chapitre) portera sur une application de cette méthode à une configuration simple de flamme de diffusion laminaire. Elle permettra de valider une méthode de mesure de la distribution spatiale de la taille et de la concentration de particules et donnera les paramètres gérant la cinétique des particules au cours de leur évolution au sein de la flamme.

Transposée à un moteur Diesel (quatrième chapitre), cette méthode de mesure donnera l'évolution locale et instantanée du diamètre et de la concentration de particules de suie dans la chambre de combustion. Des mesures d'atténuation de la lumière permettront par ailleurs de déterminer la valeur moyenne de la fraction volumique sur une traversée de la chambre de combustion. Dans le cadre de ces mesures, la distribution spatiale et temporelle de la quantité de suie ainsi que l'influence de la température de l'air admis seront étudiées.

Nous concluons enfin sur des perspectives d'utilisation plus larges de l'outil expérimental ainsi réalisé.

CHAPITRE A

FORMATION DES PARTICULES DE SUIE DANS LES MILIEUX EN COMBUSTION

Dans les milieux organiques en combustion certaines molécules d'hydrocarbures formées dans des zones localement riches peuvent donner naissance au cours de réactions globalement déshydrogénantes à des particules de suie, particules dont la taille ne dépasse pas le micron et constituées d'un noyau de carbone sur lequel peuvent être adsorbés des hydrocarbures lourds. La rapidité de ce processus de formation - 1 à 500 ms- permet de le rencontrer dans les moteurs alternatifs à combustion interne.

A-I/ Morphologie et structure cristalline des particules de suie

A la fin de leur processus de formation, les particules de suie se présentent sous forme d'agrégats de quelques dizaines d'éléments presque sphériques : les "sphérules". Chacune d'entre elles contient environ 10^5 atomes de carbone et un nombre d'atomes d'hydrogène sensiblement dix fois plus faible [Smith, 1981]. Leur rapport H/C est ainsi voisin de 0,1 alors que pour les molécules de l'hydrocarbure initial ce même rapport est supérieur à 1. La taille de ces sphérules dépend peu du mode de combustion (turbine, moteur Diesel ou flamme de laboratoire) et se situe entre 10 et 40 nm [Palmer, 1965], exception faite des systèmes pyrolytiques où elle peut atteindre 500 nm selon Lahaye et col.[1981].

Chaque sphérule de la particule de suie est constituée d'un assemblage continu de cristallites (10^3 environ) orientées aléatoirement sauf près du bord où les plans des cristallites sont parallèles à la surface de la particule. Ces cristallites sont formées de 2 à 5 plans (appelés platelettes) distants de 0,34 à 0,36 nm. Les observations par diffraction de rayons X ont montré que la structure cristalline de ces platelettes de noir de carbone est voisine de celle du graphite : les atomes de carbone sont situés sur des sommets d'hexagones adjacents constituant des plans parallèles entre eux. Toutefois, contrairement au cas du graphite, ces hexagones sont orientés de façon aléatoire dans leur plan constituant ainsi une structure appelée "turbostratique" [Smith, 1981].

Il faut noter que les observations microscopiques montrent que dans la particule finale, l'agrégat, il y a une continuité structurelle d'une sphérule à sa voisine.

La masse volumique des particules de suie se situe autour de 2.10^3 kg.m^{-3} . Selon les auteurs, les valeurs proposées ou choisies sont 1,8 [d'Alessio, 1974; Muller-Dethlefs, 1979]; 1,85 [Neoh, 1980] et 2.10^3 kg.m^{-3} [Wersborg, 1968; Wersborg et col., 1973; Haynes et col., 1978, Kent et col., 1982]. Dans ce travail, nous avons choisi la valeur de 2.10^3 kg.m^{-3} . Pour le graphite, cette masse volumique est de $2,25.10^3 \text{ kg.m}^{-3}$. Cet écart provient probablement de la distance entre plans parallèles qui est moins élevée pour le graphite : 0,33 nm au lieu de 0,34 à 0,36.

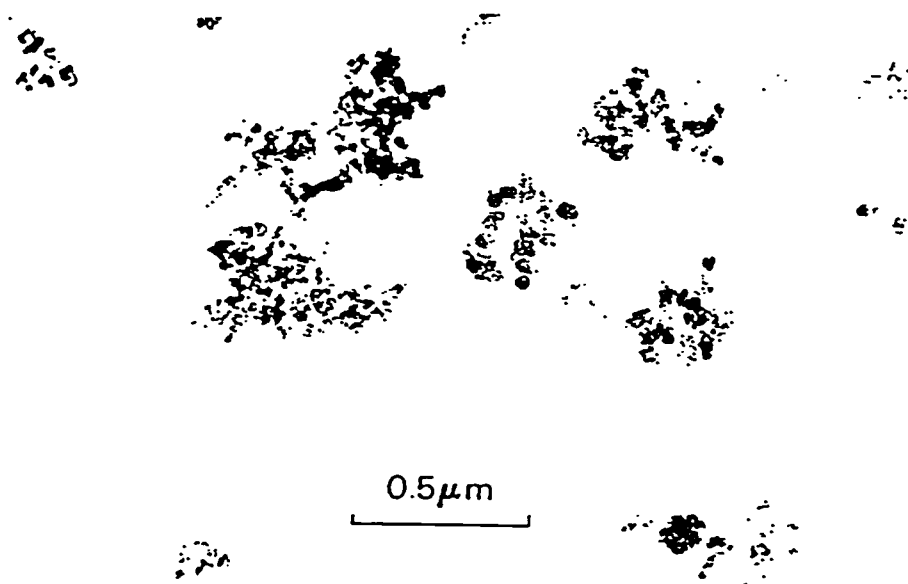


Figure A-1-a Agrégats de particules de suie observés au microscope électronique [Lahaye et col., 1981]

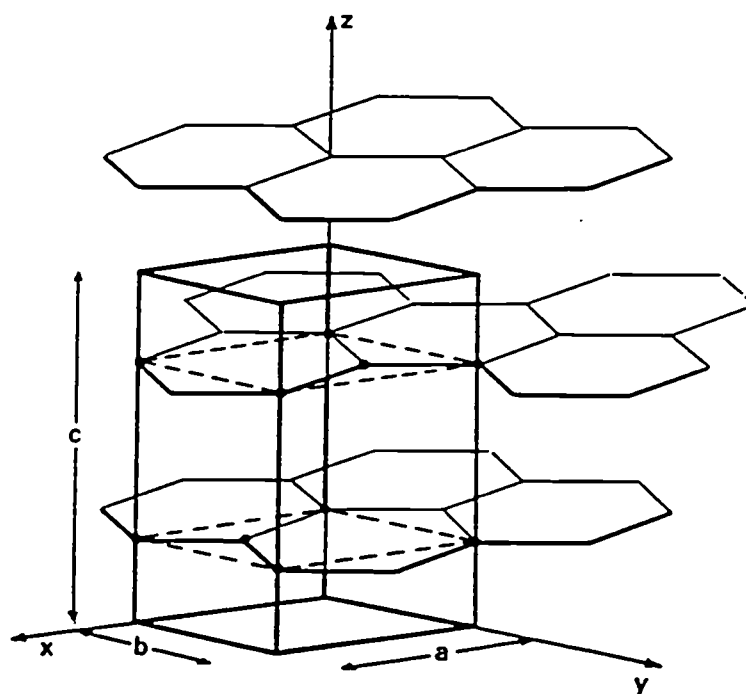


Figure A-1-b Structure du graphite [Lahaye et col., 1981]

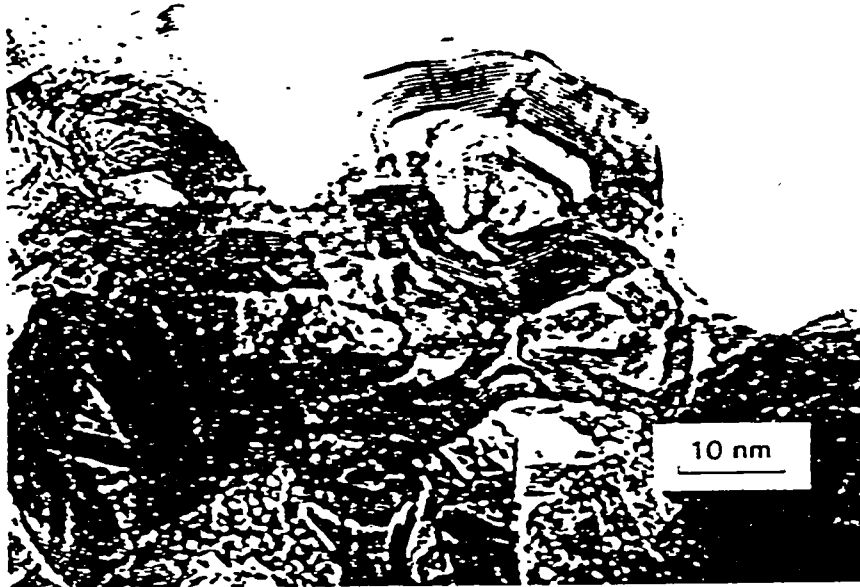
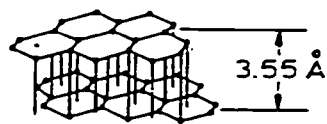
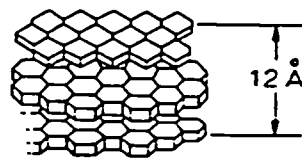


Figure A-1-c Agrandissement d'une particule de suie [Donnet et col., 1976]



PLATELETTE



CRYSTALLITE



SPHERULE

Figure A-1-d Sous-structures des particules de suie [Broome et col., 1971]

A-II/ Propriétés optiques des particules de suie

L'indice complexe de réfraction, du fait de ses implications dans les diverses techniques de mesures optiques, est une caractéristique importante des particules de suie. Sa partie réelle relie la vitesse de la lumière dans la particule à celle mesurée dans le vide - c'est l'indice de réfraction couramment utilisé en optique géométrique - tandis que sa partie imaginaire décrit l'absorption de la lumière par la particule.

Ce paramètre est nécessaire, comme nous le verrons plus loin, à l'application de la théorie optique de Mie et doit de ce fait être évalué de la façon la plus précise possible.

Dalzell et col. [1969], Chippett et col. [1978] ont déterminé cet indice en comparant les valeurs calculées et mesurées de l'atténuation de la lumière par la suie.

Il a été également mesuré à plusieurs reprises par réfractométrie :

- Howarth et col. [1966],
- Foster et col. [1968].

Mais les propriétés optiques d'un corps peuvent aussi être calculées à partir de la théorie classique de l'interaction matière-rayonnement. Dans ce cas le solide est représenté par une série d'oscillateurs linéaires ayant une fréquence propre bien déterminée. L'indice de réfraction complexe $m = n - i k$ satisfait alors aux relations suivantes dites "de dispersion" [Habib et col., 1988] :

$$n^2 - k^2 = 1 + \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \sum_{j=1}^2 \frac{N_j (\omega_j^2 - \omega^2)}{(\omega_j^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 g_j^2} - \frac{e^2}{m_e^o \epsilon_0} \cdot \frac{N_f}{\omega^2 + g_f^2} \quad (1)$$

$$2 n k = \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \sum_{j=1}^2 \frac{N_j \omega g_j}{(\omega_j^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 g_j^2} + \frac{e^2}{m_e^o \epsilon_0} \cdot \frac{N_f g_f}{\omega (\omega^2 + g_f^2)} \quad (2)$$

Dans ces expressions m_e est la masse de l'électron, e sa charge, ϵ_0 la permittivité du vide, N_j la densité d'électrons, ω_j les fréquences propres, g_j les facteurs d'amortissement et ω la fréquence de la lumière incidente tandis que m_e^o représente la masse effective des électrons libres qui tient compte du fait que leur déplacement ne s'effectue pas dans le vide [Habib et col., 1988] : $m_e^o = m_e / 18$ [Lee et col., 1981]. Enfin l'indice j correspond aux électrons liés ($j = 1$ correspond aux 3 électrons de la liaison τ et $j = 2$ à celui de la liaison π [Howarth et col., 1966]) et l'indice f aux électrons libres.

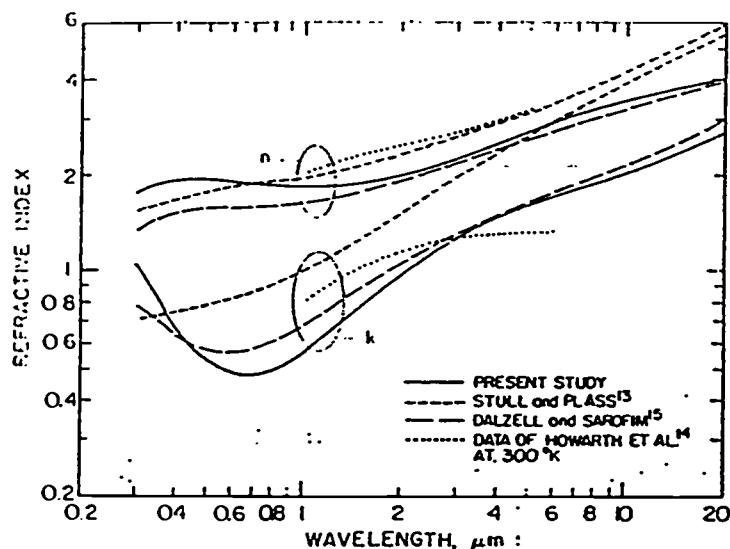


Figure A-2 Evolution spectrale de l'indice de réfraction donnée par différentes études [Lee et col., 1981]

De tels modèles de dispersion ont été utilisés par plusieurs auteurs : Dalzell et col. [1969], pour des particules de suie prélevées dans des flammes de diffusion d'acétylène et de propane, Lee et col. [1981] pour celles provenant de la combustion de polystyrène, de plexiglass ou d'iso-octane et Habib et col. [1988] dans le cas d'un prémélange de méthane, d'éthylène ou de propane avec de l'oxygène.

Le tableau A-1 donne les constantes utilisées dans les trois études précédentes tandis que les évolutions spectrales de l'indice de réfraction données par ces auteurs sont présentées sur la figure A-2.

Habib et col. [1983] ont montré que l'indice de réfraction complexe est sensible à la nature du combustible par l'intermédiaire du rapport H/C de la particule de suie. En effet, la présence d'hydrogène réduit le nombre d'électrons libres intervenant dans les relations (1) et (2).

Les valeurs numériques de l'indice de réfraction donné par ces études diffèrent alors principalement du fait qu'elles se rapportent à des particules de suie provenant de combustibles différents.

Le modèle de Lee et col. [1981] tient compte par ailleurs de la température et permet de vérifier que cette dépendance reste relativement faible pour les hautes températures.

Enfin on peut observer sur la figure A-2 une concordance relativement bonne entre les résultats des études expérimentales de Howarth et ceux donnés par le modèle de dispersion. Mais ce dernier présente, en outre, l'avantage de permettre des études paramétriques.

Auteurs	N_f (m^{-3})	N_1 (m^{-3})	N_2 (m^{-3})	g_f ($10^{-15} s^{-1}$)	g_1 ($10^{-15} s^{-1}$)	g_2 ($10^{-15} s^{-1}$)
Dalzell et col.[1969]	$4,0 \cdot 10^{27}$	$2,69 \cdot 10^{27}$	$2,86 \cdot 10^{27}$	6,0	6,0	7,25
Lee et col.[1981]	$4,0 \cdot 10^{25}$	$4,07 \cdot 10^{27}$	$4,0 \cdot 10^{27}$	1,2	5,9	5,6
Habib et col.[1988]	$7,0 \cdot 10^{24}$	$1,67 \cdot 10^{27}$	$1,67 \cdot 10^{28}$	1,2	7,0	5,6

$$\omega_1 = 1,25 \cdot 10^{-15} s^{-1} \quad ; \quad \omega_2 = 7,25 \cdot 10^{-15} s^{-1}$$

Tableau A-1 Constantes du modèle de dispersion

A-III/ Étapes de production et d'oxydation

Ce paragraphe est consacré à la description des étapes menant de l'hydrocarbure initial à l'agrégat final à travers les transformations successives suivantes : pyrolyse, nucléation, croissance de surface, coalescence, agrégation et oxydation. Ce schéma de développement est représenté sur la figure A-3.

Précisons tout d'abord que pour décrire un nuage de particules de suie, nous utiliserons les paramètres suivants :

- N : concentration en nombre des particules de suie par unité de volume (m^{-3})
- F_v : fraction volumique de suie (m^3 de suie par m^3 de gaz : $m^3 \cdot m^{-3}$)
- D : diamètre des particules de suie sphériques ou diamètre équivalent (m)
- P(D) : distribution de probabilité des diamètres (m^{-1})

Ces paramètres sont naturellement liés entre eux par :

$$F_v = \int_0^{+\infty} \frac{\pi}{6} \cdot P(D) \cdot D^3 \cdot dD$$

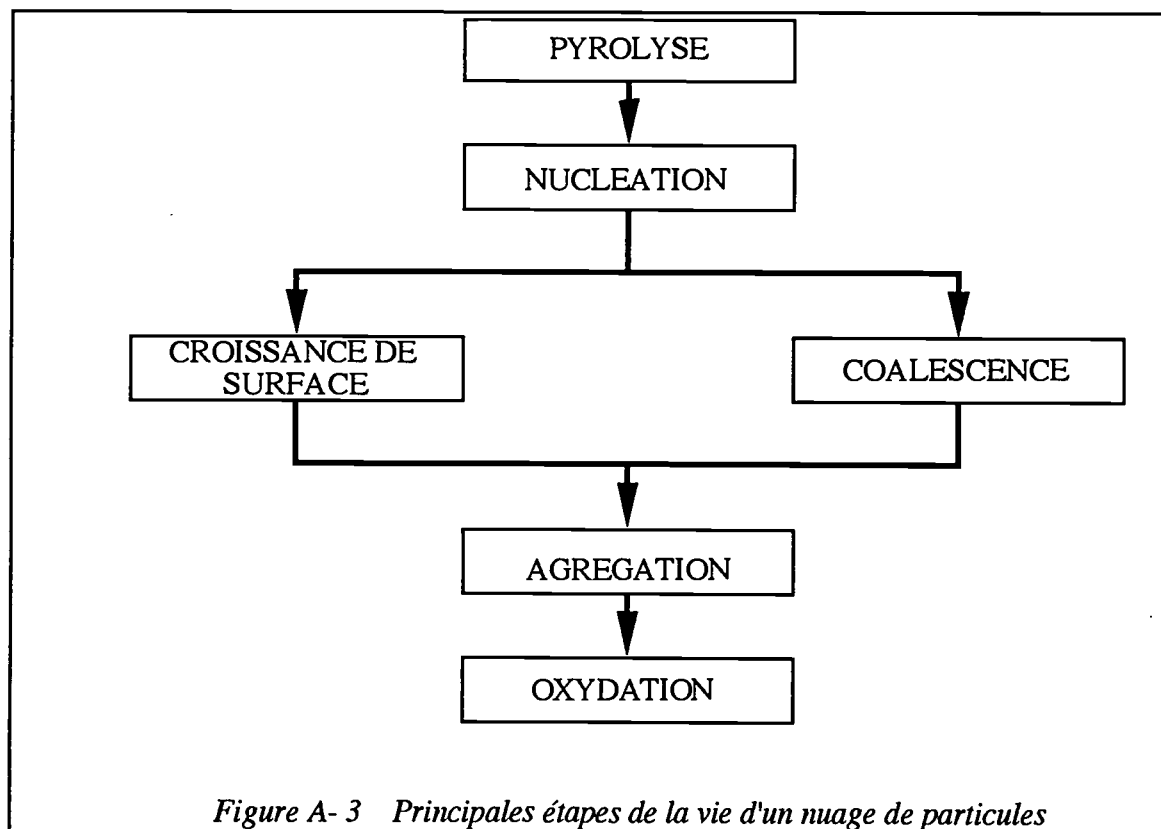


Figure A-3 Principales étapes de la vie d'un nuage de particules

A-III-1/ Pyrolyse

Lors des processus de combustion, les molécules d'hydrocarbures situées dans les zones à température élevée subissent d'abord une pyrolyse : ce processus donne des hydrocarbures moins saturés et plus légers ainsi que des hydrocarbures polycycliques aromatiques (HPA). Les réactions de pyrolyse sont en général endothermiques ce qui rend leur vitesse très dépendante de la température.

Dans des flammes de prémélange benzène-oxygène-argon produisant de la suie, Bittner et col. [1977] ont observé la formation progressive de HPA de plus en plus lourds (> 700 uma) qui atteignent une concentration maximale juste avant la couleur orange annonçant l'apparition de la suie. Le passage par des HPA apparaît ainsi comme une étape intermédiaire au cours de sa formation. Garo [1984], en étudiant les signaux de fluorescence laser, a trouvé un comportement similaire pour une flamme de diffusion de méthane.

L'apparition de ces molécules d'HPA est expliquée [Bittner et col., 1977] par une réaction entre les aliphatiques insaturés (principalement l'acétylène) formés au cours de la pyrolyse et les structures aromatiques. Celles-ci peuvent soit déjà être présentes dans l'hydrocarbure initial, soit se créer dans des réactions du type "Diels-Alders" [Smith, 1981].

A-III-2/ Nucléation

S'il est généralement admis que les HPA et les polyacétyléniques sont les précurseurs de la suie, le mécanisme exact du passage des HPA les plus lourds aux premiers noyaux de suie n'est pas encore totalement élucidé [Lahaye et col., 1986]. Dans les pyrolyses à basse température, Prado et col. [1981] expliquent l'apparition des premiers noyaux par une condensation des grosses molécules d'HPA en sursaturation suivie d'une pyrolyse progressive des gouttelettes. Dans le cas des flammes, compte tenu de leur température élevée, cette condensation ne pourrait avoir lieu que pour des molécules de masse très grande (2000 à 3000 uma). Les premières particules observées ayant une masse du même ordre, il apparaît ainsi qu'il s'agit de la même entité. La première particule résulterait donc dans ce cas d'une longue séquence de réactions chimiques aboutissant à la formation de macromolécules [Prado et col., 1981].

Graham [1976] a observé que dans les aérosols de suie formés pendant la pyrolyse d'hydrocarbures aromatiques à 1750 K, les collisions provoquent la coalescence des particules et non la formation de chaînes : cela confirme les hypothèses selon lesquelles la phase condensée dans de tels systèmes est constituée principalement d'espèces polyaromatiques en phase liquide qui se transforment progressivement en suie comme l'avaient suggéré Lahaye et col. [1974] ainsi que Jinno et col. [1976].

Le phénomène de nucléation peut être quantifié par le taux de nucléation défini comme étant le nombre de particules créées par unité de temps et de volume. Les valeurs trouvées pour ce taux de nucléation par différents auteurs sont données dans le tableau A-2.

Auteurs	Type de flamme	Taux de nucléation : $\text{cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$
Harris et col. [1986]	Flamme de prémélange d'éthylène	10^{14} à 10^{16}
Kent et col. [1981]	Flamme de diffusion laminaire d'éthylène	10^{14} à 10^{15}
Kennedy et col. [1987]	Flamme de contre- diffusion de propane	10^{16}
Wersborg et col. [1973]	Flamme plate de prémélange d'acétylène	10^{13}
Tesner et col. [1971]	Flamme de diffusion laminaire de naphthalène	10^{14} à 10^{15}
Kennedy et col. [1990]	Flamme de diffusion laminaire d'éthylène	10^{12} (Valeur adoptée pour un code de calcul)

Tableau A-2 Valeurs du taux de nucléation

A-III-3/ Croissance

a/ Introduction

L'augmentation de la taille des particules de suie résulte de deux processus :

- l'adsorption de molécules en phase gazeuse : croissance de surface,
- l'association de particules élémentaires : coagulation.

Comme l'ont indiqué Lahaye et col. [1986], l'adsorption est à l'origine de 90% de la masse de suie.

Lorsque l'adsorption cesse et que les particules continuent à coaguler, il se forme des chaînes. On n'obtient généralement pas ce type de structures dans le moteur Diesel car ce processus n'a pas le temps d'avoir lieu de façon significative : la coagulation cesse avant ou en même temps que l'adsorption.

Dans le cas où la coagulation de deux particules donne une particule sphérique, on parle de coalescence. Dans le cas contraire, on obtiendra un agrégat (chaîne de particules) qui peut redevenir sphérique si la croissance de surface est toujours suffisamment intense.

Ce sont ces deux phénomènes qui permettent d'expliquer la structure continue des agrégats que l'on observe au microscope électronique : d'une part la coagulation de particules plus ou moins visqueuses donnera une coalescence insuffisante mais une structure continue, d'autre part la croissance de surface régularisera davantage la surface de l'agrégat.

b/ Coagulation

Comme l'a observé Howard [1973], la croissance des particules de suie fait passer progressivement la distribution des diamètres d'une répartition gaussienne durant la formation des jeunes particules à une distribution log-normale correspondant au fait que pendant la coagulation les petites particules coagulent et ne se recréent plus.

Pour décrire l'évolution de cet aérosol, en caractérisant l'interaction particule - molécule de gaz, on définit le nombre de Knudsen :

$$K_n = \frac{2 \cdot \text{lpm}}{D}$$

où lpm est le libre parcours moyen d'une molécule de gaz et D le diamètre d'une particule de l'aérosol.

Ce nombre sera élevé (supérieur à 10) dans le cas des flammes libres à basse pression alors qu'il sera plus faible dans la chambre de combustion d'un moteur Diesel où le libre parcours moyen varie entre 4 et 7 nm [Smith, 1981].

La modélisation proposée par Smith [1981] donne seulement les flammes libres et repose sur les hypothèses suivantes :

- de chaque collision résulte une coagulation,
- toutes les particules sont sphériques,
- $K_n > 10$: les particules de suie sont en régime moléculaire libre.

L'évolution de la concentration en nombre de particules est alors régie par :

$$-\frac{dN}{dt} = \frac{6}{5} k_{th} \cdot F_v^{1/6} \cdot N^{11/6}$$

$$\text{avec } k_{th} = \frac{5}{12} \cdot \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/6} \cdot \left(\frac{6k_B T}{\rho_s}\right)^{1/2} \cdot G \cdot a$$

Dans cette expression k_B est la constante de Boltzmann et ρ_s la masse volumique de suie, tandis que le facteur a représente la variation de vitesse de collision en fonction de la taille des particules. Il vaut sensiblement 5,66 pour une distribution monodisperse et 6,55 pour une distribution "auto-préservatrice" [Haynes et col., 1981].

Enfin le facteur G rend compte des forces de dispersion entre les particules. Sa valeur est estimée à 2 pour les particules sphériques.

En considérant une concentration initiale de suie N_0 , Prado et col. [1981] intègrent l'expression précédente en considérant la fraction volumique et la température comme des constantes et obtiennent l'évolution suivante de la concentration des particules :

$$N = N_0 \left[1 + 9,03 \cdot 10^{-B} \cdot N_0^{5/6} \cdot T^{1/2} \cdot F_v^{1/6} \cdot t \right]^{-6/5}$$

On voit donc qu'à partir d'une valeur élevée devant l'unité du produit :

$$9,03 \cdot 10^{-B} \cdot N_0^{5/6} \cdot T^{1/2} \cdot F_v^{1/6} \cdot t$$

N devient indépendant de la valeur initiale N_0 et s'écrit :

$$N = 2,84 \cdot 10^{14} \cdot (T^{1/2} \cdot F_v^{1/6} \cdot t)^{-6/5}$$

Une écriture plus simple de cette modélisation a été proposée par Wersborg et col. [1973] en considérant un coefficient K_w appelé coefficient de coagulation :

$$-\frac{dN}{dt} = \frac{1}{2} \cdot K_w \cdot N^2$$

avec

$$K_w = 4 \cdot y \cdot D^2 \cdot \left(\frac{6 \cdot k_B \cdot T}{\rho_s}\right)^{1/2}$$

où y représente un coefficient d'adaptation entre expérience et calcul.

Cette formulation a été reprise par d'Alessio et col. [1974], Haynes et col. [1978], Kent et col. [1981] et Garo et col. [1986]. Les valeurs obtenues sont données dans le tableau A-3.

Auteurs	Type de flamme	K_w $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	y	Moyen de mesure
Kent et col. [1981]	flamme de diffusion laminaire d'éthylène	valeur non précisée	3	LLS
D'Alessio et col. [1974]	flamme de prémélange de méthane	$1,6 \cdot 10^{-9}$ à $4 \cdot 10^{-8}$	1 à 15	LLS
Garo et col. [1986] et [1984]	flamme de diffusion laminaire de méthane	$4,8 \cdot 10^{-8}$	8 à 19	LLS
Haynes et col. [1978]	flamme de prémélange d'éthylène	valeur non précisée	2 à 3	LLS
Wersborg [1973]	flamme de prémélange d'acétylène	$1,7 \cdot 10^{-7}$	30	prélèvement

Tableau A-3 Valeurs expérimentales du coefficient de coagulation

Dans le cas où l'hypothèse du régime moléculaire n'est plus acceptable, c'est-à-dire si le nombre de Knudsen est inférieur à 1, Smith [1983] propose une expression adaptée au moteur Diesel :

$$N = \frac{N_0}{1 + k_B \cdot T \cdot N_0 \cdot \frac{t}{3\mu}}$$

où t est le temps, T la température et μ la viscosité du gaz ambiant.

Cet auteur a trouvé que pour des durées semblables à celles de la vie d'une particule de suie à l'intérieur de la chambre de combustion du moteur Diesel (10 ms) l'écart entre les concentrations calculées par les formulations correspondant aux cas $K_n > 10$ et $K_n < 1$ ne

dépasse pas un rapport de dix. Ce rapprochement provient probablement du fait que le nombre de Knudsen, dans le cas du moteur Diesel présente des valeurs voisines de ces limites.

c/ Croissance de surface

Wagner [1981] propose d'exprimer l'évolution de la fraction volumique simplement en fonction de la valeur maximale atteinte dans le temps :

$$\frac{dF_v}{dt} = k_{mul} (F_{v,max} - F_v)$$

où k_{mul} est une constante multiplicative qu'il détermine expérimentalement :
 $k_{mul} = 100 \text{ s}^{-1}$.

Harris et col. [1983] proposent une modélisation sous la forme :

$$\rho_s \frac{dF_v}{dt} \sim S \cdot [C_2H_2]$$

où S est la surface des particules de suie ($S = \pi \cdot \langle D \rangle^2 \cdot N$) et $[C_2H_2]$ la concentration en acétylène.

En se plaçant dans le cadre de l'hypothèse d'une distribution monodisperse de diamètres, Kennedy et col. [1990] proposent l'expression :

$$\frac{dF_v}{dt} = \pi^{\frac{1}{3}} \cdot 6^{\frac{2}{3}} \cdot \langle N \rangle^{\frac{1}{3}} \cdot F_v^{\frac{2}{3}} \cdot k_c(\zeta)$$

où $k_c(\zeta)$ ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) est le taux spécifique de croissance de surface qui dépend de la richesse locale ζ .

L'expression proposée par ce dernier est la plus précise car elle rend compte de l'influence de la richesse, indépendamment de la composition chimique, ainsi que de la surface disponible par l'intermédiaire des valeurs respectives de N et de F_v .

L'expression proposée par Harris et col. [1983] tient compte, elle aussi, de la surface disponible mais fait l'hypothèse implicite que la croissance de surface provient uniquement de l'acétylène, ce qui n'est probablement vrai que dans certains cas.

Enfin l'expression proposée par Wagner [1981] présente l'avantage d'être très simple mais le coefficient k_{mul} doit certainement être modifié pour chaque configuration.

A-III-4/ Oxydation des particules de suie

L'oxydation de la suie peut résulter de l'action de différentes espèces : CO₂, NO, H₂O, O, O₂, OH... [Neoh et col., 1981]. Pour caractériser l'oxydation, on définit l'efficacité de collision γ_i comme étant la probabilité d'arracher un atome de carbone lors d'une collision entre une particule de suie et une molécule ou un radical oxydant i.

En étudiant la variation de ce paramètre, Neoh et col. [1981] ont montré que l'oxydation de la suie dans une flamme de prémélange de méthane était, en fait, essentiellement due au radical OH et, dans une proportion moindre, à l'oxygène moléculaire O₂ (notons que la flamme de prémélange utilisée était assez particulière dans la mesure où elle était constituée de deux étages permettant de séparer la formation de l'oxydation).

Garo [1984] est parvenue à la même conclusion dans l'étude d'une flamme de diffusion de méthane.

On définit la vitesse d'oxydation surfacique $W_{o,s}$ à partir de la surface S des particules de suie :

$$W_{o,s} = \frac{1}{S} \cdot \frac{dF_v}{dt}$$

Dans le cas où la concentration en oxygène moléculaire est suffisamment élevée pour que l'oxydation de la suie lui soit intégralement attribuée, l'expression semi-empirique proposée par Nagle et col. [1962] peut être utilisée pour exprimer cette vitesse d'oxydation surfacique par l'oxygène moléculaire :

$$\rho_s \cdot \frac{W_{o,s}}{12} = \frac{\alpha k_a P_{O_2}}{1 + k_z P_{O_2}} + k_b P_{O_2} (1 - \alpha)$$

Cette expression semi-empirique suppose que la surface de la matière carbonée est constituée de deux types de sites (a et b) dont l'un est plus réactif que l'autre. α représente la fraction de surface de type a et s'exprime de la façon suivante :

$$\alpha = \left[1 + \frac{k_t}{k_b P_{O_2}} \right]^{-1}$$

P_{O_2} : Pression partielle d'oxygène

$k_a = 10^{6,30} \exp(-15\,100/T)$ (g. cm⁻². s⁻¹. Pa⁻¹)

$k_b = 10^{2,65} \exp(-7\,650/T)$ (g. cm⁻². s⁻¹. Pa⁻¹)

$$k_t = 10^{5,12} \exp(-48\,820/T) \text{ (g. cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$$

$$k_z = 10^{6,33} \exp(+2\,063/T) \text{ (Pa}^{-1}\text{)}$$

Lee et col. [1962] proposent une autre expression déduite de mesures sur une flamme de diffusion laminaire d'hydrocarbure :

$$\frac{1}{6 \cdot F_{ms,0}^{\frac{1}{3}} \cdot F_{ms}^{\frac{2}{3}}} \cdot \frac{dF_{ms}}{dt} = \frac{1,085}{\rho_s \cdot D_0} \cdot P_{O_2} \cdot T^{-\frac{1}{2}} \cdot \exp\left(-\frac{19790}{T}\right)$$

- où F_{ms} (kg.s⁻¹) est le flux massique de suie à travers une section donnée.
 $F_{ms,0}$ est la valeur initiale de ce flux.
 D_0 est la valeur initiale du diamètre des particules de suie (m).

Neoh et col. [1981], Donnet et col. [1983] ainsi que Garo [1984] suggèrent que les mécanismes d'oxydation de la suie par le radical hydroxyle et par la molécule d'oxygène sont différents. En effet, le premier agit en surface alors que le second, en raison de sa faible efficacité de collision, a le temps de pénétrer dans la particule pour que l'oxydation ait lieu plus à l'intérieur et en provoque la cassure. Ce phénomène a pu être observé dans les flammes de prémélange de méthane les plus pauvres par Neoh et col. [1981, 1984] et dans les régions proches du bord pour la flamme de diffusion de méthane par Garo [1984]. Notons enfin qu'une vitesse d'oxydation surfacique par le dioxyde de carbone est proposée par Tesner et col. [1967] :

$$W_{o,s}(\text{CO}_2) = 1,15 \cdot 10^5 \cdot P_{\text{CO}_2} \exp\left(-\frac{37500}{T}\right)$$

Cette oxydation reste néanmoins négligeable devant celle occasionnée par les autres espèces (Neoh et col. [1981,]).

A-III-5/ Conclusion

Afin de donner une vue synthétique, Smith [1981] propose un schéma détaillé du mécanisme général de formation de la suie présenté sur la figure A-4, qui précise les différentes étapes conduisant de l'hydrocarbure initial à la particule de suie finale.

Il faut noter toutefois par ailleurs que les études présentées ici et les mécanismes proposés ont le plus souvent porté sur des flammes de prémélange. A priori, le mécanisme exact de formation des particules de suie varie selon le type de flamme, prémélange ou diffusion, et les différentes phases peuvent avoir des importances relativement différentes comme l'a montré

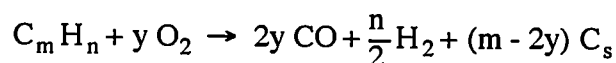
Garo [1984]. Une certaine prudence sera donc nécessaire dans la transposition de ces résultats dans notre étude.

A-IV/ Influence du mode de combustion

A-IV-1/ Flamme de prémélange

Par définition une flamme est dite de prémélange si le combustible et le comburant sont mélangés préalablement à leur introduction dans le site de combustion.

Une vue très simple de la combustion d'hydrocarbures dans une flamme de prémélange consiste à considérer comme l'a fait Wagner [1978] que cette transformation passe par la réaction suivante :



où C_s représente les atomes de carbone constitutifs des particules de suie.

La suie devrait ainsi apparaître théoriquement dès que le nombre d'atomes de carbone de la molécule de l'hydrocarbure initial ($C_m H_n$) devient supérieur au double du nombre de molécules d'oxygène : $m > 2y$, ou encore pour un rapport des nombres d'atomes de carbone et d'oxygène supérieur à 1 : $C/O > 1$.

La plupart des études expérimentales montrent qu'en général les particules de suie apparaissent dès que l'on atteint un certain seuil du rapport C/O , en général proche de 0,5. D'une manière générale, les flammes de prémélange restent néanmoins peu chargées en suie tant que la combustion se fait dans des conditions voisines de la stoechiométrie.

A-IV-2/ Flamme de diffusion gazeuse

On parle de flamme de diffusion lorsque le combustible et le comburant sont introduits séparément dans le site de combustion.

Pour un brûleur à flamme de diffusion donné, la mesure du débit de combustible à partir duquel des particules de suie sont émises permet de classer les différents hydrocarbures selon leur tendance à émettre de la suie. Ce débit d'hydrocarbures "critique" a été utilisé par Rose et col. [1954] et leur a permis d'obtenir le classement suivant des hydrocarbures, par ordre croissant de leur caractère fuligineux : n-paraffines, iso-paraffines, mono-oléfines, alkynes et aromatiques.

Cependant, le processus de formation de suie dépend également du régime d'écoulement : laminaire ou turbulent.

a/ Flamme laminaire

Dans une flamme de diffusion, il existe toujours au coeur du jet une zone riche en combustible pour laquelle le rapport C/O dépasse le seuil critique. L'apparition de particules de suie est donc inhérente à ce type de combustion et les flammes n'émettant pas de suie à leur extrémité sont en fait des flammes qui ont brûlé les particules de suie préalablement apparues.

A une hauteur donnée au dessus du brûleur, la concentration en oxygène décroît depuis les bords de la flamme jusqu'à son axe ; elle est faible dans la région où apparaissent les particules de suie. Il en est de même pour le radical OH qui connaît un maximum dans la région de température maximale (zone de flamme idéale) et décroît rapidement du côté combustible. La zone d'apparition de suie se trouve à proximité de la zone de température maximale, côté combustible. Cette zone est caractérisée par des valeurs élevées de sa luminosité et de son absorptivité.

La répartition des particules de suie à travers ce type de flamme a déjà été étudiée par différents auteurs et pour plusieurs combustibles en utilisant la méthode de la diffusion de la lumière que nous présenterons plus loin. Les études menées par Garo [1984] sur le méthane, par Nishida [1983] sur le propane et par Santoro [1983] sur l'éthène et l'éthane ont retenu notre attention en raison de l'emploi de méthodes optiques voisines de celles que nous avons utilisées dans ce travail.

b/ Flamme turbulente

Qualitativement, la formation de suie dans ce type de flamme a plusieurs points communs avec le cas laminaire. En particulier la distribution radiale de la moyenne temporelle de la concentration de suie a son maximum placé sur un cône dont l'axe est celui de la flamme comme l'ont observé Haynes et col. [1981]. Dans l'étude de Becker et col. [1976] la suie apparaît d'abord dans le bas de la flamme puis, plus haut dans le cône, sa concentration croît rapidement pour atteindre un maximum maximum qui coïncide avec la zone de température maximale.

Ces descriptions en valeurs moyennes sont intéressantes mais les valeurs instantanées sont plus instructives. Ainsi, par une simple observation visuelle d'une telle flamme, on peut voir à l'aide de photographies de fortes fluctuations d'intensités lumineuses dans la zone de suie radiatives témoignant de l'ampleur des variations temporelles et spatiales des concentrations. De même, Turns et col. [1989] ont montré qu'une image instantanée de la lumière diffusée donne la distribution spatiale de la suie dans une flamme turbulente et permet d'en mieux comprendre la répartition. La suie serait ainsi formée dans des vagues séparées par des régions peu fuligineuses mais ce procédé n'est pas encore bien connu. Un comportement semblable a également été observé dans la chambre de combustion d'un moteur Diesel : Won [1991] a en

effet observé que la suie est concentrée dans des bandes étroites ou dans des petits paquets de plusieurs millimètres d'épaisseur.

A-IV-3/ Flamme de diffusion liquide

Ce sont les flammes les plus couramment utilisées : moteur Diesel, fours et chambres de combustion continue. Elles résultent de l'introduction séparée d'un combustible liquide et de l'air dans la chambre de combustion. Les gouttelettes de combustible ne sont pas distribuées uniformément à travers la zone de combustion. La répartition des tailles, des vitesses et des profondeurs de pénétration de ces gouttelettes joue un rôle très important dans l'entraînement de l'air environnant et son mélange avec le combustible.

Lorsque le jet s'approche des zones en combustion, très chaudes, les gouttelettes s'évaporent et cette vapeur mélangée à l'air brûle là où sont réunies les conditions d'inflammabilité. L'hypothèse de la gouttelette qui brûle sans vaporisation préalable est abandonnée [Onuma et col., 1974, 1976] et la structure de la flamme de diffusion turbulente d'un jet liquide d'hydrocarbure est par conséquent semblable à celle d'un gaz.

Comme dans le cas d'un gaz, la suie se forme donc dans les zones de richesse élevée pour généralement constituer des particules élémentaires de diamètre 50 nm agglomérées en chaînes. Les mesures de Prado et col. [1976] ont montré que la formation de suie dans une flamme de diffusion liquide atmosphérique débute à une distance de la sortie de l'injecteur comprise, selon la vitesse du jet, entre 0,5 et 1 fois le diamètre de buse, c'est-à-dire dans une région suffisamment riche et chaude.

La concentration de la suie formée décroît avec l'augmentation de la pression d'injection car l'atomisation et le mélange avec l'air sont améliorés.

D'une manière plus générale, on pourra retenir que les principaux moyens contribuant à la réduction de la quantité de suie sont tous ceux qui concourent à une meilleure pulvérisation et atomisation des gouttelettes de combustible dans l'air :

- atomisation plus fine,
- augmentation de l'angle du cône d'injection,
- augmentation du gradient de pression intérieur - extérieur de l'injecteur,
- swirl et courants de recirculation,
- élimination des éventuelles zones de richesse très élevée.

A-IV-4/ Autres systèmes de combustion

Différentes études réalisées sur d'autres systèmes de combustion permettent d'approfondir les mécanismes de formation des particules de suie :

a/ Les chambres pressurisées à volume constant permettent de se rapprocher des conditions de fonctionnement du moteur Diesel et d'étudier l'effet de la température et de la pression sur la formation des particules de suie : Flower et col. [1980 et 1981] ont montré que, dans ce cas, la température est un paramètre déterminant. Ils ont constaté que pour les concentrations élevées de suie, l'équilibre entre les transferts radiatifs de chaleur et le travail de pression fourni par la dernière partie de la combustion rendait la température constante pendant cette dernière phase. Kamimoto et col. [1989] ont montré que, pour une pression donnée, la quantité de suie produite diminue lorsque la température croît de 1000 K à 1 800 K.

b/ Les machines à compression rapide, en représentant les mouvements d'air associés à ceux du piston, permettent de se rapprocher encore plus des conditions de fonctionnement d'un moteur Diesel : Kamimoto et col. [1981] ont montré l'efficacité d'un tel montage pour faire varier indépendamment la forme de la chambre de combustion, la température de l'air, les mouvements des gaz et les caractéristiques de l'injection.

c/ Les réacteurs parfaitement agités (well stirred reactors), en permettant la réalisation d'un mélange parfaitement homogène, conviennent particulièrement à la mesure du seuil d'apparition de la suie. Ainsi Wright [1969] a déterminé ce seuil, correspondant au rapport C/O_{crit} , pour trente-quatre combustibles différents. Il varie de 0,46 pour le méthane à 1 pour le butadiène.

Dès que l'on dépasse ce seuil, la quantité de suie formée croît rapidement pour diminuer par la suite lorsque l'on se rapproche des limites d'inflammabilité.

d/ Les tubes à choc se prêtent également à l'étude paramétrique de la formation de la suie.

Radcliffe et col. [1971] ont observé que la richesse critique C/O_{crit} augmente régulièrement avec la température, passant pour l'acétylène de 1 à 2000K à 1,8 à 2500K en condition de non équilibre.

Park et col. [1973] ont pu vérifier que la vitesse d'oxydation surfacique des particules de suie était convenablement décrite par la formulation semi-empirique proposée par Nagle et col. [1962] et présentée au § A-III-4.

A-V/ Influence des paramètres physiques et chimiques

A-V-1/ Influence de la pression dans la flamme

En raison du rôle de la pression dans la formation de suie en combustion Diesel, il y a lieu d'analyser plus particulièrement les mécanismes mis en jeu par ce paramètre.

La pression influe très peu sur la valeur du rapport C/O_{crit} [Gaydon et col., 1970, Fenimore et col., 1956, McArragher et col., 1972]. Mais, toujours selon les mêmes auteurs, dès que ce seuil est atteint, la masse de suie formée dépend fortement de la pression. Sur une flamme de prémélange, Mac Farlane et col. [1964] ont trouvé que la masse de suie prélevée variait comme P^n avec $2 < n < 3$. Selon Wagner [1981], cela peut s'expliquer par le fait que la pression favorise l'adsorption des gaz (combustibles ou non) par les particules. Cette explication est conforme au fait que la pression n'a aucune influence sur le seuil C/O_{crit} d'apparition car, tant qu'il n'y a pas de suie, il n'y a aucun support pour l'adsorption.

Pour une flamme de prémélange de C_2H_4 et d'air, qu'ils ont étudiée par une méthode de diffusion de la lumière, dans un domaine de pression allant de 0,1 à 0,5 MPa, Matzing et col. [1986] ont trouvé eux aussi que le rapport C/O_{crit} était pratiquement indépendant de la pression et que la fraction volumique maximale atteinte variait aussi proportionnellement à P^n avec $2 < n < 3$. Ils ont de plus remarqué que, toujours dans le même domaine de pression, aux précisions de la mesure près, la concentration en nombre de particules de suie est indépendante de la pression et le diamètre de ces particules est donc sensiblement proportionnel à la pression. Ceci confirme donc l'hypothèse d'une croissance de la fraction volumique par adsorption des gaz.

Pour une flamme de diffusion d'éthylène, Flower et col. [1986(1)] et [1986(2)] montrent en mesurant l'atténuation de la lumière par la suie, que la valeur maximale de la quantité moyenne de suie sur une traversée varie toujours comme la puissance n de la pression, avec cette fois-ci $n = 1,2 \pm 0,1$ pour $0,1 < P < 10$ MPa. Toutefois, l'influence de la pression devient de plus en plus faible pour ses valeurs les plus élevées.

Par ailleurs ces expériences ont montré que non seulement la masse de suie formée augmente avec la pression mais en plus l'oxydation est de moins en moins importante.

Flower [1989] a ensuite étudié cette flamme de diffusion axisymétrique d'éthylène dans l'air en effectuant conjointement une mesure de la fraction volumique par extinction de la lumière et une mesure de la température basée sur la technique de Kurlbaum [1970]. Il a constaté qu'en dehors des abords de l'orifice du brûleur, les températures des particules sont relativement constantes à travers la flamme mais que leur valeur diminue pour les pressions et débits de combustible plus élevés. Il a noté en particulier que l'oxydation cesse à $T < 1400$ K.

Dans le cas de combustibles liquides, Kadota et col. [1977] ont observé une évolution linéaire de la masse de suie avec la pression de 0,1 à 1 MPa et aucun effet pour $P > 1$ MPa. Le diamètre des particules de suie a lui aussi augmenté de 40 à 100 nm en passant de 0,1 à 3 MPa.

Enfin, Hafiani et col. [1988] ont montré l'influence de la pression sur la pyrolyse d'hydrocarbures proches du gazole. Ils ont constaté, en particulier, un accroissement du rendement en noir de carbone pour une pression allant de 0,1 à 0,7 MPa et pas d'effet au-delà. Aucune information n'a cependant été donnée sur la cinétique de ces phénomènes. Des résultats similaires sur la pyrolyse du méthane et du benzène sous pression sont donnés par Lahaye [1986].

A-V-2/ Influence de la température

L'effet de la température est plus complexe. D'une part, Mac Farlane [1964] et Haynes [1978] ont montré que, pour une flamme de prémélange proche du seuil de richesse critique C/O_{crit} , une augmentation de température réduit la quantité de suie formée. D'autre part, pour des flammes très riches, Mac Farlane [1964] a constaté que la température augmente par contre la quantité de suie produite, probablement en favorisant les réactions de pyrolyse.

A-V-3/ La structure du combustible

Fenimore et col. [1956] ont montré que la quantité de suie formée dans une flamme de prémélange dépend du combustible et varie dans un ordre croissant avec les combustibles suivants : CH_4 , C_2H_6 , C_2H_4 , C_3H_8 , nC_4H_{10} , C_2H_2 , iso- C_4H_{10} et neo- C_5H_{12} .

A-V-4/ Intervention ionique

Wersborg et col. [1974] ont observé dans une flamme de prémélange d'acétylène et d'oxygène que les hydrocarbures lourds et les particules de suie chargées sont de signe positif. Ils ont noté une coïncidence entre le maximum de concentration de ces hydrocarbures chargés et le début d'apparition de suie. Ils en ont conclu, de la même façon que Calcote [1981, 1988⁽¹⁾ et 1988⁽²⁾], que ces hydrocarbures chargés sont les précurseurs des particules de suie. Homann et col. [1983] sont arrivés à des conclusions différentes. En effet, ils ont observé sur une flamme de prémélange d'acétylène et d'oxygène que les particules de suie chargées n'apparaissent qu'après le début de la coagulation et de la croissance de surface. Par conséquent la charge de ces particules ne provient pas des molécules d'hydrocarbures chargées mais des premières particules neutres, par des mécanismes encore inconnus.

A-V-5/ Conclusion

En résumé la pression et la masse de la molécule de l'hydrocarbure initial augmentent la quantité de suie formée. Par contre le rôle de la température est moins simple à cerner et varie selon les configurations.

La multiplicité des paramètres influençant le processus global d'apparition et de destruction des particules de suie en rend l'étude complexe. La difficulté est encore plus grande lorsque les paramètres en question ne peuvent être maîtrisés séparément sur un système tel que le moteur Diesel.

A-VI/ Formation de suie dans un moteur Diesel

A-VI-1/ Généralités

L'une des applications les plus importantes des flammes de jet liquide est celle concernant le moteur Diesel. Bénéficiant d'un rendement énergétique élevé, ce type de moteur suscite beaucoup d'intérêt.

La réduction de ses émissions de particules de suie constitue toutefois une des préoccupations majeures des constructeurs automobiles. Différentes études paramétriques ont montré que la quantité de suie à l'échappement varie en fonction des conditions de fonctionnement du moteur : vitesse de rotation, charge, avance à l'injection, combustible utilisé... mais aussi en fonction des paramètres architecturaux inhérents au moteur : formes et dimensions de la préchambre et de la chambre de combustion, degré de turbulence, finesse de l'atomisation du jet, etc ...

Dans ce type de moteur le combustible est injecté à une pression suffisamment élevée pour obtenir une atomisation fine et une vaporisation plus rapide. Après avoir quitté la surface des gouttelettes par évaporation, une partie des molécules de combustible subissent successivement : pyrolyse, nucléation, adsorption, coagulation et agrégation puis l'oxydation à l'approche de zones contenant des substances oxydantes en quantités suffisantes.

Le moteur à préchambre et le moteur à injection directe ont des processus de combustion différents [Smith, 1981]. En général, la préchambre permet d'augmenter la turbulence et le moteur émet moins de suie à l'échappement mais ses pertes thermiques augmentant son rendement diminue et il est donc réservé aux faibles puissances.

A-VI-2/ Paramètres influant sur la formation des particules de suie

En schématisant, la combustion dans un moteur à injection directe (ID) peut être décrite de la façon suivante : le combustible injecté pendant le délai d'auto-inflammation se mélange à l'air, s'échauffe et finalement s'enflamme en brûlant comme dans une flamme de prémélange alors que celui injecté par la suite brûle comme une flamme de diffusion. On voit ici apparaître l'importance de la chronologie des phases de l'injection : plus la fraction de combustible injectée avant l'inflammation sera importante, moins le moteur produira de suie car la partie brûlée en flamme de prémélange sera plus importante. L'inflammation s'étendant cependant très rapidement à l'ensemble de la fraction de combustible prémélangée, la vitesse de libération d'énergie atteindra alors des valeurs maximales plus élevées. Pour les mêmes raisons, une durée d'injection plus courte devrait également diminuer la quantité de suie à l'échappement.

Pour un moteur à injection indirecte (II), le combustible est injecté dans la préchambre où le mélange avec l'air se fait très rapidement. Contrairement au cas de l'injection directe, avancer le moment de l'injection augmente la quantité de suie. En effet, la quantité d'air dans la préchambre étant limitée, cela revient à augmenter la richesse du mélange au moment de l'inflammation. Ce qui se passe dans la préchambre peut être décrit comme une flamme de prémélange très riche. En raison des contraintes de temps, il s'y produit pyrolyse, nucléation, croissance et coagulation alors que l'agrégation et l'oxydation auront lieu dans la chambre principale sans que ce dernier phénomène parvienne toujours à éliminer les particules de suie formées en trop grandes quantités. Broome et col. [1971] ont recensé les paramètres de fonctionnement du moteur Diesel influant sur l'apparition de suie. La figure A-5 en récapitule les effets.

A-VI-3/ Caractéristiques des particules de suie issues d'un moteur Diesel

- Concentration

Selon Heywood [1988], les concentrations de particules sont très élevées sur l'axe du jet d'un moteur à ID près du nez de l'injecteur : 200 à 400 g.m⁻³ aux conditions de température et de pression normales (TPN).

Matsuoka et col. [1977] ont de leur côté trouvé pour un moteur à ID une concentration massique moyenne de 10 g.m⁻³ (TPN), quantité correspondant selon eux à 20% de la totalité du carbone contenu dans le carburant injecté.

Ils ont été, semble-t-il, avec Aoyagi et col. [1980] les premiers à constater que, contrairement à ce que pensaient Khan et col. [X], la formation de la suie a lieu très tôt pendant la période de combustion. Une observation similaire a été faite par Kontani et col. [1983].

Toutefois ces particules sont rapidement oxydées et selon Heywood [1988], 90% de la masse de la suie est détruite avant l'échappement.

- Taille

Comme cela a été vu au § A-I, la taille des sphérules est de 20 à 50 nm. Selon Whàtri et col. [1979] celle des agrégats dans la chambre de combustion s'étend de 50 nm à 1 micron.

Yoshihara et col. [1984] ont montré que ni la vitesse de rotation, ni la charge du moteur n'avaient d'influence sur le diamètre des particules de suie à l'échappement et que seul le nombre de ces particules changeait.

Vannobel et col. [1990] ont trouvé que les valeurs du diamètre des particules de suie à l'échappement dépend du type d'injecteur et que la valeur du diamètre le plus probable est en général de l'ordre de 50 nm.

Auteurs	Type de moteur	Taille des sphérules (nm)	Taille des agrégats (nm)	N (cm ⁻³)	Fv	Méthode de mesure
Khatri et col. [1979]	I D	5 à 25	90 à 200	10 ⁸	10 ⁻⁷	prélèvement à l'échappement
Khan et col. [1971]	I D	15 à 50	1000		4.10 ⁻⁷	prélèvement à l'échappement
Luo et col. [1989]	I D	20	150			prélèvement à l'échappement et dans la chambre
Vannobel et col.[1990]	I I		50		6.10 ⁻⁸	optique (SCP)* à l'échappement
Yoshihara et col.[1984]	I I		100			Analyse statistique de la taille à l'échappement
Xu et col. [1982]	I D	40	300	10 ⁹		optique dans la chambre de combustion

(*) SCP : Spectroscopie par Corrélation de Photons

Tableau A-4 Mesures expérimentales des caractéristiques des suies dans le moteur Diesel

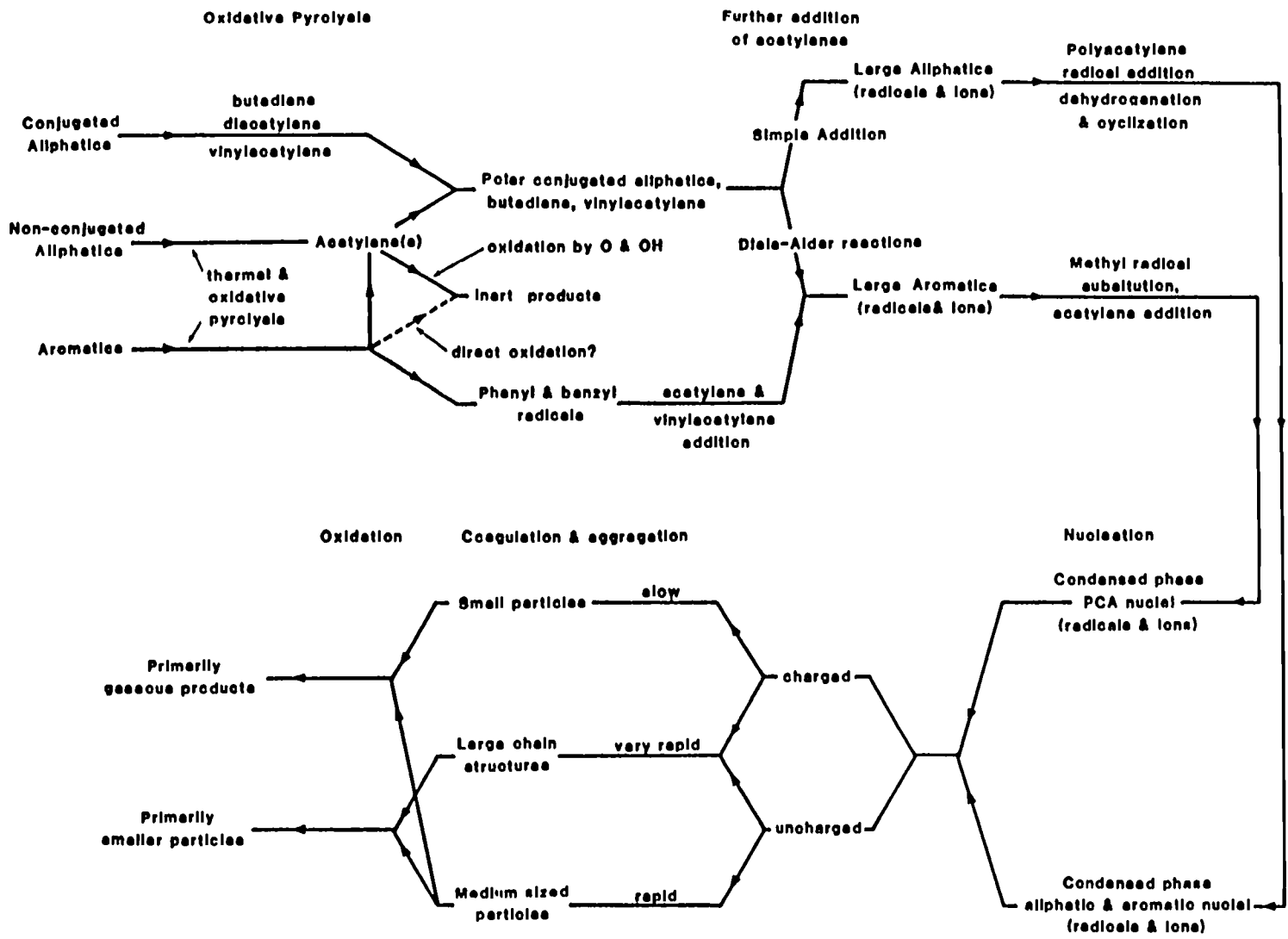


Figure A-4 Processus détaillé d'apparition des particules de suie [Smith, 1981]

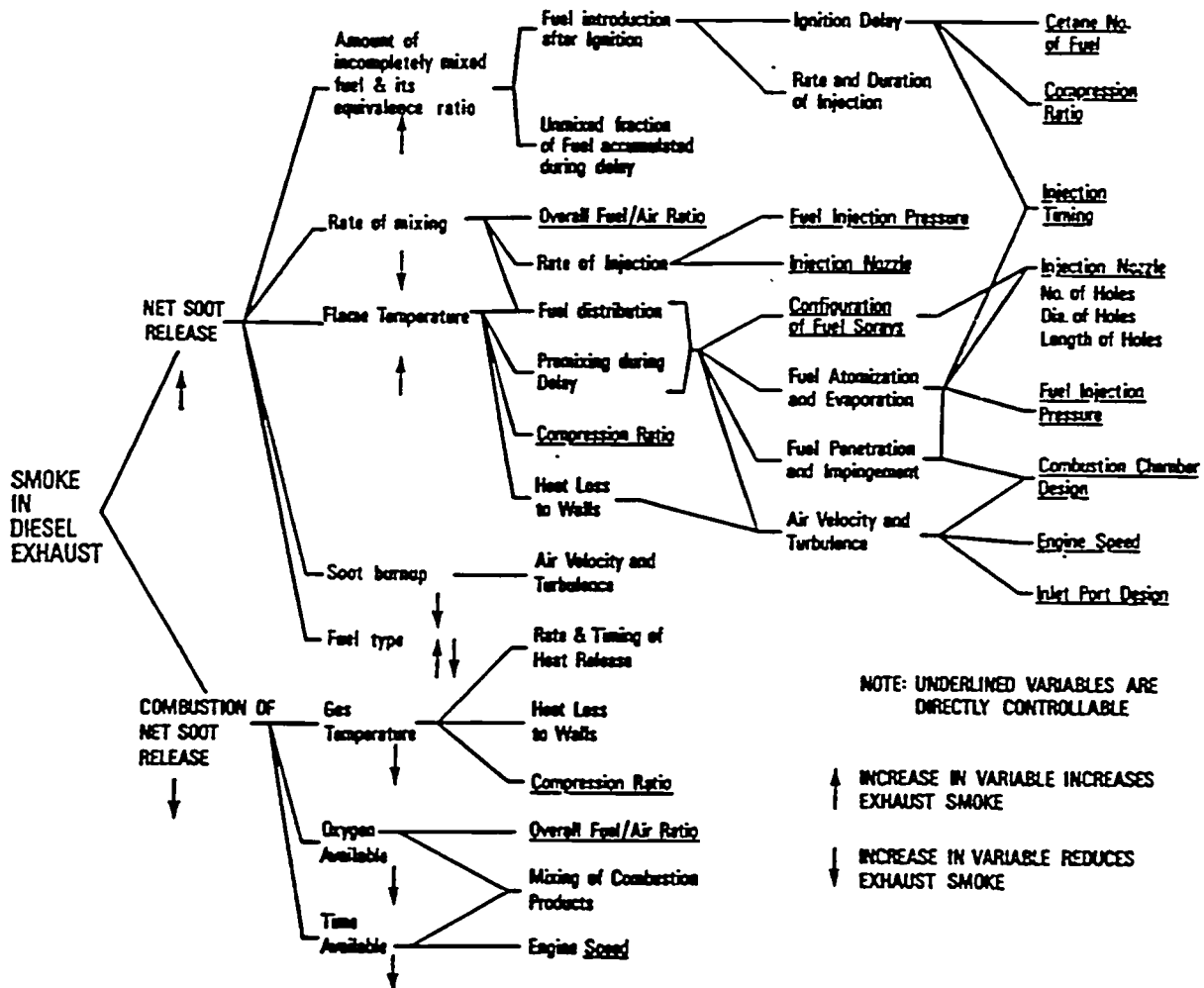


Figure A-5 Influence des paramètres de fonctionnement d'un moteur Diesel sur l'émission de suie à l'échappement. [Broome et col., 1971]

- Taux de coagulation

Khatri et col. [1979] ont déterminé pour la suie formée dans un moteur à I D un coefficient de coagulation (défini au § A-III-3) :

$$K = 38,54 \cdot 10^{-14} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$$

Khan et col. [1971] ont obtenu une valeur beaucoup plus élevée de 10^{-10} . Selon eux cette valeur, bien plus importante que celle déterminée dans les flammes libres, peut être attribuée à la turbulence et aux vitesses élevées des gaz à l'intérieur de la chambre de combustion.

D'une manière synthétique, diverses caractéristiques des particules de suie mesurées sur des moteurs Diesel sont présentées dans le tableau A-4.

A-VI-4/ Possibilités de réduction des particules de suie

Dans un moteur Diesel, il semble très difficile d'atteindre un rapport C/O inférieur à 0,5 en tout point de la chambre de combustion. L'apparition des particules de suie paraît donc inévitable. Pour pouvoir la limiter, on doit agir sur toutes les étapes de leur vie.

En ce qui concerne la nucléation, on peut remarquer qu'en diminuant la quantité de molécules aromatiques dans le carburant, on bloque un des mécanismes de création des grandes molécules polyaromatiques.

Ces noyaux croissent par adsorption. Comme on l'a déjà vu, pour des systèmes de combustion différents, la taille des sphérules se situe toujours entre 10 et 40 nm. Leur croissance s'arrête donc au même niveau, quel que soit le mode de combustion, mais on ne connaît toujours pas très bien les facteurs qui provoquent cet arrêt [Smith, 1981]. Il serait intéressant de mieux maîtriser ce phénomène d'adsorption qui est à l'origine de 90 % de la quantité de suie formée. En effet, arrêter l'adsorption plus tôt est d'autant plus intéressant que des particules plus petites sont plus faciles à brûler par la suite.

Enfin, l'utilisation d'additifs comme les métaux alcalins facilite l'ionisation des particules de suie de sorte que la coagulation est retardée entre particules de même signe. On diminue ainsi les taux de coagulation et d'agrégation.

A-VII/ Modélisation de la formation et de l'oxydation des particules de suie

La prise en compte des phénomènes de production de la suie et de rayonnement des flammes nécessite l'élaboration de modèles phénoménologiques ou directs susceptibles d'insertion dans des modèles numériques plus larges.

A-VII-1/ Formulation générale

Pour une flamme de diffusion à symétrie axiale, Kennedy [1990] traduit la conservation massique de la suie par une formulation très générale :

$$\rho u \frac{\partial F_v}{\partial z} + \rho(v + v_T) \frac{\partial F_v}{\partial r} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \rho D_s \frac{\partial F_v}{\partial r} \right) + \rho W_n + \rho W_\gamma - \rho W_o$$

où - u et v sont les vitesses radiales et axiales (que l'on suppose être les mêmes pour les gaz et les particules de suie)

- W_n , W_γ et W_o sont les taux respectifs de variation de fraction volumique par nucléation, croissance et oxydation ($m^3.m^{-3}.s^{-1}$)

- v_T est la vitesse thermophorétique définie par :

$$v_T = -0,55 \cdot \frac{v}{T} \cdot \frac{\partial T}{\partial r}$$

Cette équation est alors associée à celles de la quantité de mouvement et de la conservation de la masse pour modéliser la combustion.

A-VII-2/ Modélisation de Tesner [1971]

Dans le modèle de Tesner, la formation de la suie résulte de la mise en chaîne d'un radical non spécifié considéré comme le précurseur de la suie. La formation et la destruction de ces précurseurs sont décrites par :

$$\frac{dn}{dt} = n_0 + [(f - g) - g_0 \cdot N] \cdot n$$

où n est la concentration en précurseurs, n_0 le taux de production des précurseurs, f , g et g_0 des constantes représentatives des taux de formation et de destruction de précurseurs et N représente toujours la concentration en nombre des particules de suie.

Le taux de production de précurseurs est lui-même donné par :

$$n_0 = K \cdot C_f \cdot \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$$

où K est une constante, E une énergie d'activation et C_f la concentration en combustible.

Dans ce modèle, le taux de production de particules de suie est alors relié à la concentration n en précurseurs par :

$$\frac{dN}{dt} = (a - bN) \cdot n$$

où a et b sont des constantes.

A-VII-3/ Modélisations appliquées au moteur Diesel

Ce sont des formulations reposant sur l'hypothèse d'une cinétique régie par une loi de type Arrhénius.

a/ Formation

Pour représenter la formation de la suie, Khan et col. [1973] ont proposé :

$$\rho_s \cdot \frac{dF_v}{dt} \sim P_u \cdot \phi_u^3 \cdot \exp\left(\frac{-20000}{T}\right)$$

où ϕ_u est la richesse instantanée du mélange dans la zone de formation, P_u la pression partielle de combustible imbrûlé dans la zone de formation.

Dans le même but, Hiroyasu et col. [1976] ont proposé la formulation ci-dessous :

$$\rho_s \cdot \frac{dF_v}{dt} \sim P \cdot \exp\left(-\frac{10000}{T_b}\right)$$

où P est la pression dans le cylindre et T_b la température des gaz brûlés.

b/ Oxydation

Aux modèles de Nagle et col. [1962] et de Lee et col. [1962] du § A-III-4, s'ajoute celui proposé par Hiroyasu et col. [1976] :

$$\frac{dF_v}{dt} \sim -\frac{F_v}{\rho_s \cdot d_s} \cdot P_{O_2} \cdot \exp\left(-\frac{20000}{RT}\right)$$

c/ Conclusion

Ces modèles empiriques de formation et d'oxydation de particules de suie dans le moteur Diesel sont semblables (sauf celui de Tesner) et le choix parmi ceux-ci devra passer par une validation comparative dans la configuration expérimentale examinée.

CHAPITRE B

PRINCIPE DE LA MESURE ET MOYENS EXPERIMENTAUX

B-I/ Les méthodes optiques en combustion

Les méthodes optiques présentent l'avantage sur les procédés plus conventionnels utilisés pour l'analyse de la combustion, tels que le prélèvement des gaz de ne pas perturber le système étudié et d'être instantanées. C'est pourquoi nous avons développé un procédé de caractérisation in-situ des particules de suie par diffusion de la lumière. Il s'agit dans ce paragraphe de le situer parmi l'ensemble des méthodes optiques les plus couramment employées en combustion.

B-I-1/ Spectroscopie

Cette méthode repose sur l'étude de l'émission moléculaire résultant d'une excitation extérieure. Elle permet d'identifier les constituants du milieu en combustion.

B-I-2/ Pyrométrie optique

Le rayonnement des particules de suie permet, grâce aux lois de Rayleigh et de Planck, de déterminer leur concentration et leur température, cette dernière étant elle-même représentative de la température du milieu en combustion. La méthode est détaillée par Gaydon [1970] et une application est donnée par Ayachi et col. [1990]. Son emploi est limité aux phases de la combustion durant lesquelles la température et la concentration en suie sont suffisamment élevées pour assurer un rayonnement mesurable.

B-I-3/ Diffusion de la lumière

a/ La diffusion de la lumière par les molécules de gaz permet selon la théorie de Rayleigh de déterminer en particulier la température ou la densité d'un gaz. [Laurendeau, 1988, Gouldin et col., 1986 et Arcoumanis et col., 1984].

Smith [C-II-3] a utilisé cette technique pour mesurer la densité locale instantanée des gaz et détecter ainsi le passage d'un front de flamme sur un moteur à allumage commandé.

b/ L'application des lois de la théorie de la diffusion de la lumière établie par Mie [1908] permet dans les milieux en combustion de caractériser par leur dimension et leur concentration les particules d'un nuage de suie. A notre connaissance Erickson et col. [1963] ont été parmi les premiers à faire une telle application.

Les gouttelettes de combustible liquide peuvent aussi faire l'objet de telles mesures [Kouzelis et col., 1987, Flament et col., 1980 et Mularz et col., 1983].

Cette diffusion par des particules présentes dans un écoulement permet aussi la mesure locale des vitesses par Anémométrie Doppler Laser (ADL). En pratique, les particules de suie existant dans les flammes sont généralement insuffisantes en taille ou en nombre pour permettre cette mesure et l'ensemencement du flux gazeux par d'autres particules est nécessaire [Kent et col., 1981].

B-I-4/ Fluorescence

Un rayonnement incident peut provoquer le passage d'une molécule ou d'un atome à un état électronique excité. Ce passage est suivi d'une relaxation engendrant l'émission d'une lumière dont la longueur d'onde est en général différente de celle de l'onde incidente : c'est la fluorescence. Ce processus est utilisé en particulier pour la détection des hydrocarbures polyaromatiques dans les flammes d'hydrocarbures [Stepowski, 1988 et Houston-Miller et col., 1982].

B-I-5/ Diffusion Raman

La diffusion Raman donne des spectres contenant une série de raies de longueurs d'ondes différentes de celle de la lumière incidente excitatrice. Ces raies correspondent à l'émission par les électrons de photons dont l'énergie est égale à celle de l'onde incidente augmentée ou diminuée des différentes énergies vibratoires de translation ou de rotation. Les décalages de fréquence correspondent donc aux écarts entre les niveaux d'énergie vibrationnels des molécules et permettent ainsi de déterminer la nature ou la température des gaz [Lapp et col., 1976 et Wang et col., 1976].

B-I-6/ Conclusion

La diversité des méthodes présentées permet en général de trouver une solution adaptée à chaque problème de mesure. Penner et col. [1984] ont effectué une récapitulation des diagnostics optiques reposant sur l'emploi d'un faisceau laser dans les milieux en combustion tandis que Gouesbet et col. [1987] se sont particulièrement intéressés aux applications de méthodes optiques à la mesure de la taille de particule.

B-II/ La diffusion de la lumière et ses applications

B-II-1/ Aspect théorique

a/ Définition des paramètres

Considérons une onde électromagnétique monochromatique plane polarisée linéairement et de densité de flux Φ_0 qui rencontre une particule unique en O. Pour une telle onde électromagnétique, le champ électrique conserve toujours la même direction et peut donc être caractérisé par ses composantes horizontale et verticale H et V que l'on peut voir sur la figure B-1. La polarisation du faisceau incident est définie par l'angle χ de ce champ par rapport au plan horizontal d'observation (O,Y,Z). La lumière diffusée est observée dans la direction définie par l'angle θ .

O : localisation de la sphère diffusante
(O,Y,Z) : plan de diffusion
 θ : direction d'observation dans le plan (O,Y,Z)

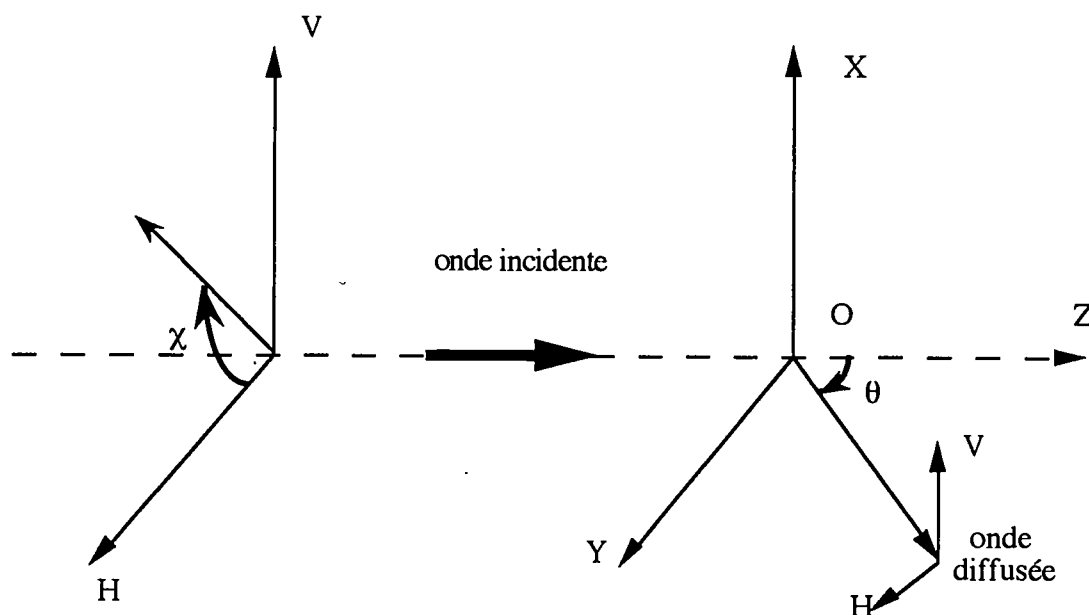


Figure B-1 Géométrie théorique de la diffusion de la lumière

** Diffusion dans une direction donnée : grandeurs angulaires*

Le faisceau lumineux diffusé dans un angle solide Ω autour de la direction θ peut être décrit par les composantes de polarisation verticale et horizontale de son intensité : $\Phi_{V,\Omega}$ et $\Phi_{H,\Omega}$.

Par exemple, dans le cas particulier d'une onde incidente à polarisation verticale produisant une onde diffusée de même polarisation, le flux angulaire (intensité) est proportionnel à la densité de flux incident φ_{0V} :

$$\Phi_{V,\Omega} = C_{VV,\Omega} \cdot \varphi_{0V} \quad (1)$$

Le coefficient de proportionnalité $C_{VV,\Omega}$ a les dimensions d'une surface par unité d'angle solide. Il est appelé section efficace de diffusion angulaire.

Dans le cas général, les deux composantes du flux diffusé peuvent s'écrire :

$$\begin{bmatrix} \Phi_{V,\Omega} \\ \Phi_{H,\Omega} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{VV,\Omega} & C_{HV,\Omega} \\ C_{VH,\Omega} & C_{HH,\Omega} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \varphi_{0,V} \\ \varphi_{0,H} \end{bmatrix} \quad (2)$$

où

$$\varphi_{0,V} = \varphi_0 \cdot \sin^2 \chi \quad \text{et} \quad \varphi_{0,H} = \varphi_0 \cdot \cos^2 \chi \quad (3)$$

Pour une onde incidente polarisée selon X, C_{XY} est appelé section efficace de diffusion angulaire pour la composante polarisée selon Y. Par exemple, C_{HV} est l'intensité lumineuse diffusée à polarisation verticale pour une onde incidente à polarisation horizontale de densité de flux surfacique unitaire rencontrant une particule.

Pour un nuage de particules de concentration N, on définit le coefficient de diffusion angulaire

$$K_{XY,\Omega} = N \cdot C_{XY,\Omega} \quad (4)$$

Ce coefficient décrit la propension d'un nuage de particules à diffuser la lumière (figure B-2).

** Diffusion dans tout l'espace : grandeurs globales*

Pour l'ensemble de l'espace, la puissance totale diffusée par une particule est proportionnelle à la densité de flux incidente. Elle s'écrit :

$$\Phi_{\text{diff}} = C_{\text{diff}} \cdot \varphi_0 \quad (5)$$

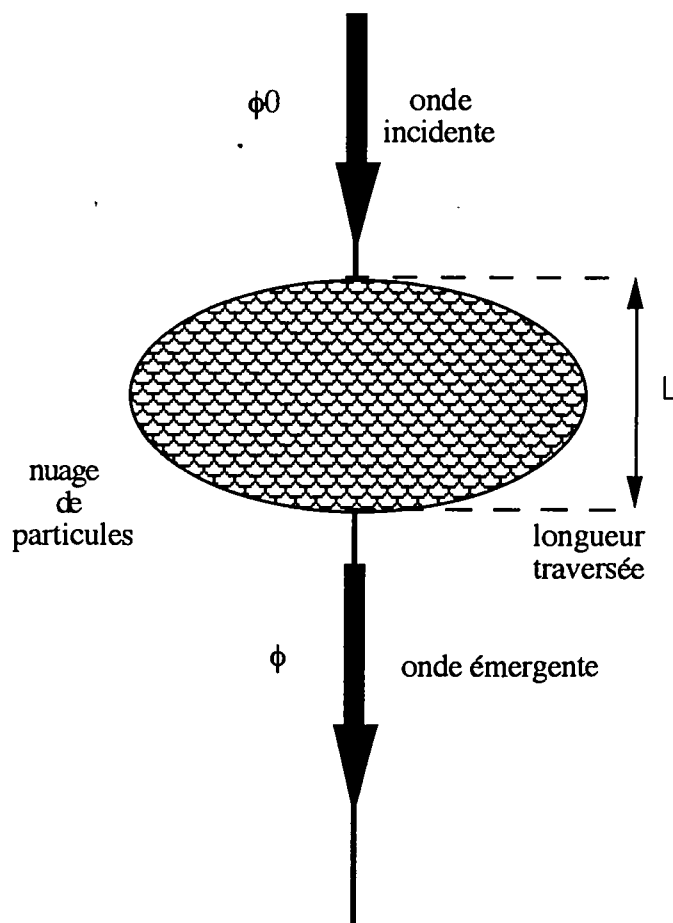


Figure B-2 Définition des coefficients de diffusion et d'extinction d'un nuage de particules

Par exemple, pour une onde incidente à polarisation verticale et une particule unique produisant une onde diffusée à polarisation verticale, le coefficient de diffusion global est :

$$C_{\text{diff}} = \int C_{\text{VV}, \Omega} d\Omega \quad (6)$$

La puissance absorbée par la particule est elle aussi proportionnelle à la densité de flux incidente :

$$\Phi_{\text{abs}} = C_{\text{abs}} \cdot \varphi_0 \quad (7)$$

Les coefficients de proportionnalité C_{diff} et C_{abs} sont appelés respectivement sections efficaces de diffusion et d'absorption.

On définit aussi la section efficace d'extinction (globale) d'un faisceau :

$$C_{\text{ext}} = C_{\text{abs}} + C_{\text{diff}} \quad (8)$$

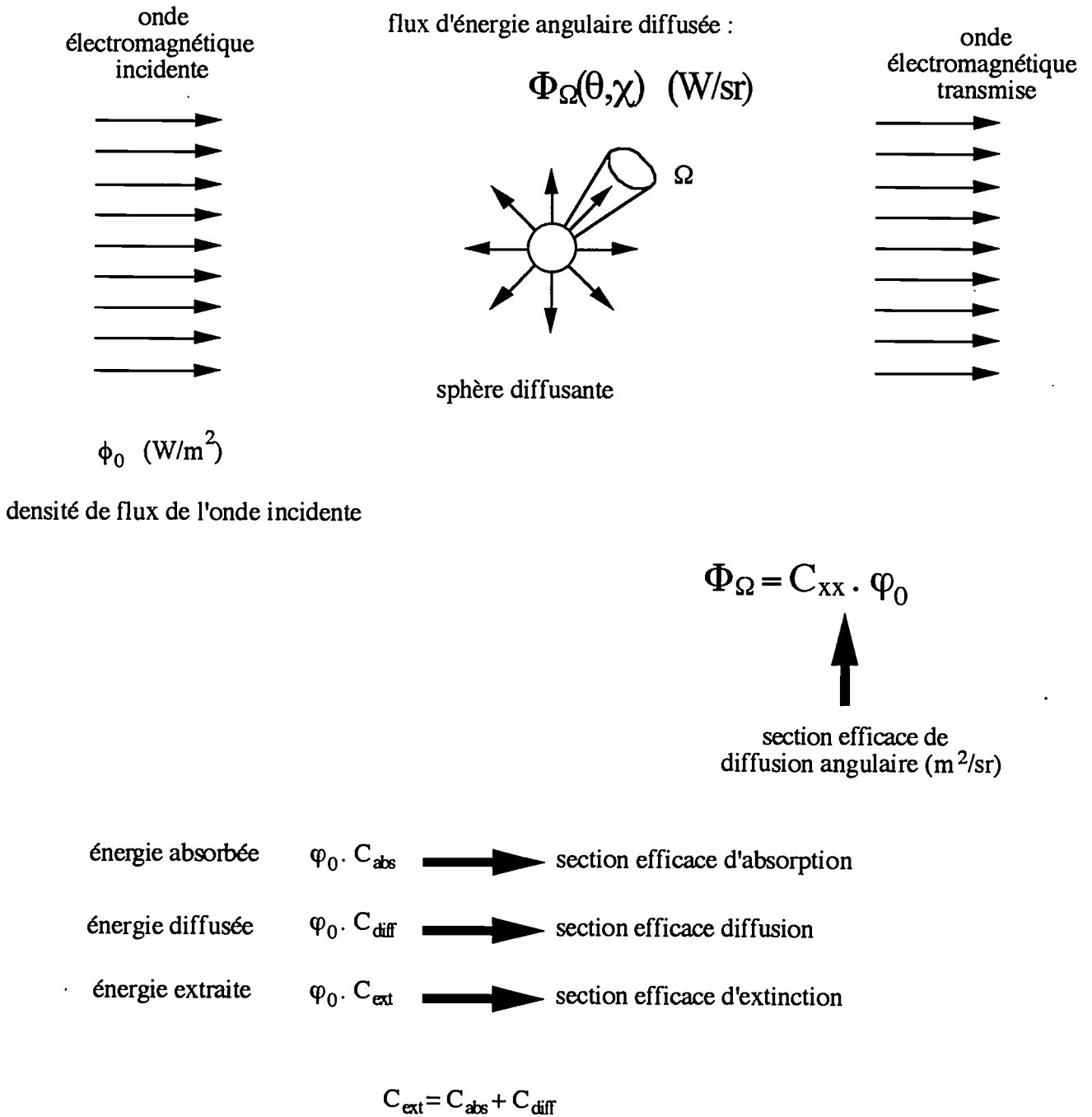


Figure B-3 Définition des sections efficaces de diffusion élémentaires

Par ailleurs, la fraction de l'énergie reçue par une particule sphérique et diffusée dans tout l'espace est :

$$Q_{\text{diff}} = \frac{\Phi_{\text{diff}}}{\left(\frac{\pi D^2}{4}\right) \cdot \varphi_0} = \frac{C_{\text{diff}} \cdot \varphi_0}{\left(\frac{\pi D^2}{4}\right) \cdot \varphi_0} = \frac{4 C_{\text{diff}}}{\pi D^2} \quad (9)$$

Cette fraction Q_{diff} est appelée facteur d'efficacité de diffusion. On définit de la même façon les facteurs d'efficacité d'absorption et d'extinction : Q_{abs} et Q_{ext} .

Pour un nuage de particules de même diamètre on définit la transmission :

$$\tau = \frac{\Phi^t}{\Phi_0} \quad (10)$$

rapport du flux lumineux transmis au flux incident et le coefficient d'extinction :

$$K_{\text{ext}} = N \cdot C_{\text{ext}} \quad (11)$$

représentant l'atténuation par unité de longueur à travers le nuage de particules.

La loi de Beer-Lambert décrite dans l'annexe n°2 permet de lier ces deux paramètres :

$$\ln(\tau) = -L \cdot K_{\text{ext}} \quad (12)$$

où L est la longueur traversée à travers le nuage de particules.

b/ Théorie de Rayleigh

Considérons une onde électromagnétique plane polarisée linéairement qui rencontre une sphère diélectrique homogène isotrope et de diamètre D très petit devant la longueur d'onde λ . Cette onde est caractérisée par un paramètre de taille α tel que :

$$\alpha = \frac{\pi D}{\lambda} \ll 1$$

Cette dernière hypothèse permet de dire que le champ électrique instantané est uniforme à travers la particule. Celle-ci se polarise alors dans la même direction que le champ électrique. Ainsi la particule constitue un dipôle oscillant qui rayonnera à son tour une onde électromagnétique, l'onde diffusée, qui présente la même polarisation que l'onde incidente.

Dans ce cas, les sections efficaces de diffusion angulaire s'écrivent :

$$\left(\begin{array}{l} C_{HV,\Omega} = 0 \\ C_{VH,\Omega} = 0 \\ C_{VV,\Omega} = \frac{\pi D^6}{4\lambda^4} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \\ C_{HH,\Omega} = \frac{\pi D^6}{4\lambda^4} \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \cdot \cos^2\theta \end{array} \right) \quad (13)$$

La section efficace globale de diffusion s'obtient alors par une généralisation de (6) :

$$C_{\text{diff}} = \frac{8\pi}{3} \frac{\pi^4 D^6}{4\lambda^4} \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad (14)$$

On peut en déduire que le facteur d'efficacité de diffusion (globale) s'écrit :

$$Q_{\text{diff}} = \frac{4 \cdot C_{\text{diff}}}{\pi \cdot D^2} = \frac{8}{3} \cdot \left(\frac{\pi \cdot D}{\lambda} \right)^4 \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad (15)$$

où λ est la longueur d'onde de la lumière incidente et m est défini par :

$$m = \frac{m_2}{m_1}$$

avec m_2 : indice de réfraction de la sphère,
 m_1 : indice de réfraction du milieu ambiant.

La section efficace globale d'absorption s'écrit quant à elle :

$$C_{\text{abs}} = \frac{\pi D^3}{4\lambda} \operatorname{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \quad (16)$$

La comparaison de ces expressions fait ressortir que le flux diffusé est très inférieur au flux absorbé par les petites particules. On remarque en effet que le rapport $\frac{C_{\text{diff}}}{C_{\text{abs}}}$ est proportionnel à $(D/\lambda)^3$ qui, dans le domaine de Rayleigh, est très petit. On a donc dans ce cas :

$$C_{\text{abs}} = C_{\text{ext}}$$

c/ Théorie de Mie

Comme pour le cas de la théorie de Rayleigh, nous considérons encore une sphère homogène et isotrope, mais cette fois de taille et de conductivité quelconques.

La résolution de l'équation d'onde en tenant compte des conditions aux limites de la sphère permet de déterminer les caractéristiques de l'onde diffusée en un point suffisamment éloigné de la sphère.

Les sections efficaces de diffusion angulaire s'écrivent alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_{\text{HV},\Omega} = 0 \\ C_{\text{VH},\Omega} = 0 \\ C_{\text{VV},\Omega} = \frac{\lambda^2}{4\pi} i_1 \\ C_{\text{HH},\Omega} = \frac{\lambda^2}{4\pi} i_2 \end{array} \right. \quad (17)$$

et les sections efficaces globales :

$$\left(\begin{array}{l} C_{\text{diff}} \\ C_{\text{ext}} \end{array} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{+\infty} (2n+1) \left(\begin{array}{l} (|a_n|^2 + |b_n|^2)^2 \\ \text{Re}(a_n + b_n) \end{array} \right) \right) \quad (18)$$

où i_1 , i_2 , a_n et b_n sont des fonctions de θ, λ, D et m : indice de réfraction complexe relatif défini comme dans la théorie précédente. Elles s'expriment à l'aide des polynômes de Legendre et des fonctions de Ricatti-Bessel. Les expressions détaillées sont données en annexe 1. Cette théorie s'applique pour toutes les valeurs du paramètre de taille α et généralise donc celle de Rayleigh.

Mie [1908] a été le premier à présenter la résolution mathématique du problème. Depuis, la théorie porte son nom.

Afin d'illustrer ce paragraphe, nous avons choisi d'étudier l'évolution de l'intensité diffusée par une particule de suie pour une polarisation verticale. Pour chacun des diamètres 10, 100, 150, 200, 250, 450 et 500 nm (figure B-4), nous avons représenté sur un diagramme polaire l'évolution de la composante verticale de l'intensité diffusée en fonction de l'angle d'observation. Nous voyons que pour les petits diamètres l'intensité diffusée dépend peu de cet angle, cas à rapprocher de celui de la diffusion de Rayleigh. Par contre, plus le diamètre de la sphère diffusante est grand, plus la composante verticale de l'intensité diffusée dépendra de l'angle d'observation. C'est cette caractéristique qui est à l'origine de la méthode que nous appellerons : mesure du rapport d'anisotropie et que nous décrirons et utiliserons plus loin.

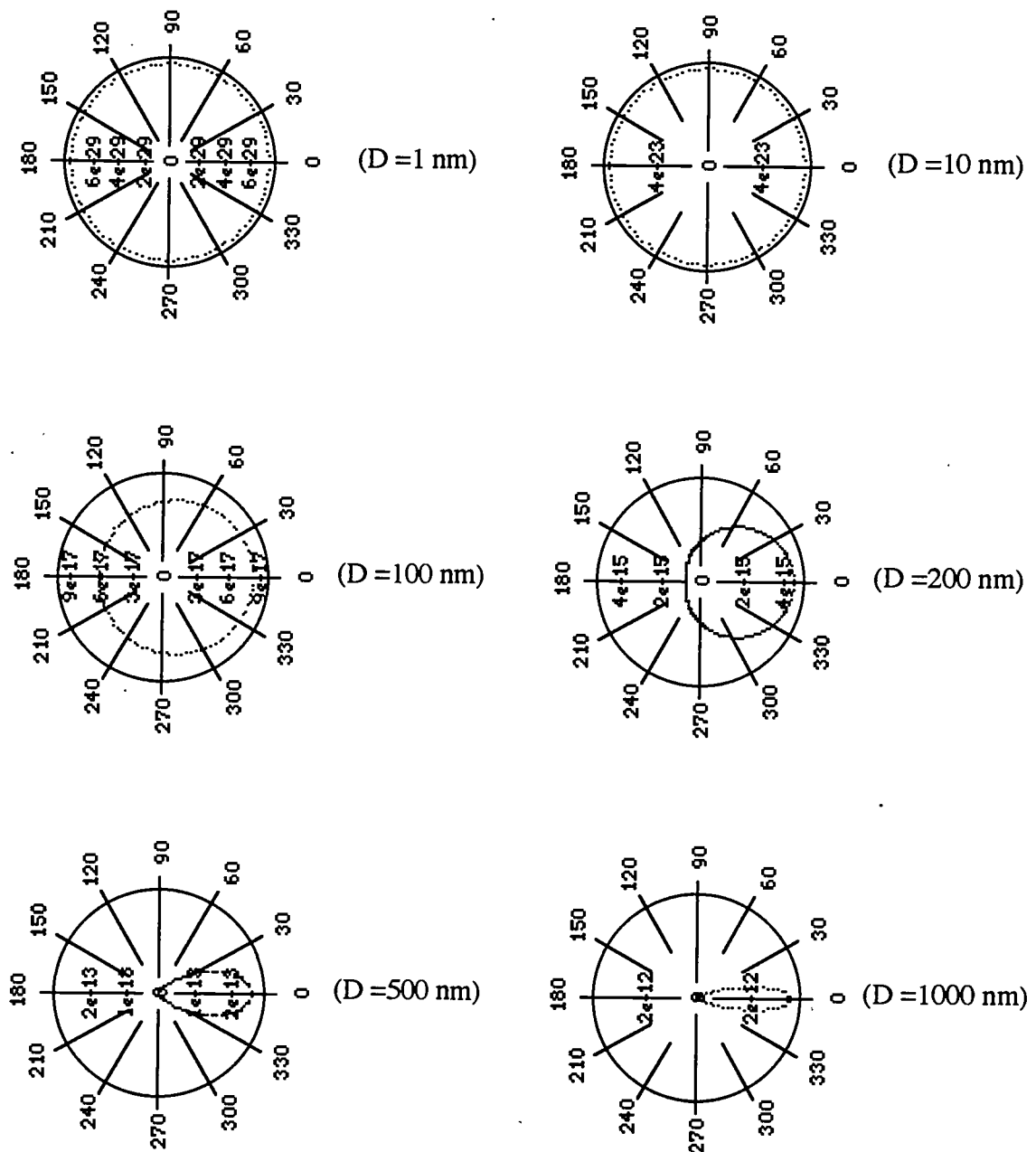


Figure B-4 Evolution polaire de la section efficace de diffusion angulaire à polarisation verticale pour différents diamètres de particules

B-II-2/ Diffusion de la lumière - Généralités - Estimations

On considère une source monochromatique de longueur d'onde λ_0 qui illumine un volume V à étudier. En considérant le banc de mesures optiques simplifié représenté figure B-9, le flux angulaire d'énergie (intensité) diffusée s'écrit :

$$\Phi_{\Omega} = \left(\sum_i N_i C_i \right) \cdot V \cdot \varphi_0 \quad (19)$$

où :

C_i est la section efficace de diffusion angulaire $C_{XY,\Omega}$ pour une particule du constituant i ,

N_i est la concentration volumique du constituant i ,

V est le volume de mesure déterminé par la section du faisceau lumineux incident et les dimensions du filtre spatial,

φ_0 est la densité de flux du faisceau lumineux incident.

$K_i = N_i \cdot C_i$ est le coefficient de diffusion angulaire défini au § B-II-1-a pour un nuage de particules.

Selon sa longueur d'onde λ la lumière diffusée pourra provenir de phénomènes différents. Ainsi l'onde incidente étant toujours monochromatique et de longueur d'onde λ_0 on pourra avoir :

- diffusion de Rayleigh par les molécules de gaz ($\lambda = \lambda_0$),
- diffusion de Mie par les particules solides ou les gouttelettes ($\lambda = \lambda_0$),
- diffusion de Raman (vibrationnelle ou rotationnelle) ($\lambda \neq \lambda_0$),
- fluorescence ($\lambda \neq \lambda_0$).

Dans le tableau B-1 établi par d'Alessio [A-27] sont indiquées les sections efficaces de diffusion angulaire ainsi que leur produit par les concentrations typiques, c'est-à-dire les coefficients de diffusion, pour ces différents processus de diffusion optique.

A titre d'exemple, nous allons évaluer le flux diffusé dans le cas du montage simplifié représenté sur la figure B-9. Le flux d'énergie, ou puissance, qui passe par le filtre spatial pour une configuration classique :

$$\Phi = N \cdot C_{VV,\Omega} \cdot V \cdot \Omega \cdot \varphi_{\lambda_0}$$

où V est le volume de mesure et Ω l'angle solide d'observation. En considérant les ordres de grandeurs typiques pour les particules de suie dans une flamme ($V = 10^{-10} \text{ m}^3$, $\Omega = 0,01 \text{ sr}$, $\varphi_{\lambda_0} = 5 \cdot 10^5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $N = 10^{15} \text{ m}^{-3}$, $C_{VV,\Omega} = 6 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2 \text{ sr}^{-1}$), Φ est de l'ordre de 10^{-7} W .

Processus	Nature du diffusant	N cm ⁻³	$C_{VV,\Omega(90^\circ)}$ cm ² .sr ⁻¹	$K_{VV(90^\circ)}$ cm ⁻¹ .sr ⁻¹
Rayleigh	N ₂ , O ₂ , CH ₄	10 ¹⁸ à 10 ¹⁹	10 ⁻²⁸ à 10 ⁻²⁷	10 ⁻¹⁰ à 10 ⁻⁸
Rayleigh	vapeur de gazole	10 ¹⁷ à 10 ¹⁹	10 ⁻²⁷ à 10 ⁻²⁵	10 ⁻¹⁶ à 10 ⁻¹⁰
diffusion de Mie	suies	10 ⁸ à 10 ¹⁵	10 ⁻²⁵ à 10 ⁻¹²	10 ⁻¹⁰ à 10 ⁻³
fluorescence à 514,5 nm	HPA	10 ¹⁵	10 ⁻²⁵ à 10 ⁻¹⁹ $\Delta\lambda = 0,3$ nm	10 ⁻¹⁵ à 10 ⁻⁸ $\Delta\lambda = 0,3$ nm
Raman	N ₂ , O ₂ , CH ₄	10 ¹⁹	10 ⁻³¹ à 10 ⁻³⁰	10 ⁻¹¹

Tableau B-1 Valeurs numériques des coefficients de diffusion

B-II-3/ Mesure de la taille et de la concentration de particules dans un nuage

Depuis le début des années soixante dix, les techniques de mesure basées sur la diffusion de la lumière sont de plus en plus fréquemment employées pour la caractérisation optique de la taille des particules.

Ces techniques sont maintenant couramment utilisées pour la mesure de la taille et de la concentration des particules de suie dans les flammes ainsi que pour celle des gouttelettes dans les jets liquides. L'exploitation de la théorie de Mie peut se faire de multiples façons. Les variantes développées ci-dessous sont celles que l'on rencontre le plus souvent :

a/ Méthode du rapport d'anisotropie (figure B-5-a)

L'intensité de la lumière diffusée par une sphère dépend de l'angle d'observation θ . La méthode du rapport d'anisotropie décrite ici est basée sur la variation de cette dépendance angulaire avec le diamètre.

En effet, la mesure des intensités Φ_{Ω}^1 et Φ_{Ω}^2 diffusées dans deux directions θ_1 et θ_2 , et

le calcul de leur rapport $\frac{\Phi_{\Omega}^1}{\Phi_{\Omega}^2}$ pour s'affranchir du nombre de particules, permet de

déterminer le diamètre des particules à partir des calculs de la théorie de Mie. Ceci est illustré par la figure B-5-a où nous avons représenté l'évolution du rapport des intensités (pour une polarisation incidente verticale) en fonction du diamètre pour différents couples d'angles d'observation θ . Nous pouvons remarquer que pour améliorer la sensibilité de la mesure, il faut prendre des angles très éloignés. En effet parmi les exemples montrés, 20 et 160 degrés donnent la plus grande sensibilité, mais nous pouvons voir que pour ce couple de valeurs, il existe des solutions multiples à partir d'un diamètre de particules de 250 nm alors que pour les valeurs 60 et 120 degrés, cette indétermination n'apparaît que pour un diamètre de 280 nm. Ces courbes et valeurs sont obtenues dans l'hypothèse d'une distribution monodisperse de diamètres. Elles seront modifiées ultérieurement lorsque nous tiendrons compte d'une loi de distribution des tailles des particules. Dans le cas d'un nuage monodisperse, le choix des angles de diffusion s'accompagne d'un compromis entre la sensibilité et l'étendue de la gamme des diamètres mesurables. Nous verrons plus loin que ce choix peut aussi être guidé par des limitations expérimentales telles que les possibilités d'accès optiques à la chambre de combustion d'un moteur Diesel.

D'Alessio [1974] a noté que cette méthode du rapport d'anisotropie présente l'avantage d'être peu sensible à l'indice de réfraction. Elle permet en outre de s'affranchir de la mesure du nombre de particules et de tout étalonnage de l'appareillage.

Par ailleurs, le rapport de l'une des deux intensités diffusées à celle diffusée théoriquement dans la même direction par une particule unique du diamètre déterminé précédemment donne le nombre de particules dans le volume de mesure. Cette mesure de concentration nécessitant la mesure d'une puissance absolue impose un étalonnage de la chaîne de mesure qui n'était pas nécessaire pour la détermination du diamètre.

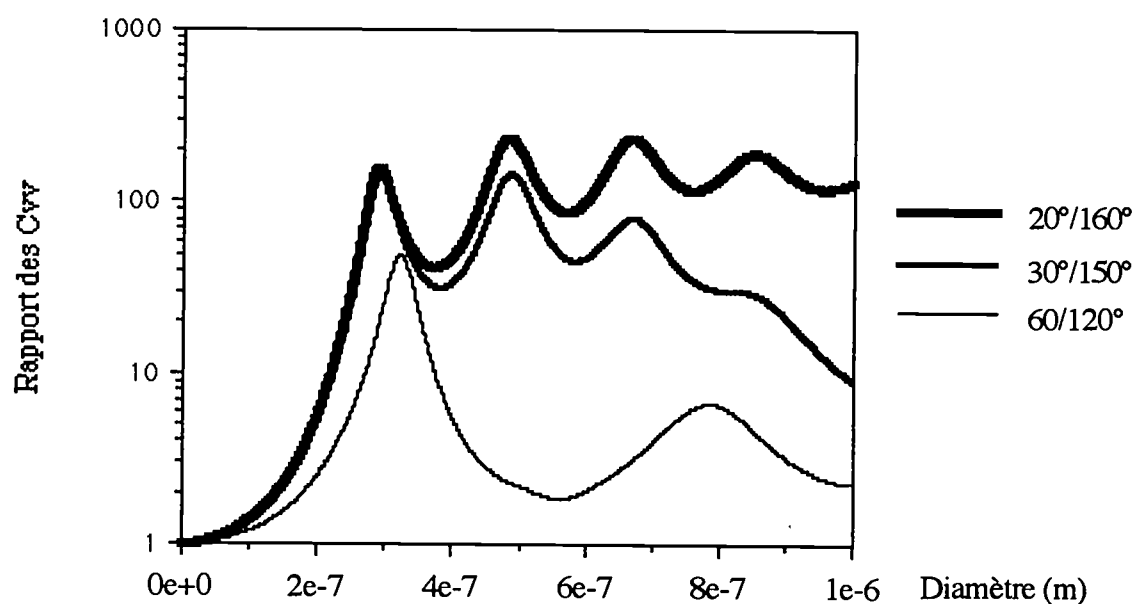


Figure B-5-a Evolution du rapport des intensités diffusées dans deux directions en fonction du diamètre des particules

b/ Méthode du rapport de polarisation

La mesure du rapport des intensités diffusées dans une direction donnée selon deux polarisations orthogonales peut être confronté au calcul pour déterminer la valeur de la taille, comme cela apparaît sur la figure B-5-b. La sensibilité de cette méthode dépend beaucoup de l'angle d'observation θ choisi comme. En l'appliquant à une flamme de diffusion de propane Nishida et col. [1983] ont trouvé que l'angle $\theta = 20^\circ$ est celui qui donne la meilleure sensibilité.

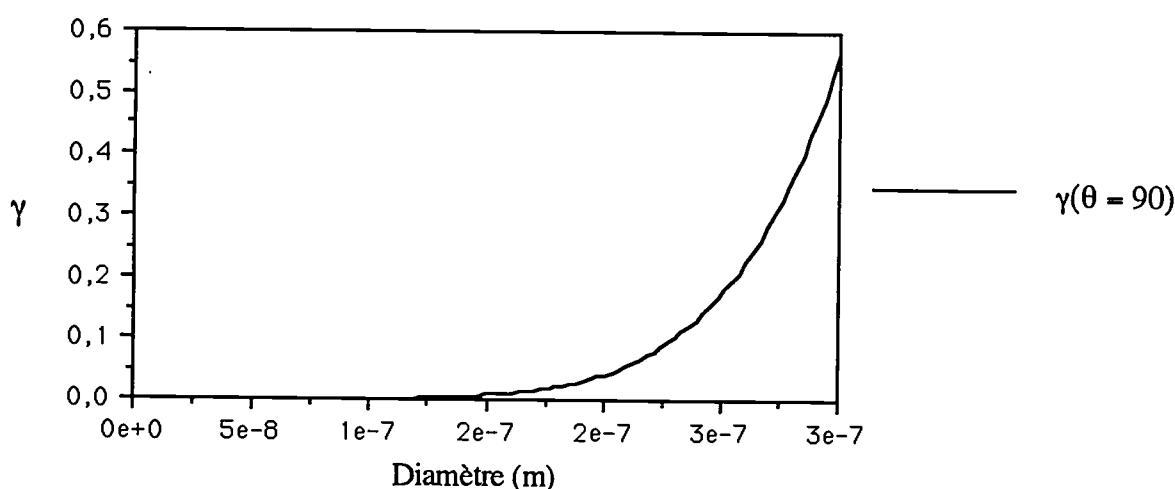


Figure B-5-b Evolution du rapport de polarisation en fonction du diamètre

c/ Méthode du coefficient d'extinction

Pour une longueur d'onde donnée, le rapport des flux transmis et incident $\frac{\Phi^t}{\Phi^0}$ permet d'approcher convenablement la fraction volumique de particules grâce à la loi de Beer-Lambert développée en annexe 2 :

$$\Phi^t = \Phi^0 \cdot \exp(-K_{\text{ext}} \cdot L)$$

où L est la longueur traversée par le faisceau lumineux dans le nuage de particules.

En effet, à partir de cette mesure du coefficient d'extinction et en se mettant dans l'hypothèse de Rayleigh, on peut déterminer la fraction volumique des particules par la relation :

$$K_{\text{ext}} = N \cdot C_{\text{ext}} = N \cdot \frac{\pi \cdot D^3}{4 \lambda} \operatorname{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)$$

En raison de sa facilité d'emploi, cette méthode est celle qui est le plus souvent utilisée sur les systèmes de combustion complexes tels que le moteur Diesel.

En se replaçant dans le cadre de la théorie de Mie, on peut observer que le coefficient d'extinction est fonction du diamètre des particules et de la longueur d'onde. La détermination du diamètre des particules nécessite la mesure du rapport du flux transmis au flux incident pour

plusieurs longueurs d'onde. La confrontation de cette mesure aux résultats des calculs de la théorie de Mie présentés figure B-5-c permet alors de déterminer simultanément le diamètre et la concentration de particules. Bien que cette méthode soit peu sensible au diamètre, elle a été souvent utilisée pour la caractérisation des nuages de particules de suie (mesure de la fraction volumique seulement) dans les flammes [Kamimoto et col., 1989, Newman et col., 1987, Grosshandler, 1989, Naegeli et col., 1983, Pagni et col., 1978, Wersborg et col., 1975, Flower, 1989]

d/ Méthode du rapport diffusion-extinction

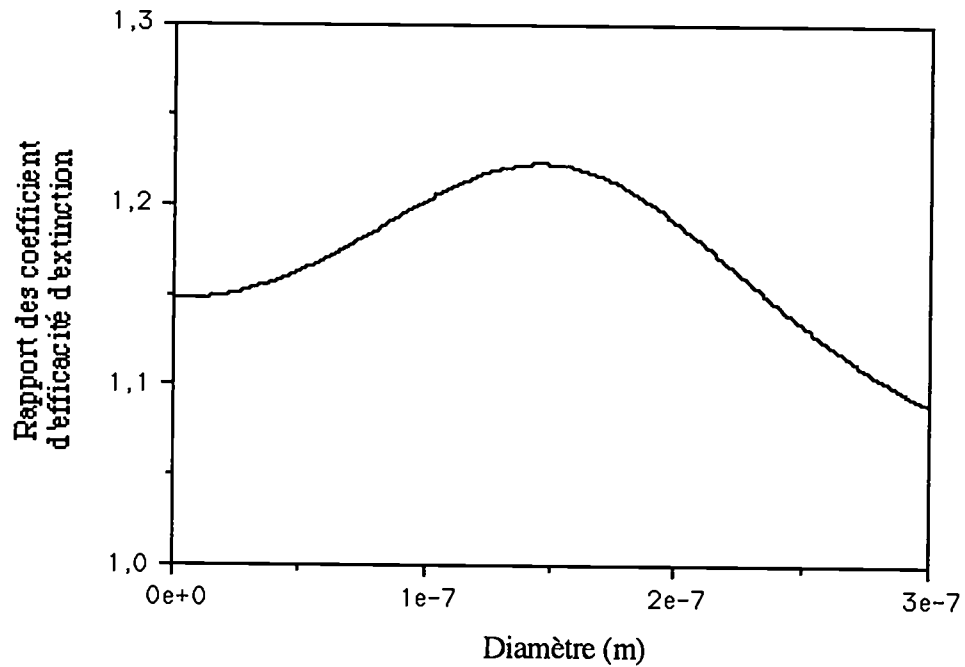
Une dernière technique est basée sur la mesure des coefficients d'extinction et de diffusion de la lumière dans une direction donnée. En se plaçant dans le cadre de la théorie de Rayleigh, cette méthode est d'une application immédiate dans la mesure où l'on peut exprimer directement le diamètre D et la fraction volumique F_v en fonction des paramètres mesurés, $K_{VV,\Omega}$ et K_{ext} par les relations suivantes établies pour $\lambda = 514,5$ nm et $m = 1,57 - 0,56 i$:

$$\left. \begin{aligned} F_v &= - \frac{\lambda}{6\pi} \cdot \frac{K_{ext}}{\operatorname{Im}\left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right)} = - 1,05 \cdot 10^{-7} \cdot K_{ext} \\ D &= - \left(\frac{4 \cdot \lambda^3}{\pi} \cdot \frac{\operatorname{Im}\left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right) K_{VV,\Omega}}{\left|\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right|^2 K_{ext}} \right)^{\frac{1}{3}} = 415 \cdot 10^{-9} \cdot \left(\frac{K_{VV,\Omega}}{K_{ext}}\right)^{\frac{1}{3}} \end{aligned} \right\}$$

Cette méthode a été utilisée par d'Alessio [1974, 1976] ainsi que par Jagoda [1980] et Garo [1984].

D'Alessio [1974] a noté qu'elle présente par rapport aux autres procédés l'avantage d'être très sensible dans le domaine des faibles diamètres ($D < 100$ nm), le seul par ailleurs où elle est applicable.

$$\lambda_1/\lambda_2 : 600/700 \text{ nm}$$



$$\lambda_1/\lambda_2 : 400/800 \text{ nm}$$

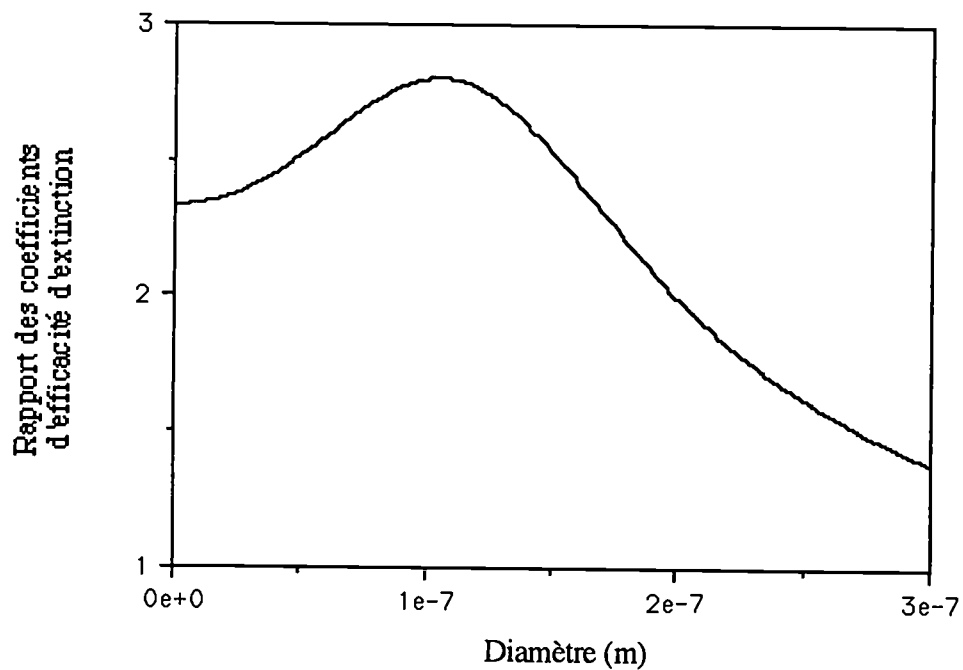


Figure B-5-c Evolution du rapport des coefficients d'efficacité d'extinction, mesurés à 2 longueurs d'onde, en fonction du diamètre

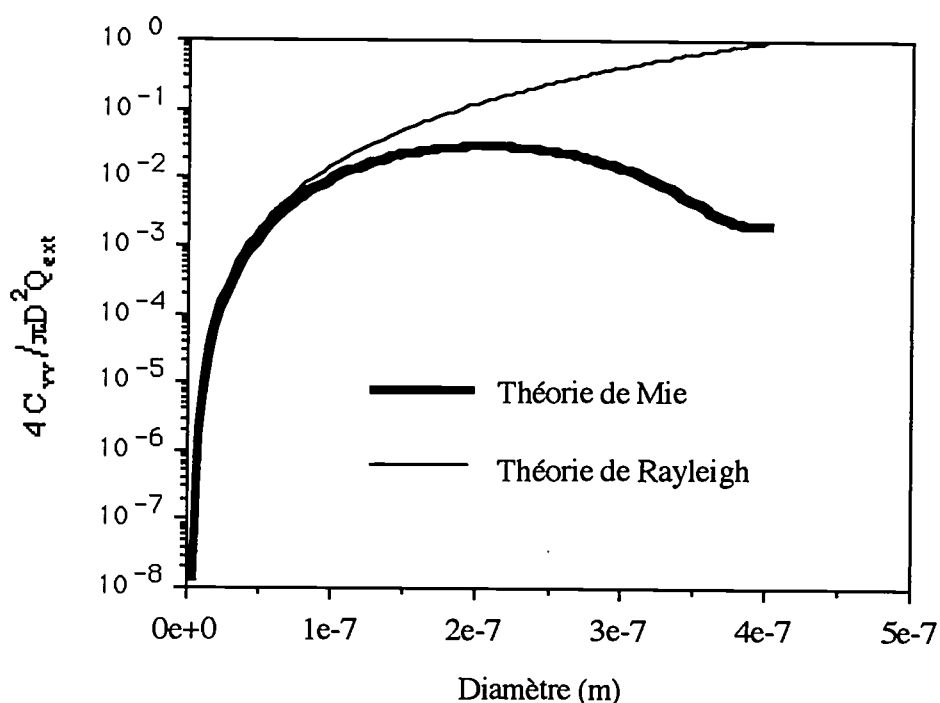


Figure B-5-d Application de la méthode du rapport diffusion-extinction
Ecart entre les théories de Mie et de Rayleigh

e/ Remarques générales

- Pour des particules parfaitement sphériques, la théorie de Mie permet d'affirmer que si le faisceau incident est polarisé verticalement, la lumière diffusée le sera aussi. Néanmoins, expérimentalement, il existe toujours des composantes dépolarisées non nulles. De nombreux travaux ont mis en évidence une correspondance entre la forme réelle de la particule (agrégat, ellipsoïde) et la dépolarisation. Leur utilisation pourrait être intéressante pour étudier les dernières étapes de l'évolution des particules de suie, au moment où les agrégats commencent à apparaître.

- Notons aussi que dans ce cas des particules non parfaitement sphériques, le diamètre mesuré est un diamètre équivalent correspondant à la sphère qui diffuserait la lumière de la même façon.

- Une des difficultés rencontrées dans ces mesures expérimentales est liée à l'émission propre des flammes. Il est possible de s'en affranchir en travaillant comme nous le verrons plus loin sur un faisceau de lumière modulé associé à l'utilisation d'un détecteur synchrone (voir annexe 3).

- Il faut noter que lorsque l'atténuation à travers la flamme est suffisamment importante, il peut s'avérer nécessaire de la prendre en compte pour déterminer la lumière diffusée par les particules. Jagoda et col. [1980] ont fait le calcul correspondant dans le cas d'une flamme de

polystyrène particulièrement fuligineuse et ont montré que la valeur de la lumière diffusée mesurée pouvait alors être inférieure de 30% à la valeur réelle. Compte tenu des fractions volumiques relevées dans nos flammes, nous avons toujours pu négliger ce phénomène.

B-II-4/ Indice de réfraction et incertitudes

L'indice de réfraction est l'une des caractéristiques physiques les moins bien connues des particules de suie. En effet, comme nous l'avons vu au § A-II, il varie considérablement selon les auteurs, probablement en raison de sa dépendance vis-à-vis de la nature des particules de suie.

Pour la longueur d'onde de 514,5 nm que nous avons utilisée pour la diffusion de la lumière, les valeurs proposées par la littérature sont les suivantes :

Valeur	Auteurs
1,57 - 0,56 i	Dalzell et col. [1969]
2,0 - 1,0 i	Chippit et col. [1978]
1,94 - 0,66 i	Senftleben et col. [1918]

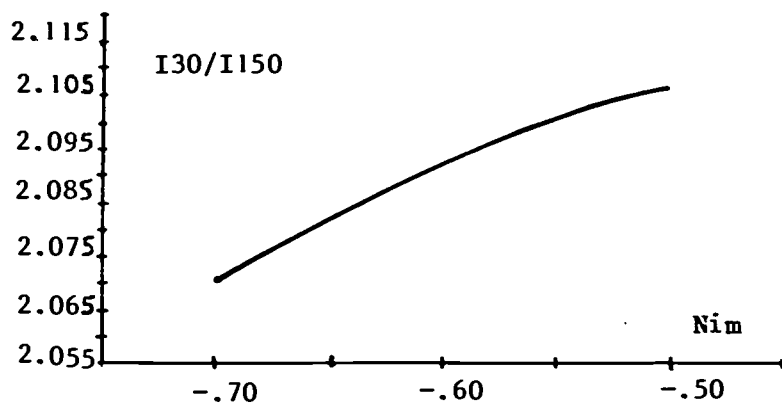
De plus, une étude réalisée au laboratoire par Belmabrouk [1988] a montré qu'une variation de température de 1 000 K induisait des variations de 6 % sur la partie réelle et de 7 à 14 % sur la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

Rappelons que nous avons adopté la valeur 1,57 - 0,56 i proposée par Dalzell et col. [1969] et que nous l'avons supposée indépendante de la température.

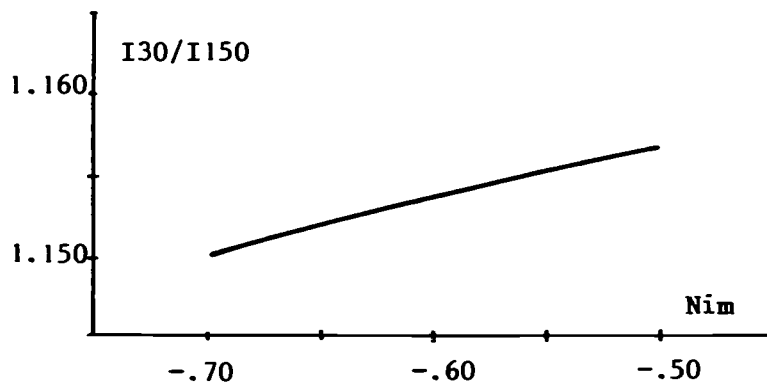
Compte tenu de ces imprécisions, il est important de déterminer l'incertitude qu'elles entraînent sur les caractéristiques des particules de suie. Nous avons représenté sur la figure B - 6 l'évolution du rapport des intensités diffusées avec une polarisation verticale en fonction respectivement de la partie réelle et de la partie imaginaire de l'indice de réfraction. A partir de ces courbes et des calculs correspondants, nous pouvons évaluer l'erreur que nous faisons sur la mesure du diamètre par la méthode du rapport d'anisotropie lors d'une variation de température de 1000 K.

D	70 nm	150 nm
ΔD	2 nm	3,5 nm

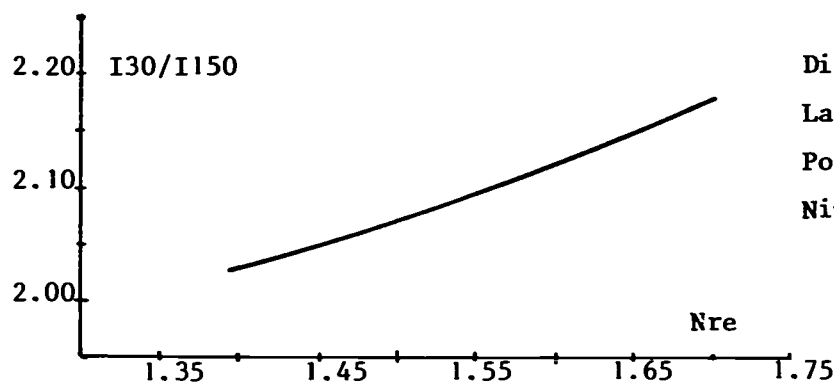
Ce résultat nous permet d'affirmer que l'hypothèse selon laquelle l'indice de réfraction est indépendant de la température entraîne une erreur sur le diamètre mesuré inférieure à 3 %.



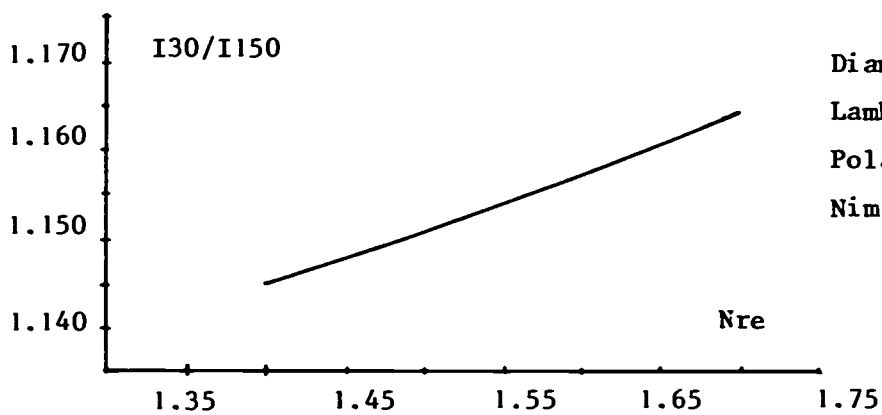
Théorie de Mie
 Polarisation verticale
 Lambda = 514.5 nm
 Diamètre = 150 nm
 Nre = 1.55



Théorie de Mie
 Polarisation verticale
 Lambda = 514.5 nm
 Diamètre = 70 nm
 Nre = 1.55



Diamètre = 150 nm
 Lambda = 514.5 nm
 Polarisation verticale
 Nim = -0.6



Diamètre = 70 nm
 Lambda = 514.5 nm
 Polarisation verticale
 Nim = -0.6

Figure B-6 Sensibilité du rapport d'anisotropie à l'indice de réfraction

B-II-5/ Distribution du diamètre dans le volume de mesure

Dans toute l'étude théorique précédente, suivant en cela Garo [1984] et Kent [1982], nous avons supposé une distribution monodisperse du diamètre dans le volume de mesure. Une approche plus réaliste consiste à considérer une distribution statistique de diamètres. En effet les observations microscopiques ont montré que l'hypothèse la plus proche de la réalité est celle d'une distribution du type logarithmique. D'autres auteurs [Kontani et col., 1986, Newman et col., 1987, Pagni et col., 1978, Santoro et col., 1983] ont proposé des lois de distribution similaires dont les formes respectives sont données en annexe 4.

Les observations microscopiques de particules de suie prélevées montrent que l'écart-type de la distribution des diamètres se situe entre 0,1 et 0,5.

Nishida et col. [1983] ont trouvé qu'en tenant compte d'une telle distribution, le diamètre obtenu à partir de la mesure du rapport d'anisotropie pour des particules de suie dans les milieux en combustion (entre 150 et 200 nm) est inférieur de 40 à 80 nm à celui calculé dans l'hypothèse d'une distribution monodisperse.

Toutefois d'Alessio [1974] a montré que dans le cas de la méthode du rapport diffusion-extinction, le diamètre mesuré est moins sensible à l'écart-type que dans le cas de celle du rapport d'anisotropie.

La définition totale d'une telle distribution nécessite donc la détermination de l'écart-type σ , du diamètre le plus probable D_m et de la concentration N . La mesure d'un paramètre supplémentaire (mesure de la lumière diffusée à un troisième angle pour la méthode du rapport d'anisotropie par exemple) ou la combinaison de deux des méthodes précédentes comme l'a fait Bonczyk [1979] est alors nécessaire pour obtenir le troisième paramètre.

Dans une étude de la formation de la suie par pyrolyse, Bonczyk [1979] a eu une approche originale du problème : après avoir proposé une distribution logarithmique d'ordre zéro (ZOLD), il a effectué les quatre mesures suivantes :

- atténuation à deux longueurs d'onde différentes,
- rapport de polarisation à $\theta = 90^\circ$,
- rapport d'anisotropie entre $\theta = 45^\circ$ et $\theta = 135^\circ$,
- rapport entre la diffusion à $\theta = 90^\circ$ et le coefficient d'extinction.

Chacune de ces mesures permet pour un écart-type donné de trouver le diamètre le plus probable D_m . L'écart-type de la distribution est celui qui donne le même diamètre par les quatre mesures. L'auteur a trouvé $\sigma = 0,3$.

Afin de ne conserver que deux paramètres inconnus dans nos mesures, nous avons adopté cette valeur. Sur la figure B-7, nous avons montré l'influence de ce choix de l'écart-type sur le diamètre trouvé par la méthode du rapport d'anisotropie : à partir de $\sigma = 0,3$, l'ambiguïté sur le

diamètre disparaît, la relation de détermination devenant monotone, et, pour un rapport d'intensité donné, le diamètre trouvé est plus petit.

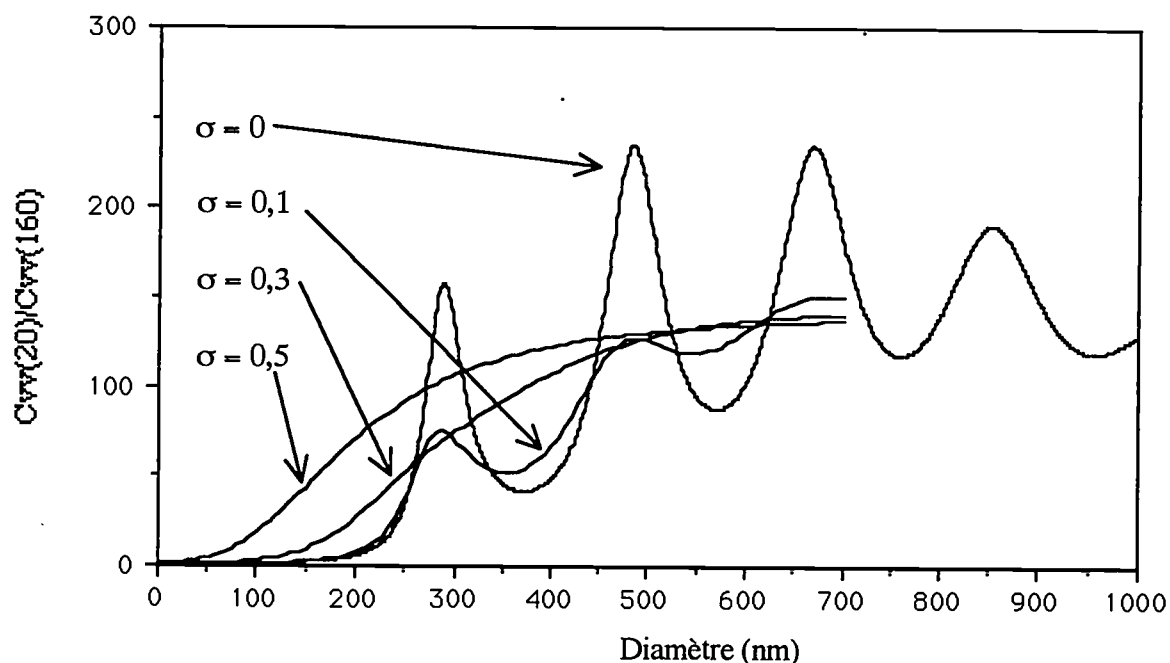


Figure B-7 Influence de l'écart-type sur le rapport d'anisotropie

B-III/ Banc de mesures optiques

B-III-1/ Dispositif expérimental

Ce dispositif est représenté sur la figure B-10. Le faisceau lumineux initial (qui peut provenir par exemple d'un laser ou d'une source à arc) est focalisé au point de mesure à l'aide d'une lentille convergente après être éventuellement passé dans un polariseur P1 qui permet de choisir la polarisation de l'onde incidente (P1 est inutile dans le cas où l'onde initiale est déjà polarisée).

L'intensité diffusée dans chacune des deux directions θ_1 et θ_2 est mesurée à l'aide d'un ensemble constitué par :

- une lentille collectrice LC,
- un polariseur P qui permet de sélectionner la composante utile à nos mesures et d'atténuer la composante provenant de la non sphéricité des particules ainsi que du rayonnement de la flamme,

- un filtre spatial, FS, (ou diaphragme de champ) pour délimiter l'espace de mesure,
- un filtre interférentiel, FI, centré sur la longueur d'onde de mesure, destiné à éliminer le plus possible le rayonnement thermique de la flamme,
- un photomultiplicateur pour la mesure du flux lumineux passant par le filtre spatial.

Pour la mesure de la lumière transmise, le banc optique comprend généralement :

- un filtre neutre pour atténuer la lumière directe,
- une lame à surface dépolie qui permet de limiter les effets de la déviation du faisceau par les gradients de température (la sensibilité d'un capteur photo-électrique peut varier d'un point à l'autre de sa surface),
- un filtre interférentiel FI ou un monochromateur centré sur la longueur d'onde utilisée pour atténuer le rayonnement propre de la flamme,
- une photodiode ou un photomultiplicateur pour la mesure.

Ces méthodes de mesure sont les plus fréquemment présentées dans la littérature. Pour la mesure de la lumière transmise, une solution différente sera décrite et adoptée au chapitre C. L'intensité du rayonnement de la flamme est en général 10 fois plus grande que celle de la lumière diffusée. Afin de séparer ces deux flux, nous utiliserons chaque fois que cela sera nécessaire un procédé de détection synchrone. Celui-ci permet de réduire la partie du signal provenant du rayonnement à des valeurs négligeables devant la lumière diffusée. Dans ce but le faisceau lumineux est modulé par un hacheur (chopper). Dans le cas d'études sur moteur alternatif à combustion interne à l'aide d'un faisceau laser, on utilise pour cela un modulateur opto-acoustique afin d'obtenir des fréquences suffisamment élevées (environ 100 kHz). Ce dispositif est décrit en annexe 3.

Dans tous les cas, une lame séparatrice semi-réfléchissante prélève une partie du faisceau incident et l'envoie sur une photodiode. Celle-ci délivre un signal "de référence" indiquant la fréquence et la phase de la modulation aux différents détecteurs synchrones disposés à la sortie des capteurs optiques.

B-III-2/ Influence de la précision de l'alignement sur la mesure

L'alignement réalisé à l'aide de sources auxiliaires peut évoluer sous l'effet des dilatations diverses, des vibrations du moteur et d'autres perturbations. Il s'agit donc ici de déterminer l'incertitude sur le diamètre provenant de ces défauts d'alignement.

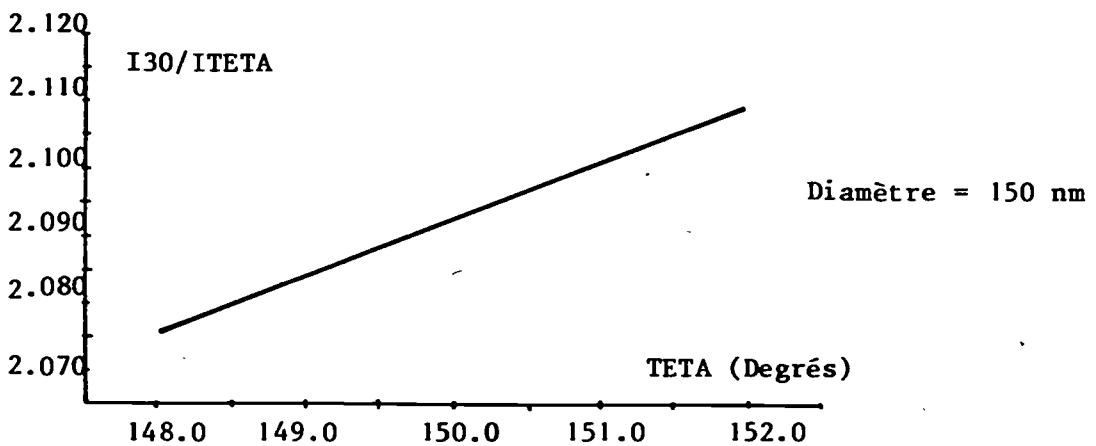
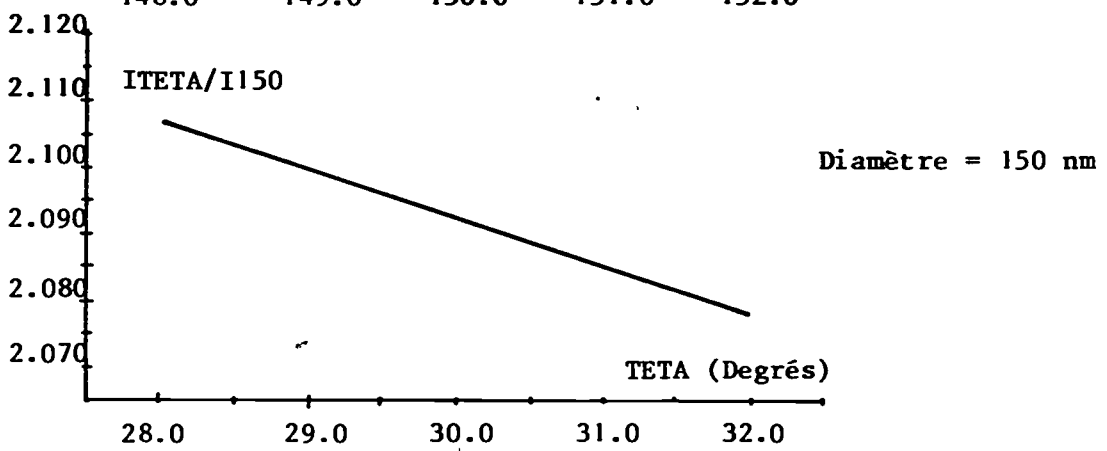
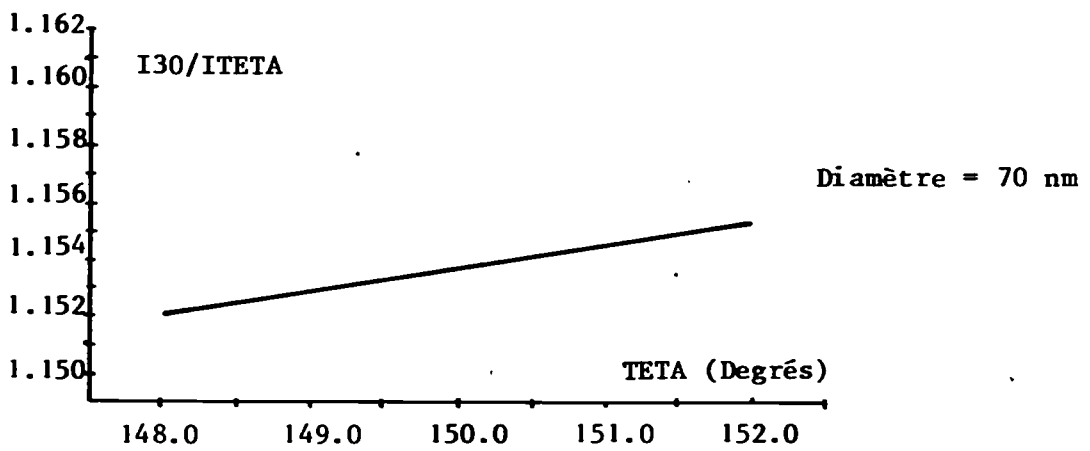
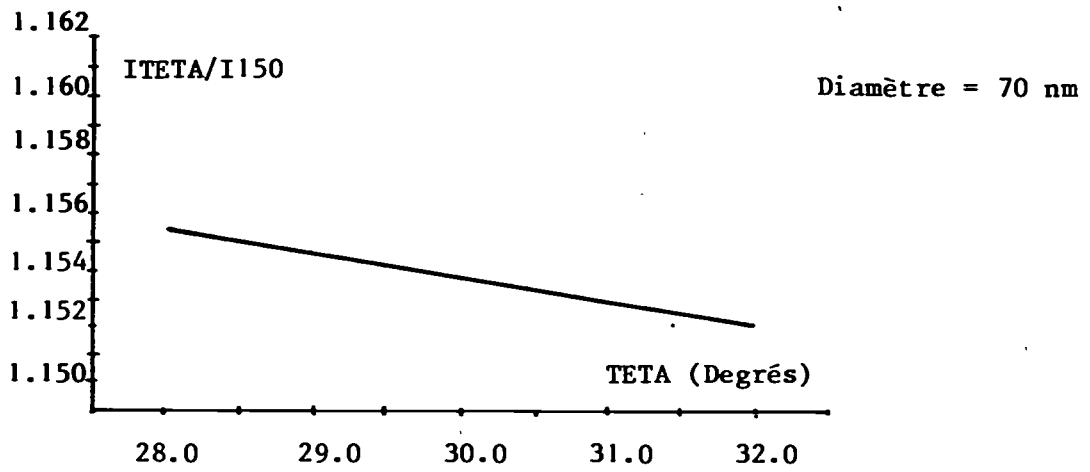


Figure B-8 Sensibilité du rapport d'anisotropie à la précision de l'angle de mesure

Pour cela nous avons représenté figure B-8 l'évolution du rapport des sections de

diffusion angulaires $\frac{C_{VV,\Omega}(30)}{C_{VV,\Omega}(150)}$ pour des diamètres donnés (70 et 150 nm) en fonction des erreurs d'alignement susceptibles d'être commises sur chacun des deux angles θ_1 et θ_2 .

Un calcul d'incertitude simple nous permet de constater que pour un diamètre de 70 nm, nous commettons une erreur de 3,4 nm pour une variation de 1 degré sur $\theta = 30^\circ$ et de 0,37 nm pour une variation de 1 degré sur $\theta = 150^\circ$. Pour un diamètre de 150 nm, ces erreurs deviennent respectivement égales à 0,6 nm et 0,7 nm. Sachant que l'erreur sur l'alignement que nous avons effectué ne dépasse pas la moitié d'un degré, nous voyons que l'erreur induite par les défauts d'alignement est de l'ordre du nanomètre pour le diamètre des particules considérées.

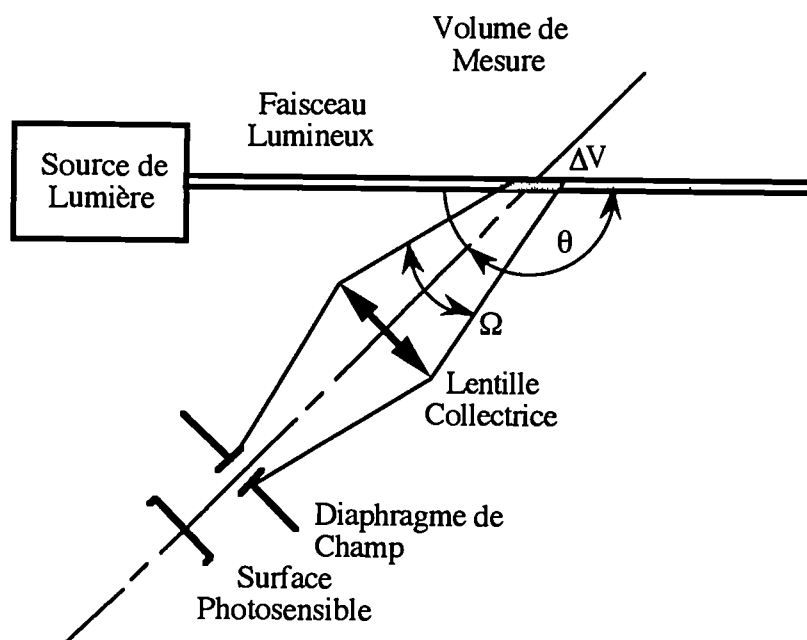


Figure B-9 Montage de base pour la mesure de la lumière diffusée

B-III-3/ Mesure du diamètre des billes de Latex calibrées

Afin de vérifier la validité de la méthode de mesure utilisée, nous l'avons appliquée à des billes de Latex de diamètre et d'indice de réfraction connus $D=121$ nm et $m = 1,59$ mises en suspension dans l'eau.

Avec les angles de diffusion choisis de 45 et 135 degrés, la mesure a permis de retrouver le diamètre de ces particules avec une erreur inférieure à 15 %.

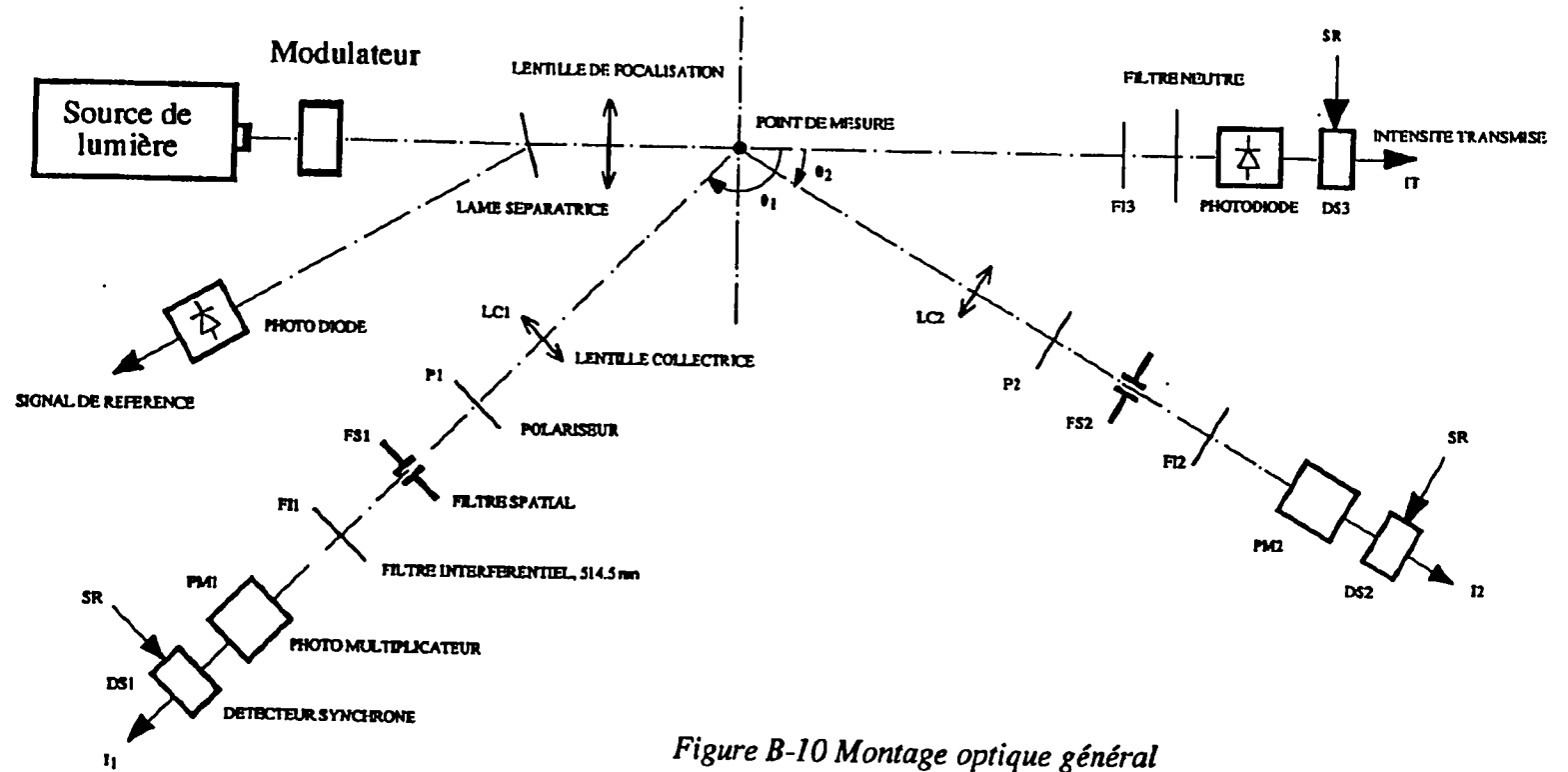


Figure B-10 Montage optique général

CHAPITRE C

CARACTERISATION DES PARTICULES DE SUIE DANS UNE FLAMME LIBRE

La configuration de la flamme de prémélange ayant déjà été souvent étudiée et ne représentant que la première phase de la combustion Diesel, nous avons choisi d'étudier une flamme de diffusion, plus représentative de ce type de combustion. Pour aborder ce problème, nous nous sommes reportés initialement aux travaux de Garo [1984], Nishida [1983] et Santoro [1983] qui ont plus particulièrement étudié les flammes de diffusion laminaires.

C-I/ Applications précédentes de la diffusion de la lumière aux flammes laminaires de diffusion

Nous allons présenter les méthodes optiques et les résultats auxquelles elles ont conduit lors d'études antérieures sur la formation des particules de suie dans les flammes de diffusion laminaires.

Kunugi et col. [1967] ont relevé la distribution angulaire du rapport de polarisation $\gamma = C_{HH, \Omega} / C_{VV, \Omega}$. Sa comparaison à l'évolution prévue par la théorie pour différents diamètres permet de déterminer la taille des particules présentes dans le volume de mesure. Les valeurs des diamètres obtenus sont comprises entre 120 et 200 nm. Les auteurs ont comparé ces résultats à ceux donnés par l'observation microscopique de prélèvements. Ils ont trouvé que les valeurs mesurées par diffusion de la lumière sont 3 à 5 fois plus grandes que celles obtenues sur les prélèvements. L'explication qu'ils ont donnée consiste à dire que la méthode de mesure est particulièrement sensible aux grands diamètres en raison du fait que l'intensité diffusée est proche d'une puissance six du diamètre comme le montre l'approximation de Rayleigh.

La concentration est déterminée quant à elle à partir de l'intensité diffusée à $\theta = 90^\circ$ pour une polarisation verticale en se basant sur un étalonnage utilisant une suspension de billes de polystyrène dans l'eau.

Jagoda et col. [1980] ont étudié des flammes de diffusion de polystyrène et de polypropylène. Ils ont utilisé de façon complémentaire l'observation microscopique de prélèvements pour obtenir la taille des sphérules élémentaires et une méthode optique de "diffusion extinction" semblable à celle décrite au § B-II-3-d pour la détermination locale de la taille des agrégats et de la fraction volumique.

Cette méthode constitue donc une bonne réponse aux remarques des auteurs précédents.

Auteurs	Combustible	Type de mesure	$F_{v, \max}$	D_{\max} (nm)	N_{\max} (m^{-3})	Longueur d'onde (nm)	Indice de réfraction
Garo [1984]	méthane	diff-ext	$2 \cdot 10^{-7}$	40	$1,5 \cdot 10^{12}$	514,5	1,57-0,56i
Santoro [1983]	éthène / éthane	diff-ext	10^{-5}	100	$6 \cdot 10^{16}$	514,5	1,57-0,56i
Nishida et col. [1983]	propane + azote	rapport de polarisation	$3 \cdot 10^{-6}$	120	10^{16}	632,8	1,56-0,52i
Newman et col. [1987]	multiples	extinction	10^{-6}			457,9 632,8 1060	2,03-0,39i 1,83-0,42i 1,81-0,45i
Kunugi et col. [1967]	mélanges	anisotropie de la diffusion	10^{-6}	200	10^{15}	450	1,91-0,675i
Jagoda et col. [1980]	polystyrène	diff-ext	$3 \cdot 10^7$	100	10^{17}	494,5	1,57-0,56i
Kent et col. [1982]	éthylène	diff-ext	10^7	140	$10^{16,5}$	488	1,57-0,56i

Tableau C-1 Caractérisation des suies dans des flammes de diffusion laminaires par des méthodes optiques

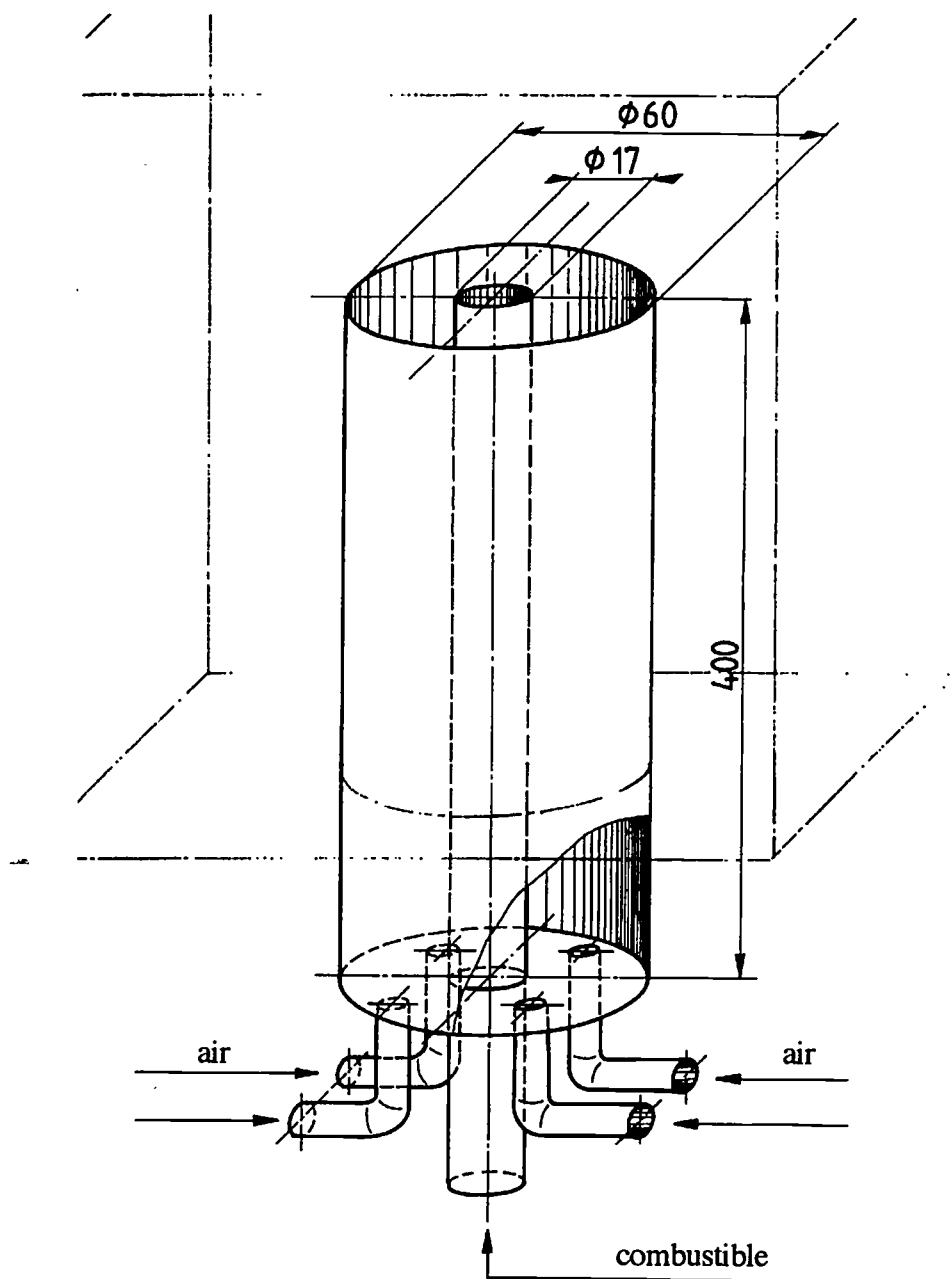


Figure C-1 Dessin du brûleur de la flamme de diffusion

C-II/ Dispositifs expérimentaux

C-II-1/ Principe

Parmi les différentes méthodes de caractérisation locale des nuages de particules présentées au chapitre précédent, nous avons retenu pour l'étude de la flamme libre la méthode de "diffusion-extinction" décrite au § B-II-3. En effet, pour ces flammes, la taille des particules reste en général inférieure à 100 nm et l'hypothèse de la théorie de Rayleigh qui a été utilisée dans la présentation de cette méthode est ici justifiée. Dans ce cas, les mesures de diffusion et d'extinction de la lumière ne sont pas effectuées simultanément mais la flamme expérimentale est ici suffisamment stable pour permettre de les réaliser successivement sans craindre d'évolution de la combustion.

En outre, la symétrie de la flamme autorise la détermination du coefficient d'extinction local par la déconvolution d'Abel appliquée aux mesures effectuées sur une traversée optique. Ce procédé appelé méthode de la pelure d'oignon (onion peeling) est décrit en annexe 6.

C-II-2/ La flamme expérimentale

Le brûleur est constitué de deux tubes coaxiaux de diamètres intérieurs 60 et 17 mm destinés à amener respectivement le comburant et le combustible à la zone de combustion. Le brûleur d'une hauteur totale de 350 mm est représenté sur la figure C-1. Il est placé sur des platines de translation permettant des déplacements dans deux directions avec une résolution de 0,005 mm (verticalement et horizontalement dans un plan perpendiculaire au faisceau laser).

Le combustible utilisé est une coupe pétrochimique (butane commercial). On utilise de l'air comme comburant. La flamme obtenue est une flamme de diffusion laminaire. Les débits de gaz à l'entrée du brûleur sont $0,42 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour le combustible et $222 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'air (ce qui correspond à des vitesses linéaires respectives de $0,19 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ et $9,9 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$).

Etant donné les dimensions relatives de la flamme (environ 35 mm de hauteur) et du volume de mesure optique ($0,5 \text{ mm}^3$ environ), l'obtention d'une flamme parfaitement stable a nécessité un certain nombre de précautions :

- stabilisation des débits d'air et de gaz combustible ;
- protection contre les courants d'air locaux par des parois transparentes en verre ;
- évacuation des gaz brûlés à travers une paroi poreuse disposée au-dessus de la flamme.

C-II-3/ Le montage optique

Le montage optique adopté pour l'application de la méthode de mesure choisie (diffusion - extinction) est représenté sur la figure C-2. La source de lumière utilisée est un laser à Argon ionisé réglé sur sa longueur d'onde 514,5 nm. Le faisceau lumineux est focalisé au point de mesure par une lentille de 444 mm de distance focale et la lumière diffusée dans la direction 90° est collectée par une lentille de focale 155 mm.

Un filtre spatial de diamètre 1 mm détermine dans la flamme le volume de mesure, intersection de la zone observée et du faisceau incident. Un monochromateur de bande passante 8 nm, sélectionne la lumière diffusée de même longueur d'onde que celle issue du laser soit 514,5 nm, éliminant ainsi la plus grande partie du rayonnement propre de la flamme. En outre, une détection synchrone a été utilisée pour parachever l'élimination du rayonnement propre des particules de suie.

Une lampe à ruban de tungstène sert successivement à la mesure de l'atténuation de la lumière puis à l'étalonnage de la mesure de la lumière diffusée. Grâce à la largeur de son ruban, cette source présente l'avantage de résoudre le problème de la déviation du faisceau lumineux par les gradients de température élevés rencontrés sur son trajet optique. En utilisant un tel ruban rayonnant, le problème disparaît si :

- l'image de la surface du ruban de tungstène est nettement plus grande que l'orifice du filtre spatial ;
- le rayonnement du ruban est uniforme sur toute sa surface.

Lorsqu'un faisceau laser est utilisé, le problème peut être également résolu en plaçant une lame à surface dépolie avant le capteur optique. Nous avons abandonné cette solution en raison des erreurs introduites par le filtre lui-même.

C-III/ Mise en oeuvre de la méthode de diffusion-extinction

Une cartographie de la flamme a été établie en effectuant des mesures dans différents plans horizontaux situés à des hauteurs au-dessus du brûleur s'étageant de 1 à 37 mm avec des pas de mesure axial de 3 mm et radial de 0,125 mm..

Les mesures effectuées sont donc successivement :

- le flux diffusé Φ : il permet de déterminer le coefficient de diffusion angulaire local et directionnel $K_{VV,\Omega}(90)$ par la relation :

$$K_{VV,\Omega}(90) = \frac{\Phi}{\varphi_0 \cdot \Omega \cdot V}$$

- la transmission $\frac{\Phi^t}{\Phi^0}$: à partir de celle-ci, on déduit le coefficient d'extinction local K_{ext} par la méthode de la pelure d'oignon (figure C-4).

C-IV/ Etude des résultats expérimentaux

C-IV-1/ Résultats généraux

Pour quatre hauteurs au-dessus du brûleur comprises entre 4 et 31 mm, nous donnons un tracé des distributions radiales des coefficients de diffusion (figure C-3), d'extinction (figure C-4), des fractions volumiques (figure C-5), des diamètres (figure C-6) et des concentrations (figure C-7).

Pour chacun de ces paramètres, la distribution spatiale à travers une coupe verticale de la flamme est représentée figure C-8 (a à f) par différents niveaux de couleur. Ce type de représentation met bien en évidence la position spatiale des extrema de ces paramètres dans la flamme.

Sur ces figures et images, on peut observer que les fractions volumiques et les diamètres les plus importants se situent sur le côté de part et d'autre de l'axe vertical de la flamme.

Pour pouvoir déterminer l'évolution d'une particule de suie en fonction du temps, il faut connaître les lignes de courant à travers la flamme. Celles-ci sont calculées par Mitchell pour une configuration de flamme voisine (figure C-9).

L'évolution le long de la ligne de courant centrale (axe de la flamme) est représentée sur la figure C-10. Une première étape de nucléation et de croissance de surface dont, comme il est communément admis, les HPA sont les précurseurs, a lieu immédiatement au-dessus du brûleur avec formation de particules de diamètre inférieur à 15 nm. La coalescence s'étend ensuite sur une zone allant sensiblement de 7 mm à 22 mm au-dessus du brûleur, zone où elle fait baisser le nombre de particules. Le diamètre et la fraction volumique croissants prouvent la persistance de la croissance en surface. De 22 à 34 mm, la fraction volumique décroît, ce qui indique une oxydation. Le nombre de particules augmente simultanément. Cette multiplication des particules a déjà été observée par Garo [1984] ainsi que par Neoh [1980, 1981,].

Enfin, dans une dernière étape, les trois paramètres décroissent indiquant une recombustion pratiquement totale des particules de suie.

L'évolution observée ici au voisinage de l'axe de la flamme se produit de manière similaire sur les autres lignes de courant.

Notons par ailleurs que cette évolution relative des trois paramètres (F_v , D et N) se rapproche davantage des résultats de Kent et col. [1981] que de ceux de Garo [1984]. Ainsi, le premier maximum du nombre de particules a lieu très tôt et avant celui du diamètre et de la fraction volumique.

C-IV-2/ Paramètres cinétiques

La détermination des paramètres cinétiques du nuage de particules de suie au cours des différentes étapes nécessite la connaissance des vitesses d'écoulement dans la flamme.

Wersborg [1973] a considéré la vitesse constante et égale à 3 m.s^{-1} pour étudier une flamme de prémélange. Une approche plus fine adoptée par Ropper et col. [1977,] ainsi que par Flower [1989] consiste à supposer une accélération constante comprise entre 30 et 40 m.s^{-2} .

Nous avons adopté pour notre flamme une accélération de 35 m.s^{-2} ce qui nous a permis d'évaluer la vitesse d'écoulement en chaque point de l'axe de la flamme.

a/ Nucléation

Dans la région comprise entre 4 et 7 mm au-dessus du brûleur, la vitesse calculée est de $0,5 \text{ m.s}^{-1}$. En supposant la coagulation négligeable dans cette zone, on trouve un taux de nucléation de $2.10^{19} \text{ m}^{-3}.\text{s}^{-1}$. Cette valeur est voisine de celle retenue par Kennedy et col. [1990] pour leur modèle et de celle mesurée par Kent [1982, 1981] dans sa flamme de diffusion atmosphérique en sandwich.

b/ Coagulation

En supposant que la coagulation a lieu entre 10 et 16 mm au-dessus du brûleur comme le fait apparaître la figure C-10 et en considérant le modèle de Wersborg et col. décrit au § A-III-3, le coefficient de coagulation K_w obtenu pour cette flamme est de $1,4.10^{-8} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$ dans cette région où la vitesse est voisine de $1,7 \text{ m.s}^{-1}$. Cette valeur est comparable à celles données dans le tableau A-3.

c/ Recombustion des particules de suie

En évaluant la vitesse d'écoulement dans la région supérieure de la flamme (où la recombustion est prépondérante) à 3 m.s^{-1} et la durée du processus d'oxydation des particules de suie formées dans la flamme à de 5.10^{-3} s on détermine un taux d'oxydation de $3.10^3 \text{ g.cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$.

Ceci correspond pour un diamètre de 50 nm à un taux d'oxydation spécifique de $0,33 \cdot 10^3 \text{ g.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, taux assez voisin des valeurs maximales obtenues par Garo et col.[1986] : $1 \cdot 10^3 \text{ g.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

C-IV-3/ Conclusion

Les évolutions spatiales obtenues et les paramètres cinétiques déterminés ont permis de mettre en évidence une certaine similitude avec les résultats disponibles dans la littérature sur les flammes du même type.

Une étude similaire accompagnée de l'introduction de la turbulence et de mesures précises de la vitesse permettrait maintenant de s'attacher au cas de la flamme turbulente pour laquelle il existe un nombre beaucoup plus réduit de résultats publiés malgré l'intérêt qu'elle présente pour la modélisation de la combustion Diesel.

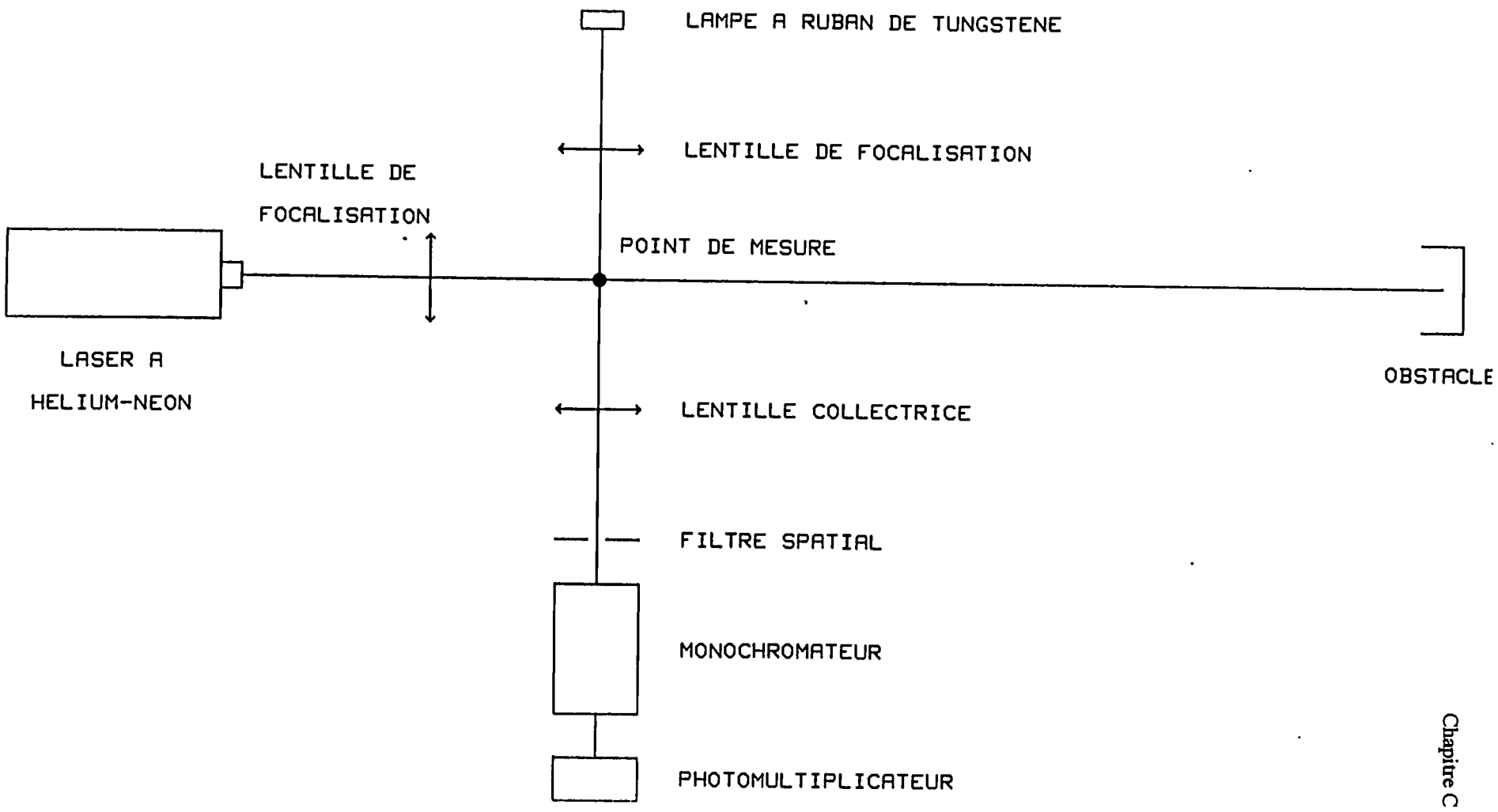


Figure C-2 Montage optique utilisé sur la flamme de diffusion

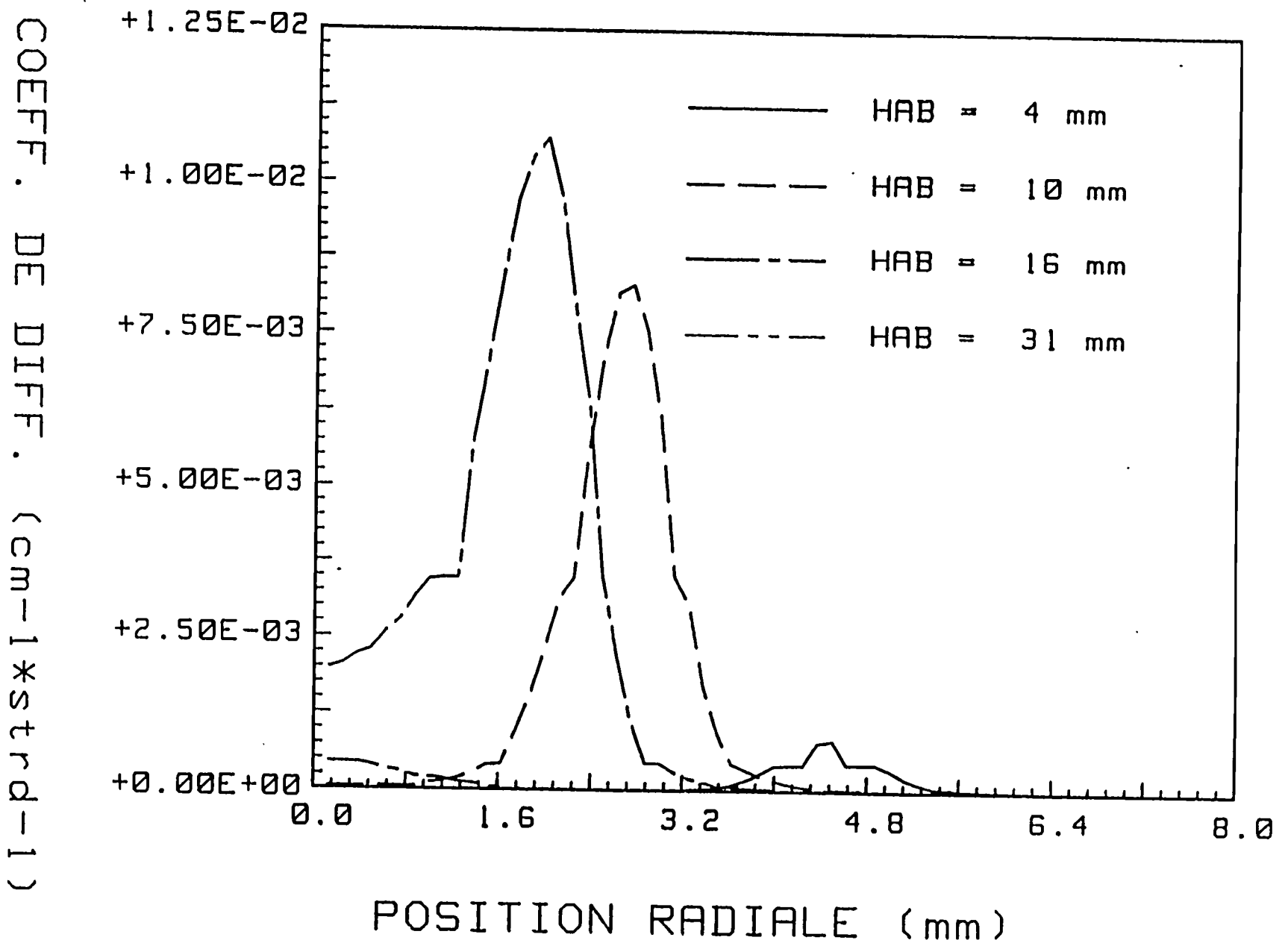


Figure C-3 Coefficient de diffusion mesuré à travers la flamme

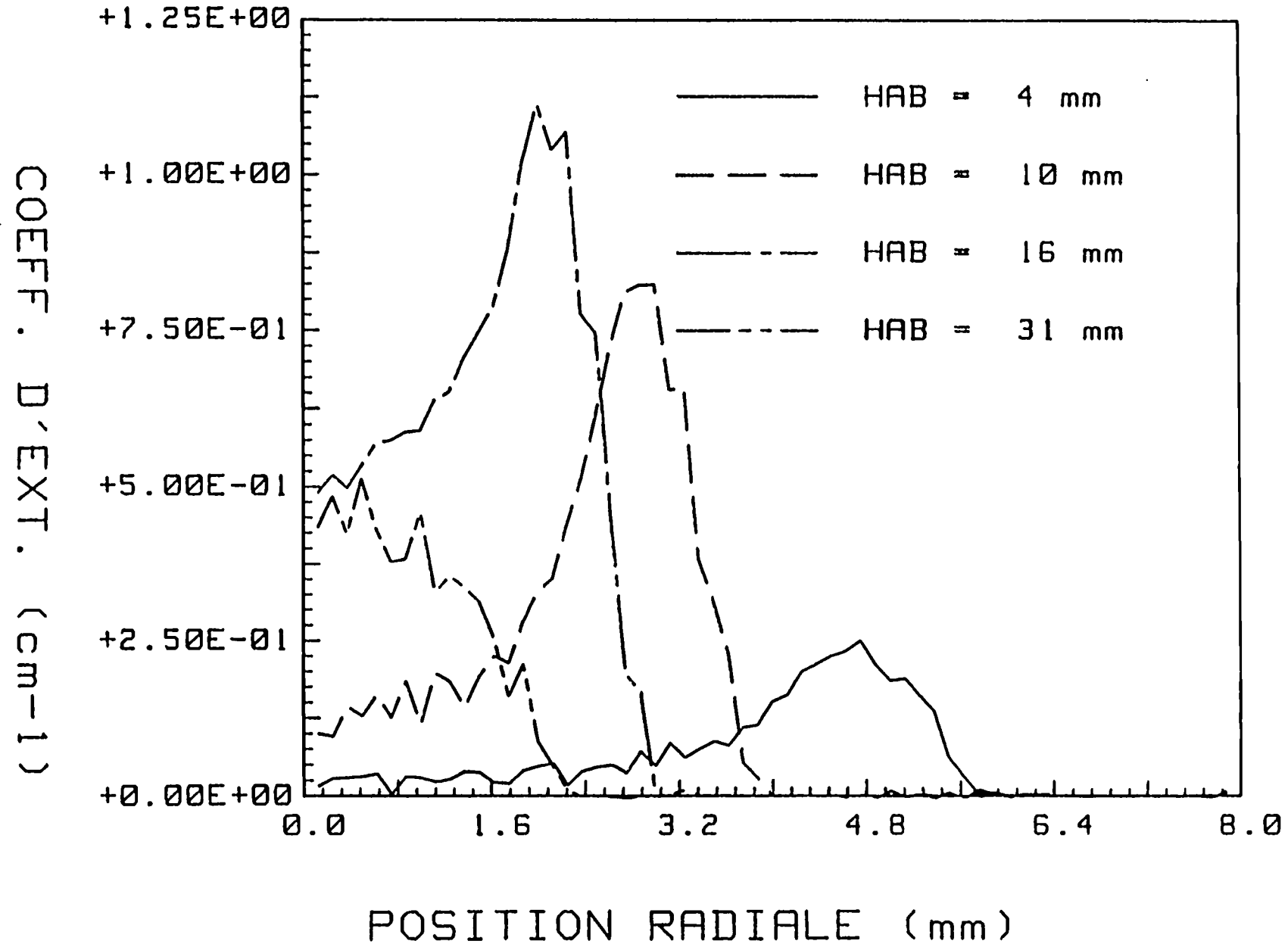


Figure C-4 Mesure du coefficient d'extinction à travers la flamme

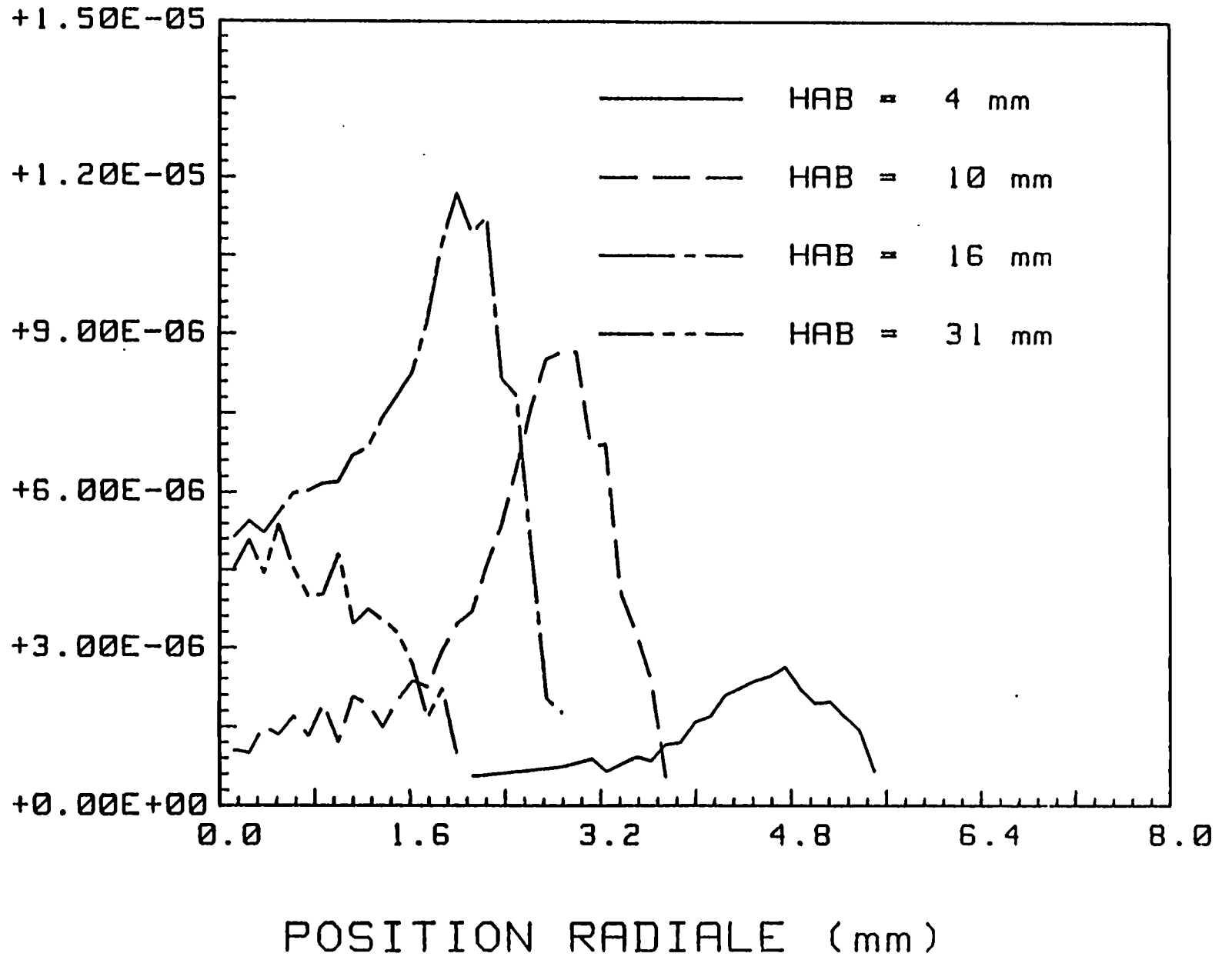


Figure C-5 Fraction volumique à travers la flamme

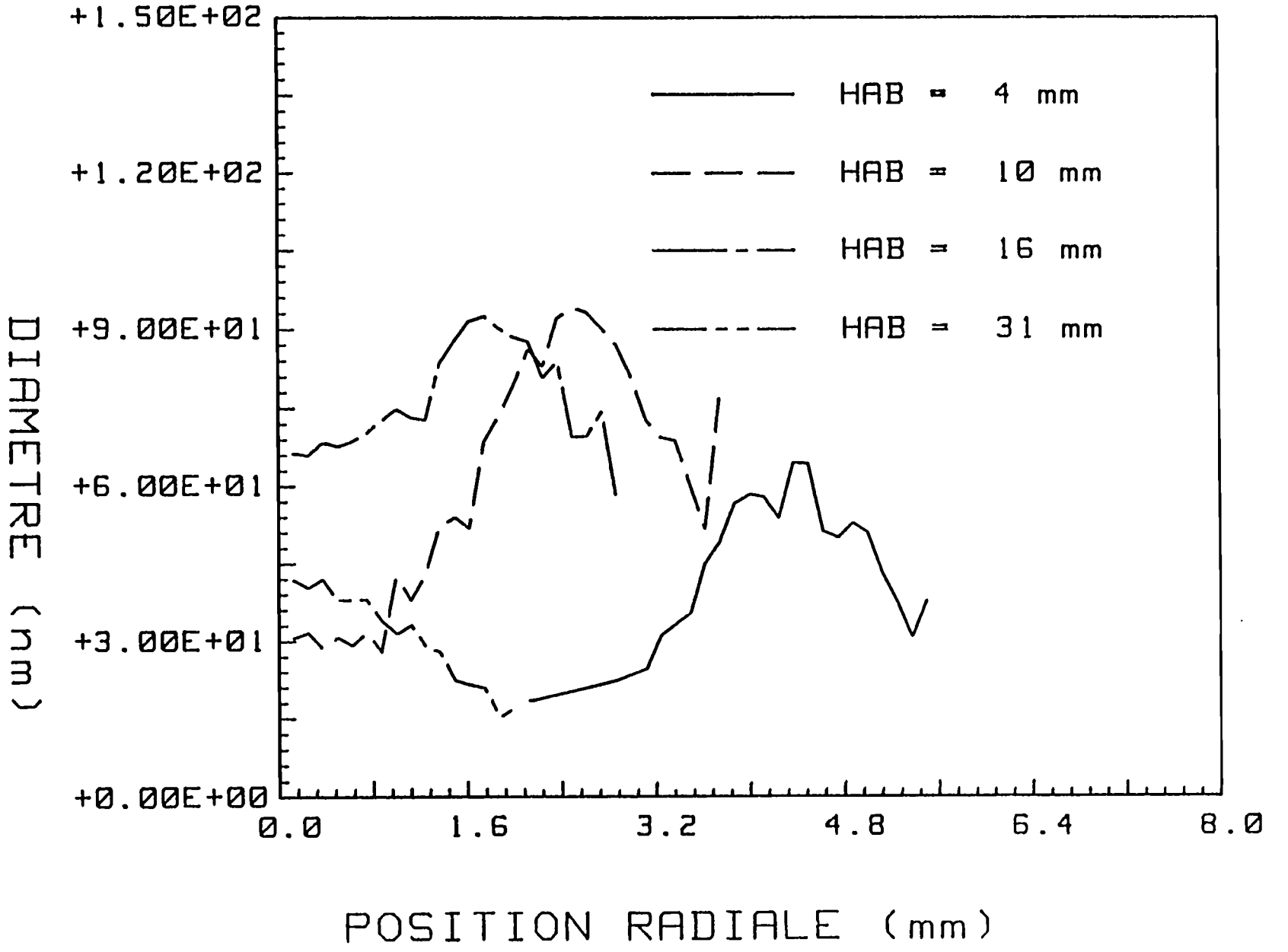


Figure C-6 Diamètre des particules de suie à travers la flamme de diffusion

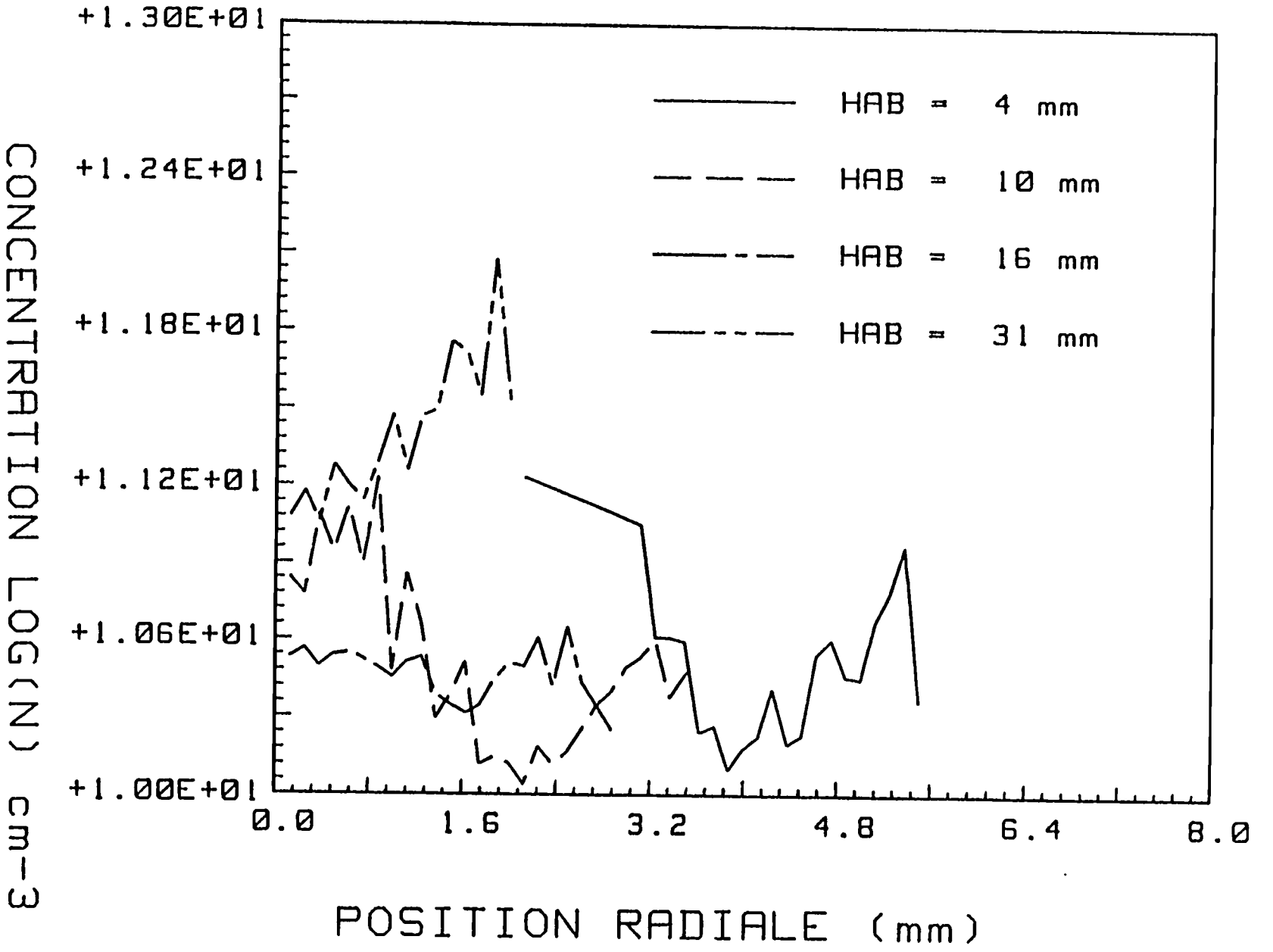


Figure C-7 Concentration en nombre à travers la flamme de diffusion

COEFF. DE DIFF. (cm⁻¹*strd⁻¹)

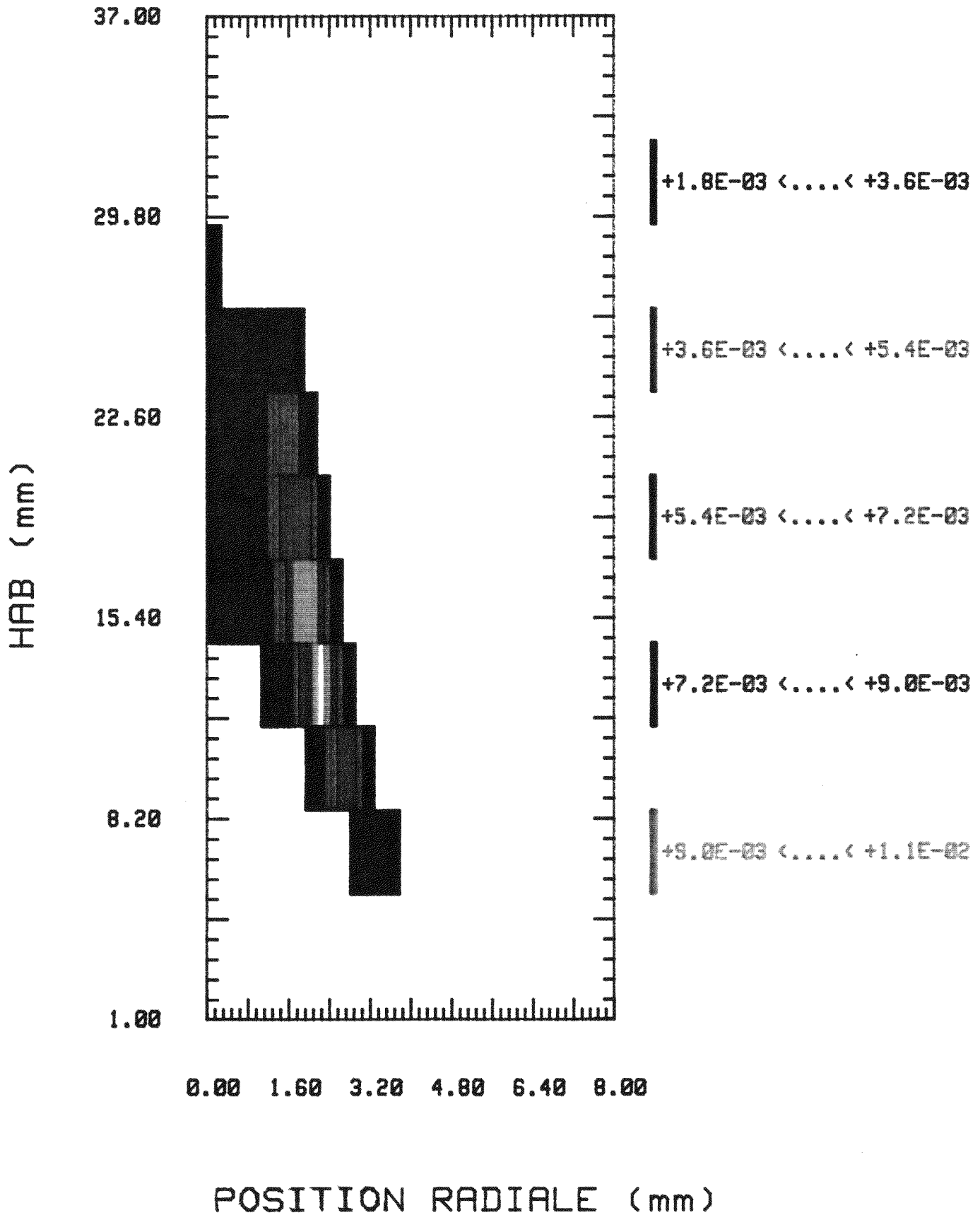


Figure C-8-a Représentation bidimensionnelle du coefficient de diffusion (cm⁻¹ . sr⁻¹)

COEFF. D'EXT. (cm⁻¹)

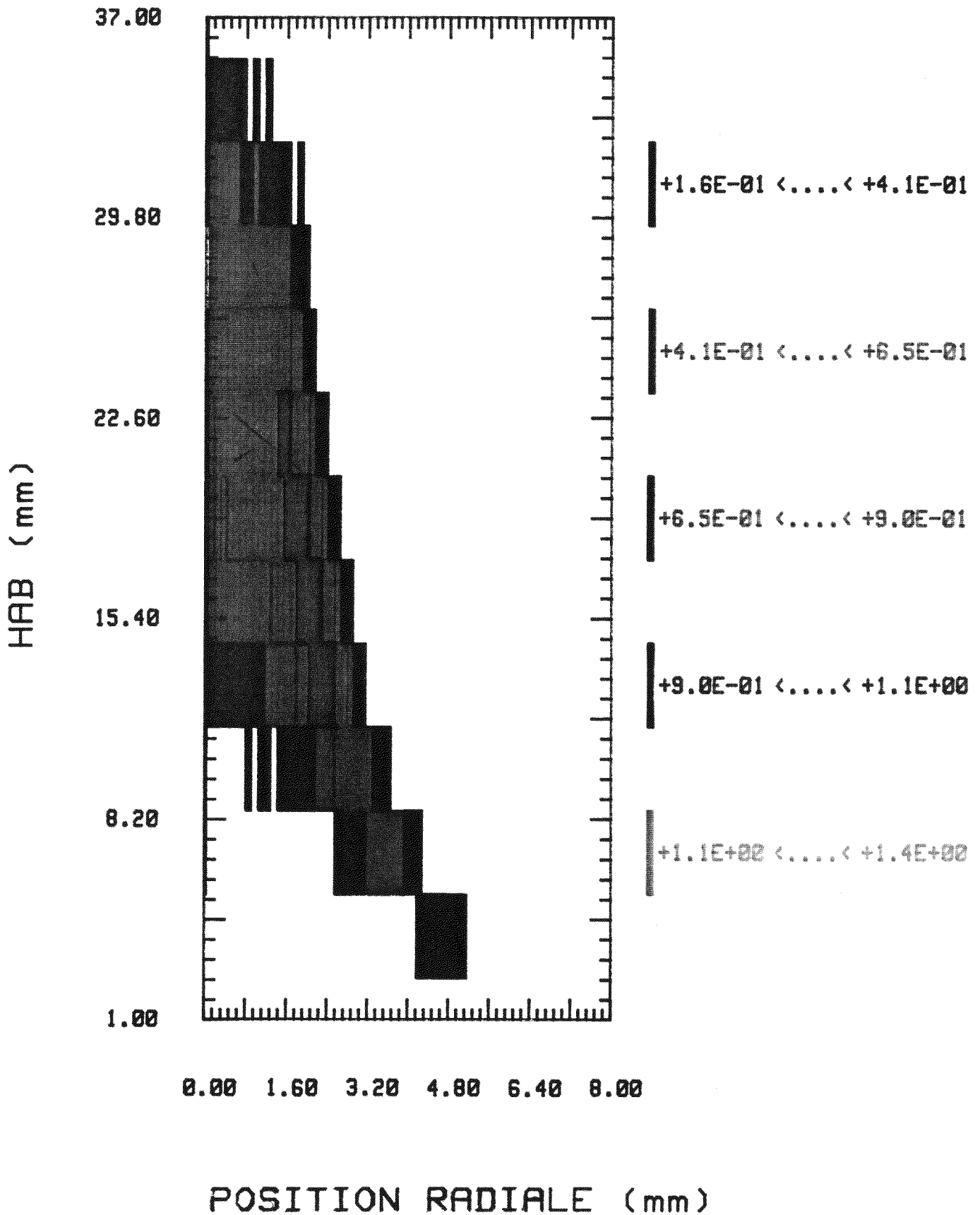


Figure C-8-b Représentation bidimensionnelle du coefficient d'extinction (cm⁻¹)

FRACT. VOL. cm³/cm³

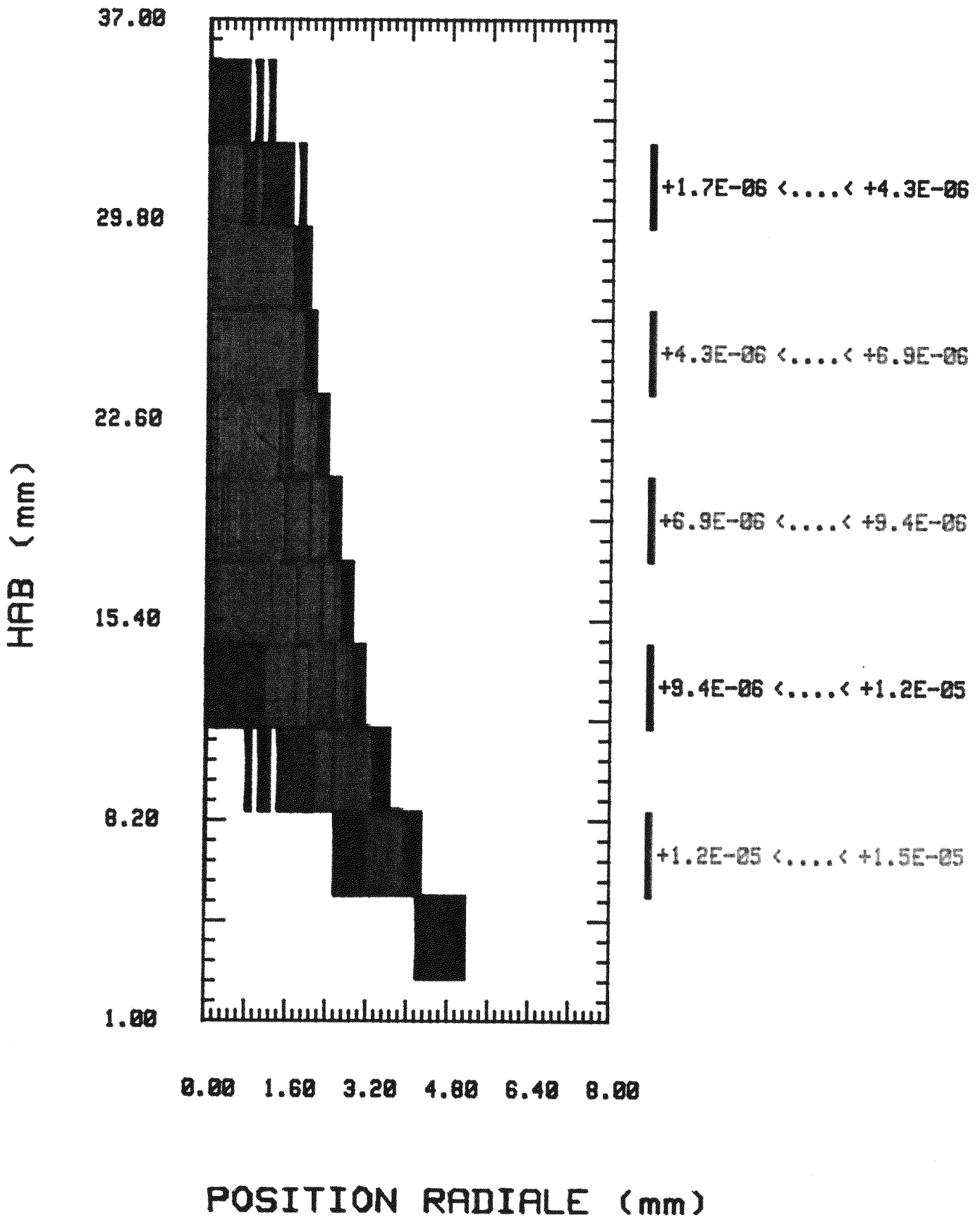


Figure C-8-c Représentation bidimensionnelle de la fraction volumique (cm⁻³ . cm⁻³)

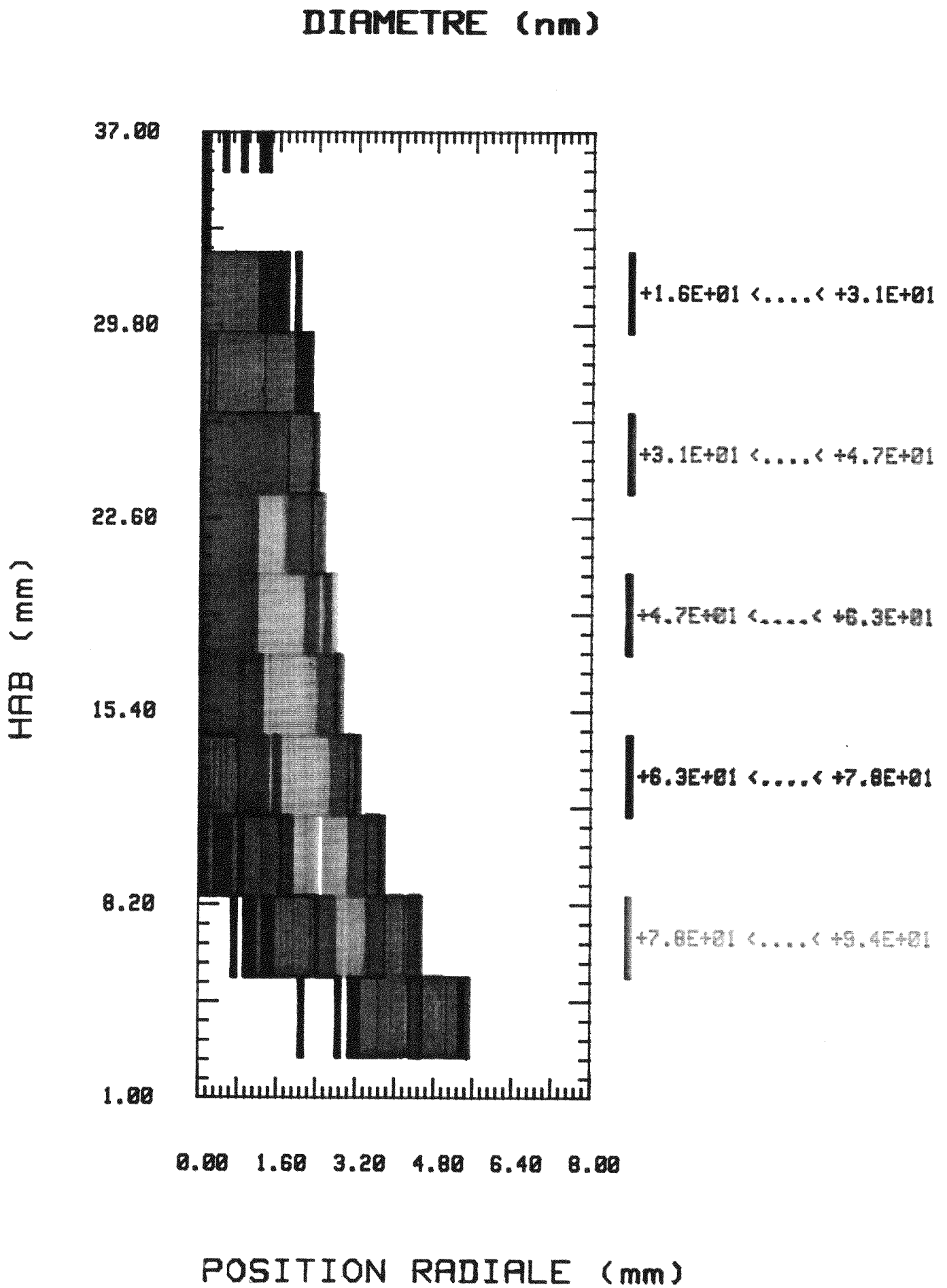


Figure C-8-d Représentation bidimensionnelle du diamètre

CONCENTRATION LOG(N) cm⁻³

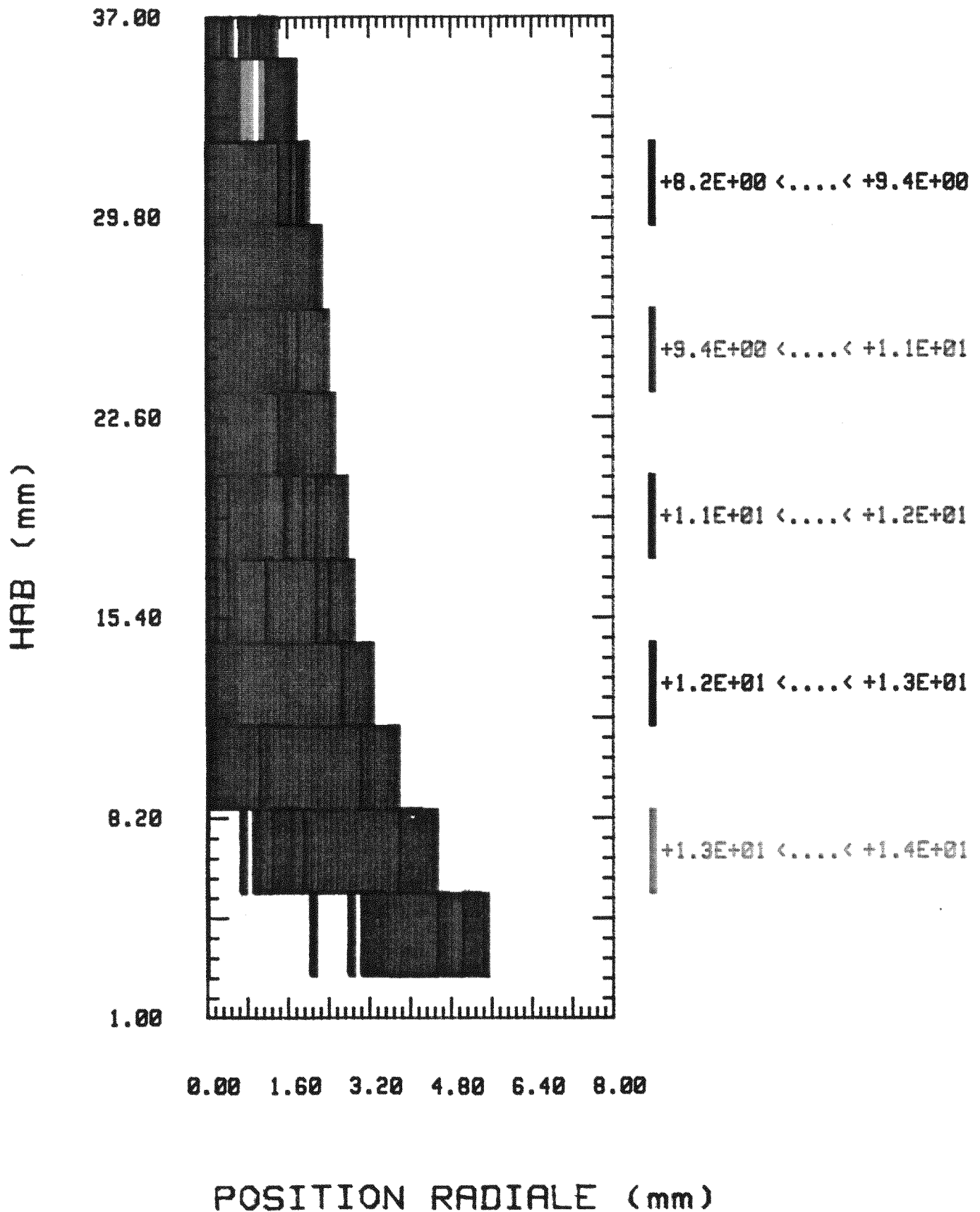


Figure C-8-e Représentation bidimensionnelle de la concentration en nombre (cm⁻³)

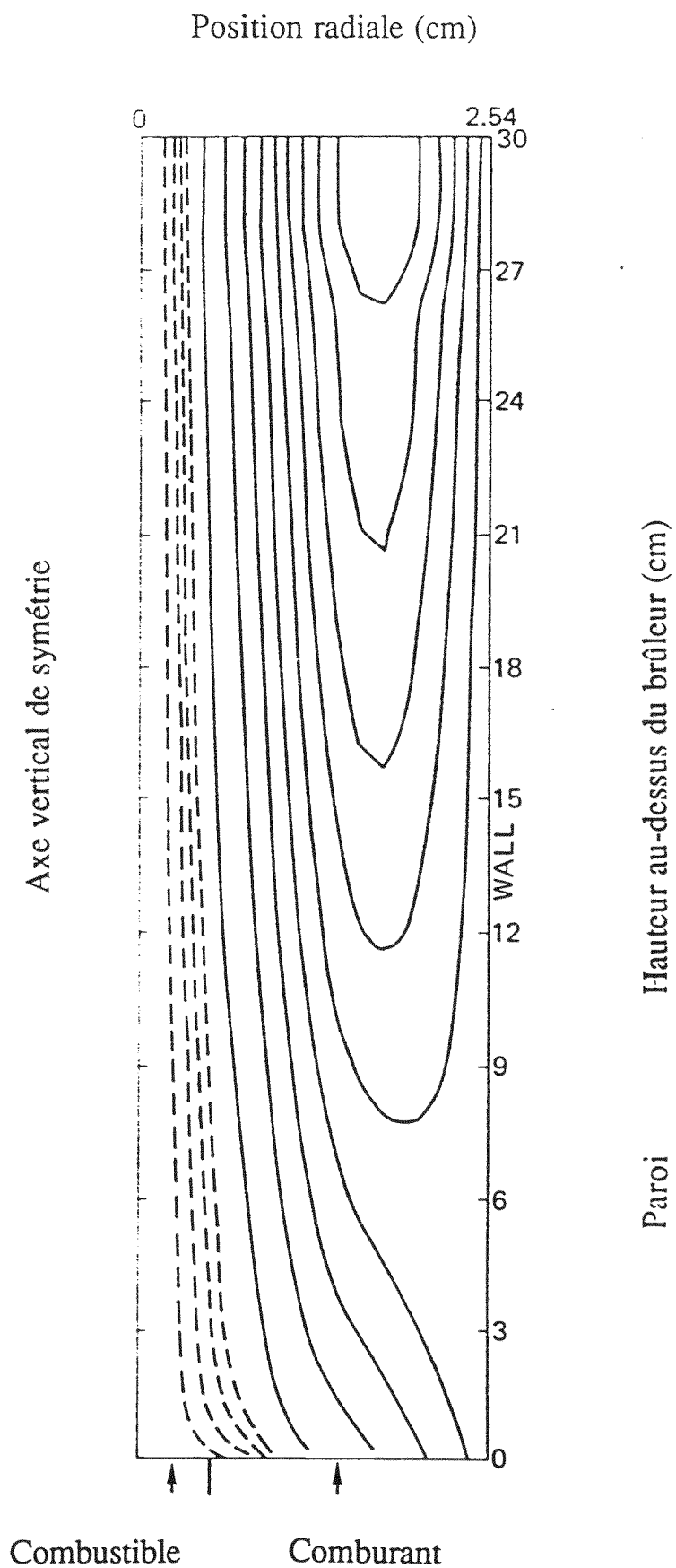


Figure C-9 Lignes de courant calculées par Mitchell et col. [1980]

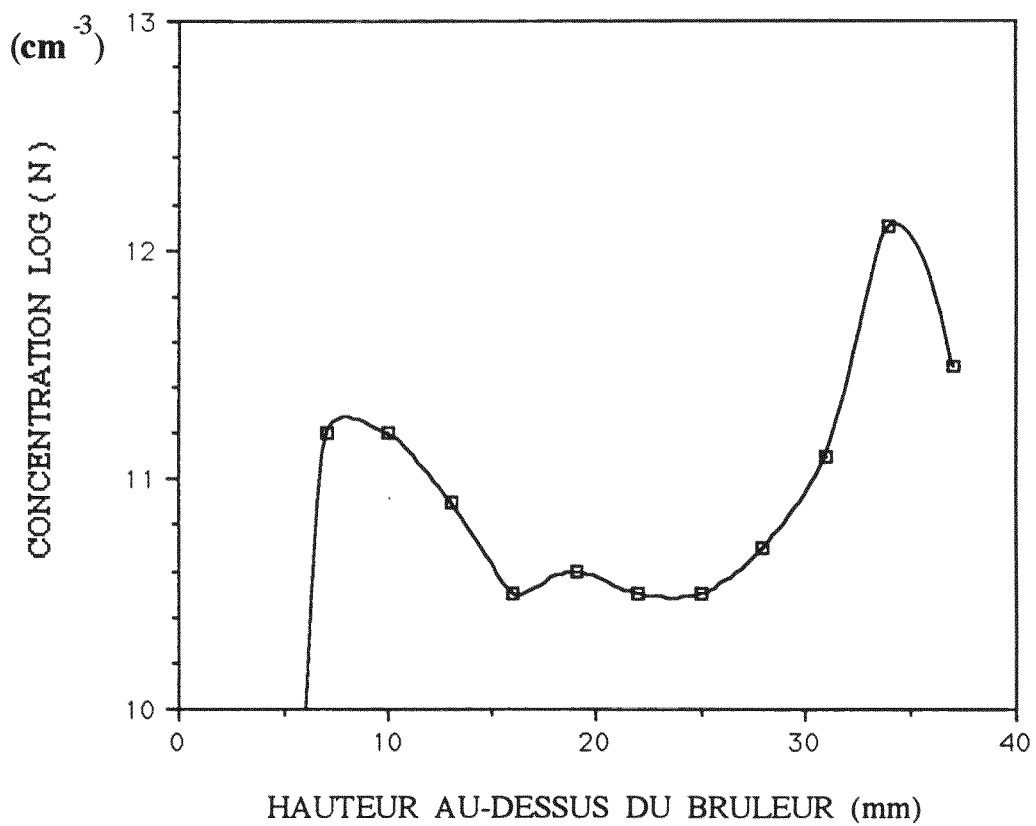
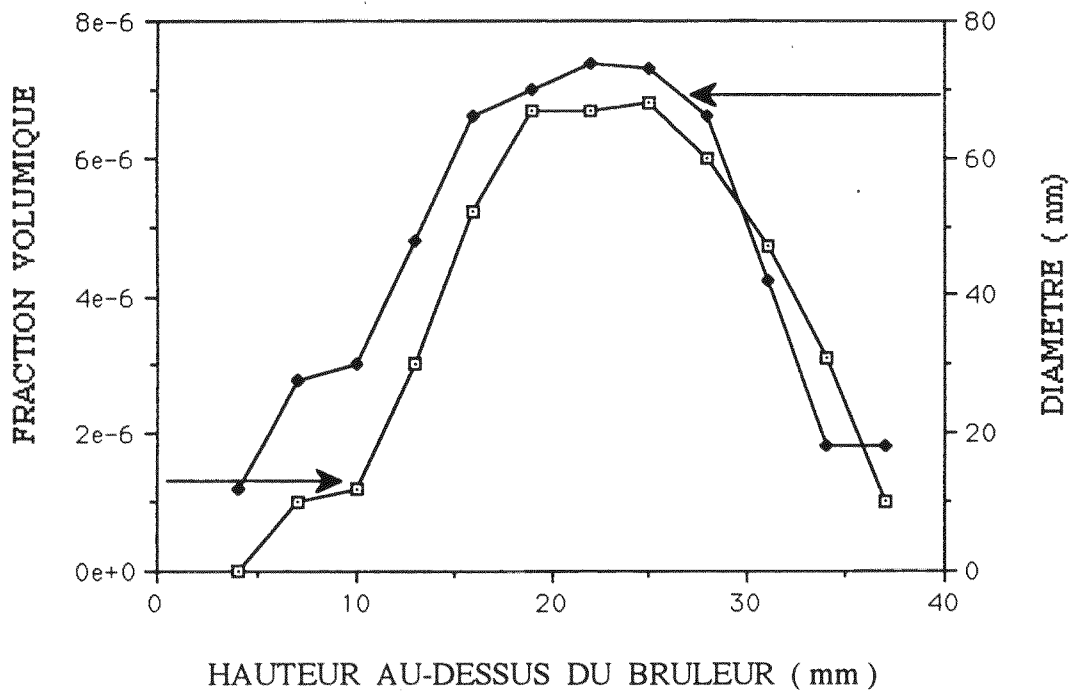


Figure C-10 Evolution du nuage de particules de suie en fonction de la hauteur au-dessus du brûleur

CHAPITRE D

MESURE INSTANTANEE DE LA
TAILLE ET DE LA CONCENTRATION
DES PARTICULES DE SUIE DANS LA
CHAMBRE DE COMBUSTION D'UN
MOTEUR DIESEL

La réduction de l'émission de particules de suie par les moteurs Diesel étant une des préoccupations des constructeurs automobiles, un très grand nombre d'études a porté sur leur quantification. Néanmoins, la plupart de ces travaux se sont intéressés à la suie présente à l'échappement, alors que le besoin de compréhension du processus de formation et de recombustion des particules requiert des mesures instantanées (pendant le cycle de combustion) et locales (dans la chambre de combustion). Ceci peut être réalisé soit par des prélèvements [Du et col., 1983, Whitehouse et col., 1980 et Aoyagi et col., 1980] soit par des mesures optiques, elles mêmes de deux types :

- méthodes basées uniquement sur les lois empiriques du rayonnement [Matsui et col., 1979 et Heinrich et col., 1982]
- méthodes basées sur les lois de la théorie de Mie auxquelles nous nous intéressons.

Des mesures de l'atténuation de la lumière par un nuage de particules ont été déjà réalisées et interprétées en utilisant la théorie de Mie et Kontani et col. [1986 (1) et 1986 (2)] ont présenté une étude théorique détaillée de la faisabilité et de l'efficacité de cette méthode en faisant ressortir toutefois sa faible sensibilité au diamètre. Cette même méthode est appliquée sur un moteur Diesel par Greeves et col. [1975 (1) et 1975 (2)] afin d'en déduire la concentration des particules de suie dans la chambre de combustion. Une étude similaire est également conduite par Haupais et col. [1987 (1) et 1987 (2)].

Les recherches bibliographiques que nous avons entreprises nous ont amenés à constater que la mesure de l'évolution spatiale et temporelle de la taille et de la concentration des particules de suie au sein même de la chambre de combustion d'un moteur Diesel par une méthode basée sur la théorie de Mie n'a pas été utilisée jusqu'à présent. Toutefois Xu et col. [1982] ont appliqué la méthode du rapport d'anisotropie à une cavité de mesure artificielle communiquant avec la chambre de combustion.

D-I/ Support expérimental

D-I-1/ Le moteur Diesel utilisé

Le moteur utilisé est un monocylindre Diesel de cylindrée = 707 cm³, à quatre temps et à injection directe (Lombardini LDA 100). Il a été équipé d'une culasse munie d'accès optiques par Monteiro [1987] avec pour objectif initial la visualisation de la combustion par cinématographie rapide.

Deux vues de la culasse sont données figures D-1-a et D-1-b. Cette culasse est réalisée en acier. L'injecteur est latéral, horizontal et à trou unique. Il crée dans la chambre un jet unique

horizontal. Un capteur de levée d'aiguille indique le début et la fin de l'injection. Un capteur de pression mesure la pression instantanée dans la chambre et permet de suivre l'évolution de la combustion.

Le rapport volumétrique obtenu avec la nouvelle chambre de combustion est de 8,8. Pour pallier cela, le moteur est suralimenté en air chaud sous pression. La température des parois de la culasse est maintenue constante par un circuit d'eau à température régulée à 80 °C. Ce circuit ainsi que tous les autres circuits hydrauliques de ce moteur Diesel sont schématisés sur la figure D-1-c.

La forme de la chambre de combustion (située dans la culasse) est parallélépipédique et a pour dimensions : 33 x 33 x 66 mm. Les accès optiques sont deux hublots rectangulaires opposés de surface utile : 33 x 66 mm. Ces dimensions des fenêtres nous permettent de mettre en oeuvre la mesure de la taille des particules de suie par la méthode du rapport d'anisotropie.

Quelques détails supplémentaires sur les caractéristiques du moteur Diesel utilisé sont donnés en annexe 5.

D-I-2/ Acquisition de données expérimentales

Une centrale d'acquisition permet d'enregistrer jusqu'à 12 signaux simultanés, avec une fréquence d'échantillonnage pouvant aller jusqu'à 200 kHz (nous avons travaillé le plus souvent à 50 kHz). Un micro-ordinateur gère de façon conviviale et efficace les différents paramètres définissant le mode d'acquisition ainsi que le stockage des valeurs mesurées. Compte tenu de la rapidité des phénomènes mis en jeu et la capacité nécessairement limitée du stockage de l'information, la succession des opérations d'injection de gazole dans la chambre, de début de l'acquisition de données et éventuellement de déclenchement de la caméra rapide, nécessite une gestion très précise réalisée par un séquenceur d'événements électronique.

Un schéma synoptique de tout cet ensemble est donné sur la figure D-2.

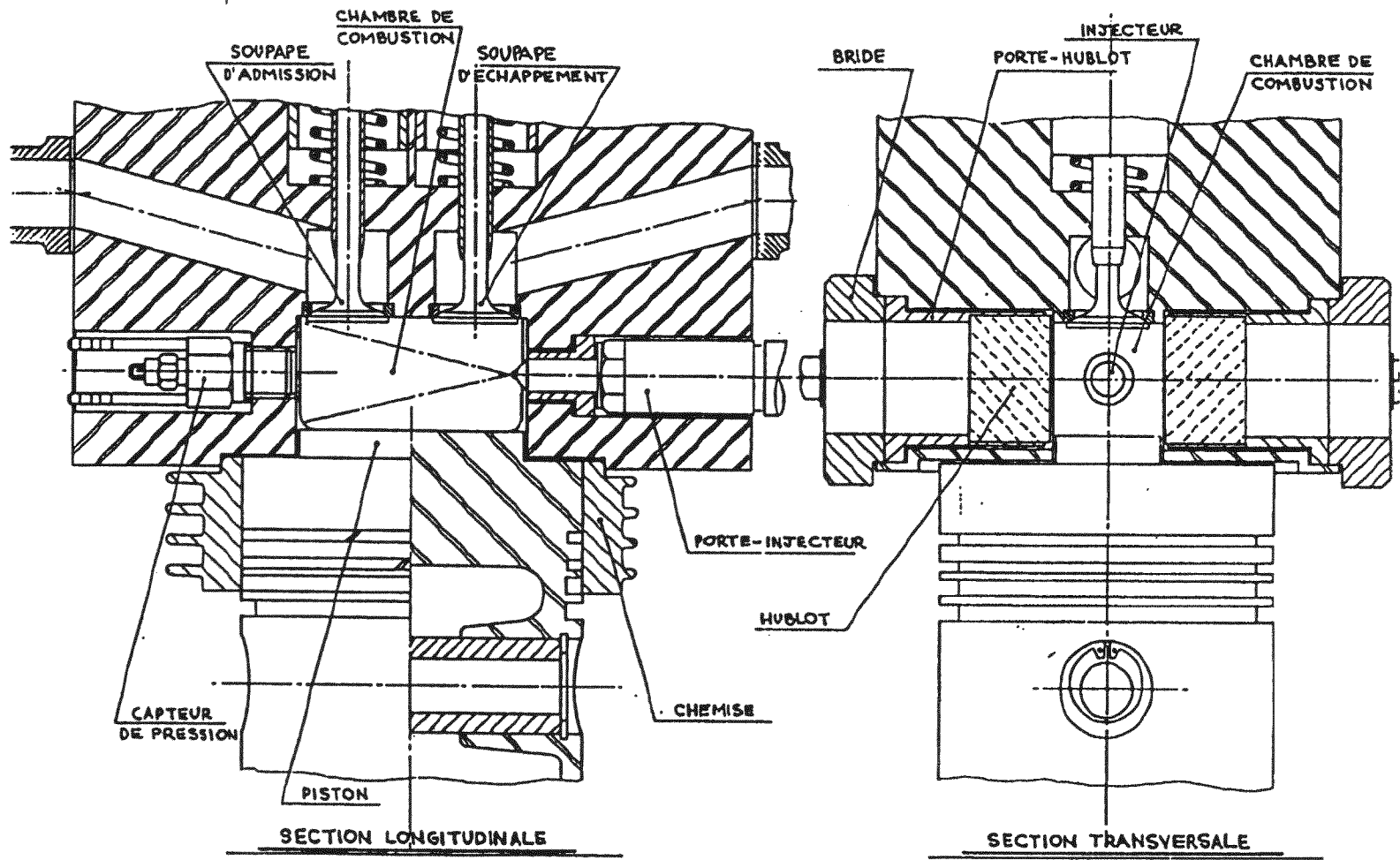


Figure D-1-a Dessin de la culasse du moteur transparent [Monteiro, 1987]

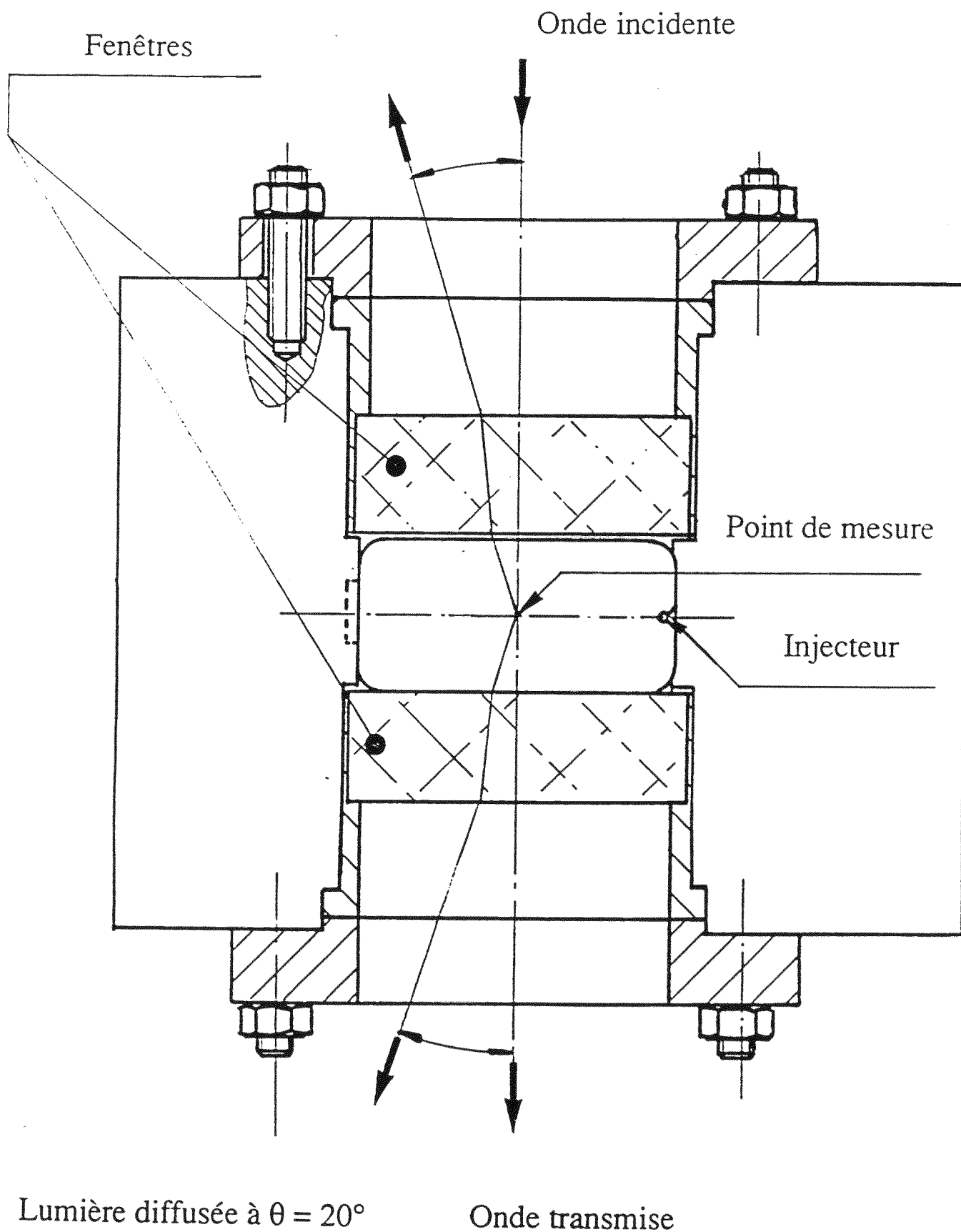


Figure D-1-b Vue des trajets optiques à travers la culasse [Monteiro, 1987]

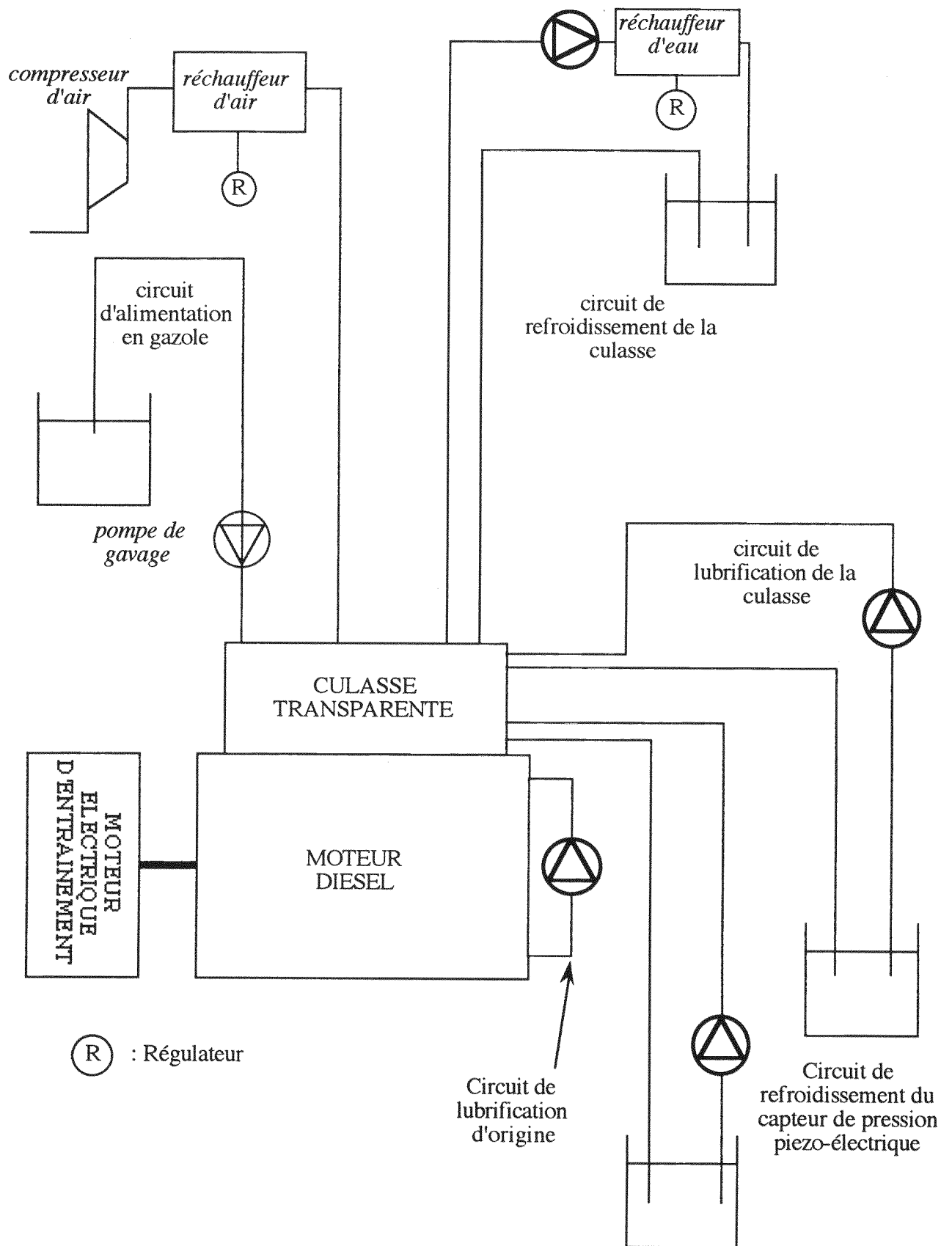


Figure D-1-c Circuit hydraulique du moteur Diesel expérimental

D-II/ Mesure locale du diamètre et de la concentration par les techniques de diffusion

D-II-1/ Choix de la méthode

Plusieurs méthodes nous permettent de caractériser le nuage de suie en se basant sur la théorie de Mie. La méthode de la diffusion-extinction présente comme nous l'avons vu l'avantage d'être sensible aux petits diamètres. Elle est toutefois difficilement applicable ici en raison du caractère instationnaire et non symétrique du phénomène. En particulier, la mesure locale du coefficient d'extinction serait très imprécise en raison de l'indétermination du trajet optique L et de l'absence de géométrie simple comme par exemple la symétrie axiale de révolution dans le cas de la flamme laminaire de diffusion.. Pour la même raison, nous ne pouvons pas utiliser la méthode basée sur la mesure de l'atténuation de la lumière à plusieurs longueurs d'onde décrite au § B-II-c qui, de plus, est peu sensible au diamètre. Par conséquent, nous utiliserons la méthode du rapport d'anisotropie. Le choix des angles de mesure (θ) sera limité par la taille et la disposition des accès optiques à la chambre de combustion.

Dans ce cas la lumière diffusée est atténuée par les particules de suie qui se trouvent sur sa trajectoire vers le capteur optique. De plus et à priori, même pour une mesure sur l'axe du jet, cette atténuation n'est pas la même pour chacune des directions étudiées compte tenu de la répartition aléatoire des particules dans la chambre au cours d'un cycle. Ce problème est résolu en effectuant des moyennes sur une cinquantaine de cycles

D-II-2/ Coexistence de deux types de particules diffusantes : les gouttelettes de combustible et les particules de suie

Par rapport aux mesures dans les flammes de combustible gazeux, on constate dans le cas du moteur Diesel, une différence importante dans l'interprétation des mesures de lumière diffusée. En effet, le combustible est introduit sous la forme d'un jet composé de fines gouttelettes injectées à haute pression dont la taille [Fluzin, 1990] est de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$. Lorsqu'elles pénètrent dans le volume de mesure, ces gouttelettes diffusent une quantité importante de lumière. Or, à travers l'indice de réfraction complexe, l'exploitation des données expérimentales par la théorie de Mie est sensible à la nature du diffusant. Il y a donc lieu de se donner un moyen optique expérimental permettant de savoir si la lumière diffusée provient des gouttelettes de combustible ou des particules de suie afin de ne considérer que les signaux provenant de ces dernières.

D'Alessio et col. [1983] ainsi que Beretta et col. [1981] ont déjà abordé ce problème mais dans des conditions plus favorables puisqu'ils travaillaient sur des flammes libres avec des accès optiques illimités. Ils ont montré par la théorie de Mie que la nature de l'élément diffusant, gouttelette ou suie, pouvait être déterminée à partir de la valeur du rapport des sections efficaces angulaires de diffusion dans une direction θ , appelé rapport de polarisation γ :

$$\gamma = \frac{C_{HH,\Omega}(\theta, \lambda, D, m)}{C_{VV,\Omega}(\theta, \lambda, D, m)}$$

L'angle d'observation le mieux adapté à cette distinction du fait qu'il produit le plus grand contraste entre gouttelettes et suie est $\theta = 90^\circ$. Dans cette direction, Beretta [1981] a mesuré expérimentalement :

- $\gamma = 0,1$ à $0,2$ pour la suie seule dans une flamme de diffusion de méthane ou de propane atmosphérique,

- $\gamma = 0,75$ pour les gouttelettes dans un jet liquide non enflammé.

En se basant sur ces valeurs purement expérimentales, il a déterminé en chaque point de mesure d'un jet liquide enflammé s'il y avait des particules de suie, des gouttelettes ou un mélange des deux dont il peut donner les proportions. Pour des raisons d'accessibilité optique au travers de notre culasse, l'angle $\theta = 90^\circ$ n'a pu être utilisé et nous avons employé l'angle $\theta = 160^\circ$ pour lequel les résultats de Beretta [1982] montrent qu'il est également possible d'effectuer la distinction des deux corps diffusants avec toutefois une moins bonne résolution.

Nous avons alors calculé à l'aide du logiciel Supermidi développé par Grehan [1988] l'évolution du paramètre γ en fonction du diamètre des particules de suie pour différentes valeurs de l'indice de réfraction. Pour cela, nous avons supposé que ces diamètres étaient distribués selon la loi logarithmique d'ordre zéro d'écart-type $\sigma = 0,3$, proposée par Bonczyk [1979]. On voit sur la figure D-3 que pour les différentes valeurs de l'indice de réfraction et du diamètre des particules, le paramètre γ varie entre $0,85$ et $0,90$ pour la suie.

En ce qui concerne les gouttelettes de combustible, les calculs publiés par D'Alessio [1983] en prenant un indice de réfraction $m = 1,5 + 0i$ montrent que les valeurs de ce coefficient γ varient sensiblement de $0,1$ pour des particules de $50 \mu\text{m}$ à 10 pour des particules de $0,5 \mu\text{m}$.

Ainsi l'application de cette méthode permet d'identifier à chaque instant les zones de la flamme pour lesquelles le volume de mesure n'est traversé que par des particules de suie et d'en calculer alors la taille et la concentration par la méthode du rapport d'anisotropie. Notons (comme les valeurs du tableau D-1 le montrent) que cette identification des particules de suie n'est pas absolue puisque les valeurs de γ se recouvrent pour les particules et les gouttelettes de $3 \mu\text{m}$ environ.

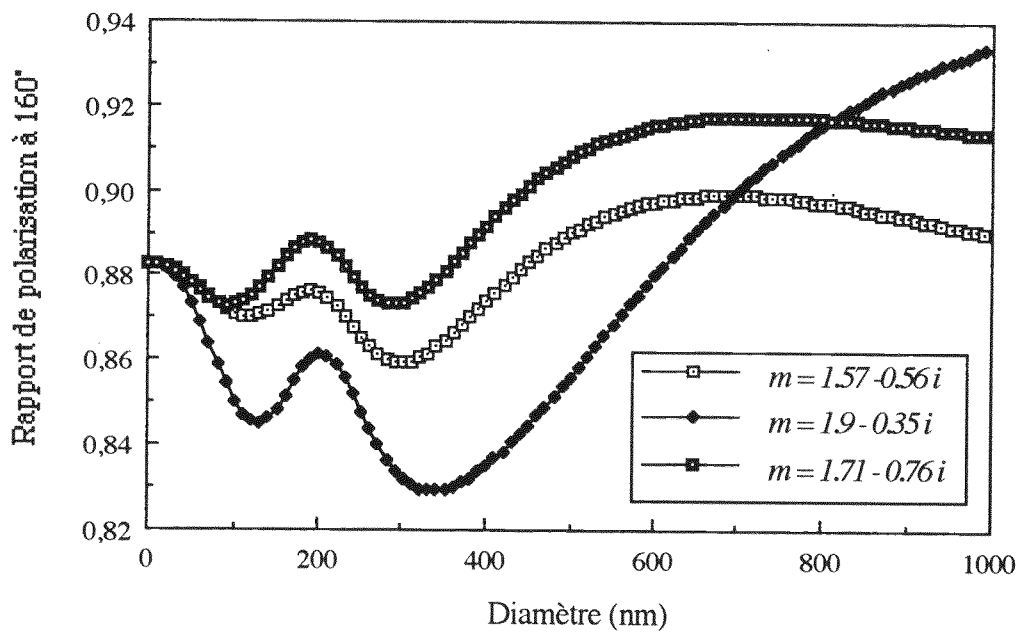


Figure D-3 Evolution du rapport de polarisation à 160° en fonction du diamètre des particules de suie

Gouttelettes			
D	50.10 ⁻⁶ m	3.10 ⁻⁶ m	0,5 10 ⁻⁶ m
γ	0,1	1	10
Particules de suie			
D	0,05 à 0,9 10 ⁻⁶ m		
γ	0,85 à 0,9		

Tableau D-1 Valeurs approchées du rapport de polarisation calculé pour les gouttelettes [d'Alessio, 1986] et les particules de suie

D-II-3/ Montage optique

Le montage adopté et représenté figure D-4 doit donc permettre une mesure simultanée des rapports d'anisotropie et de polarisation.

MONTAGE OPTIQUE

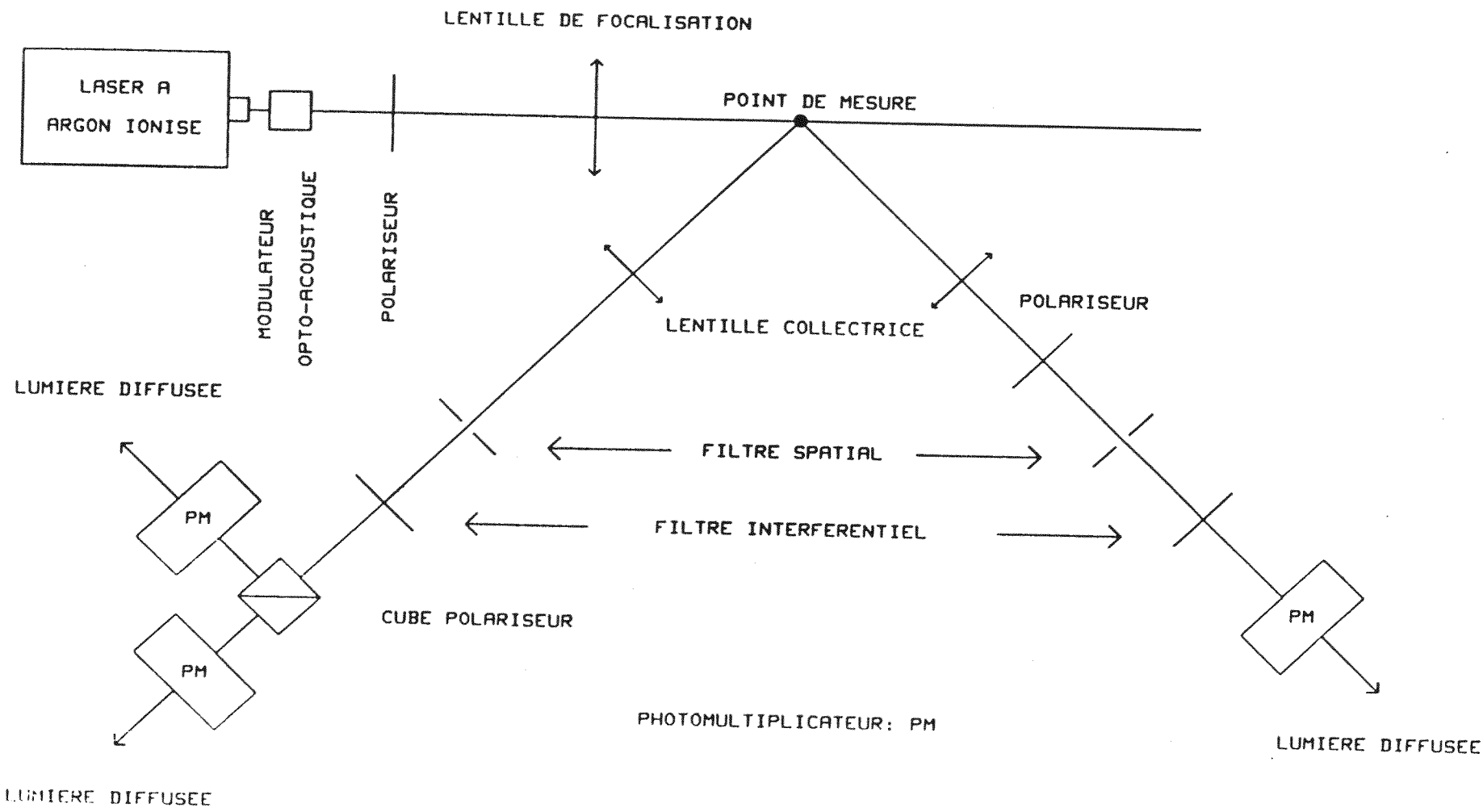
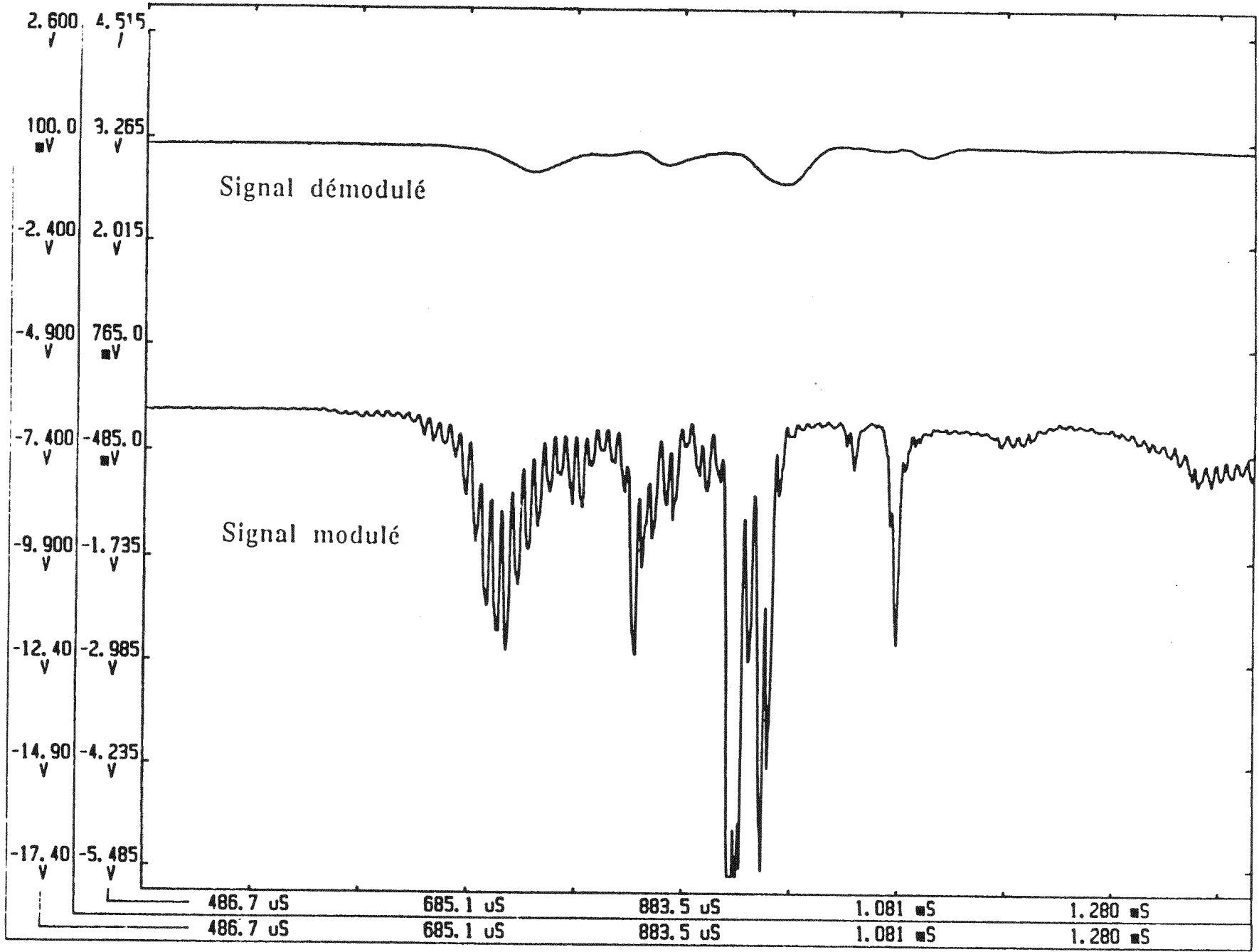


Figure D-4 Montage optique utilisé sur le moteur Diesel

Figure D-5 Illustration du fonctionnement de la détection synchrone



La source de lumière utilisée est un faisceau laser, à argon ionisé, focalisé au point de mesure par une lentille de focale $f = 444$ mm. Le flux incident est polarisé verticalement. Sa polarisation est modifiée avant le point de mesure par un polariseur d'angle $\chi = 45^\circ$.

Chacun des faisceaux de lumière diffusée dans les directions $\theta = 20^\circ$ et $\theta = 160^\circ$ est collecté par une lentille de focale $f = 300$ mm. Pour la direction $\theta = 20^\circ$, un polariseur sélectionne la polarisation verticale et l'image se forme sur un filtre spatial de diamètre 1 mm.

Un filtre interférentiel de largeur de bande 1 nm permet ici encore d'éliminer une grande partie du rayonnement thermique de suie et le flux diffusé, ainsi isolé, est mesuré par un photomultiplicateur. Pour la direction $\theta = 160^\circ$, le polariseur simple est remplacé par un cube séparateur de polarisation et deux photomultiplicateurs identiques permettent de mesurer séparément les flux de lumière diffusée pour chacune des polarisations horizontale et verticale.

Afin de s'affranchir du rayonnement résiduel de la flamme, nous avons utilisé le dispositif de modulation et de détection synchrone à 100 kHz (annexe 3) dont le fonctionnement est illustré sur la figure D-5. La partie continue du signal modulé provient de la flamme, alors que la partie périodique correspond à l'intensité diffusée que nous désirons mesurer.

Compte tenu de la focalisation du faisceau lumineux incident d'une part et des caractéristiques de la lentille collectrice et du filtre spatial d'autre part, le volume de mesure constitué par l'intersection des faisceaux incident et collecté est très réduit et avoisine $0,1 \text{ mm}^3$.

D-II-4/ Résultats des essais

a/ Conditions expérimentales

Au cours d'une première série d'essais, nous avons choisi de positionner le volume de mesure au centre de la chambre de combustion. Pour valider la méthode qui permet de distinguer les particules de suie des gouttelettes, nous avons alors fait varier la profondeur de pénétration du jet avec et sans combustion en agissant sur la pression et la température de l'air à l'admission conformément au tableau D-2.

Pendant ces essais, la vitesse de rotation du moteur de 1000 tr/min est maintenue constante, l'avance à l'injection est de 15° vilebrequin et la quantité de gazole injectée de 12 mm^3 par coup.

Chaque essai a été effectué trois fois afin de s'affranchir des éventuelles irrégularités cycliques :

la mesure que nous effectuons est ponctuelle (volume de mesure $0,1 \text{ mm}^3$) et instantanée (temps de réponse $< 0,1$ ms). De ce fait, les intensités lumineuses mesurées seront très sensibles aux fluctuations turbulentes liées à la combustion Diesel. En raison de cette même

turbulence, le jet de gazole injecté n'a jamais la même forme et l'auto-inflammation ne commence pas au même endroit. Des différences significatives entre les signaux relevés pour les trois combustions réalisées successivement dans les mêmes conditions moteur sont alors observées.

mesure n° :	pression de suralimentation (mm Hg)	température de l'air admis (°C)
1	0	30
2	1300	30
3	1300	40
4	1300	80
5	1300	145
6	1300	175
7	500	165
8	0	160

Tableau D-2 Conditions expérimentales des essais sur le moteur Diesel

Compte tenu du faible volume de mesure, les résultats peuvent être considérés comme purement locaux et représentatifs uniquement de la combustion en un seul point : le centre de la chambre. Suivant la pénétration du jet, ce volume visé contient des particules de suie, des gouttelettes, de la vapeur ou un mélange en évolution.

Pour chaque cycle, au cours de la mesure, les signaux évoluent en raison :

- des mouvements d'air qui, bien que réduits en raison de la conception de la culasse, peuvent encore dévier temporairement le jet et provoquer une intermittence du signal mesuré,
- des évolutions de la température et de la pression dans la chambre liées à la turbulence et au déplacement du piston,
- de l'inflammation éventuelle des gaz et de leur cinétique de combustion.

Afin de relier les signaux observés à ces phénomènes, nous avons représenté sur les mêmes figures la pression instantanée dans la chambre qui permet de repérer les différentes étapes du cycle. L'injection débute par ailleurs vers -14° vilebrequin comme cela a pu être vérifié, pour chaque cycle, sur la courbe de levée d'aiguille.

b/ Etalonnage des photomultiplicateurs

La précision de la mesure de γ repose sur celle des composantes horizontale et verticale de la lumière diffusée. Un essai préliminaire a donc été effectué en vue d'une vérification de l'étalonnage du banc. Celui-ci a été réalisé à partir du rayonnement de la flamme seule (le faisceau laser étant éteint). Ce rayonnement étant isotrope et non polarisé, les composantes verticale et horizontale de l'intensité émise sont identiques et les intensités diffusées négligeables. Le rapport de polarisation mesuré pour ce rayonnement de la flamme doit alors être de 1 si les deux voies de mesure sont bien étalonnées.

Les résultats présentés figure D-6 montrent une valeur du rapport de polarisation constamment voisine de 1 pendant la durée de la combustion, témoignant du fait que les deux voies de mesure possèdent bien des sensibilités identiques.

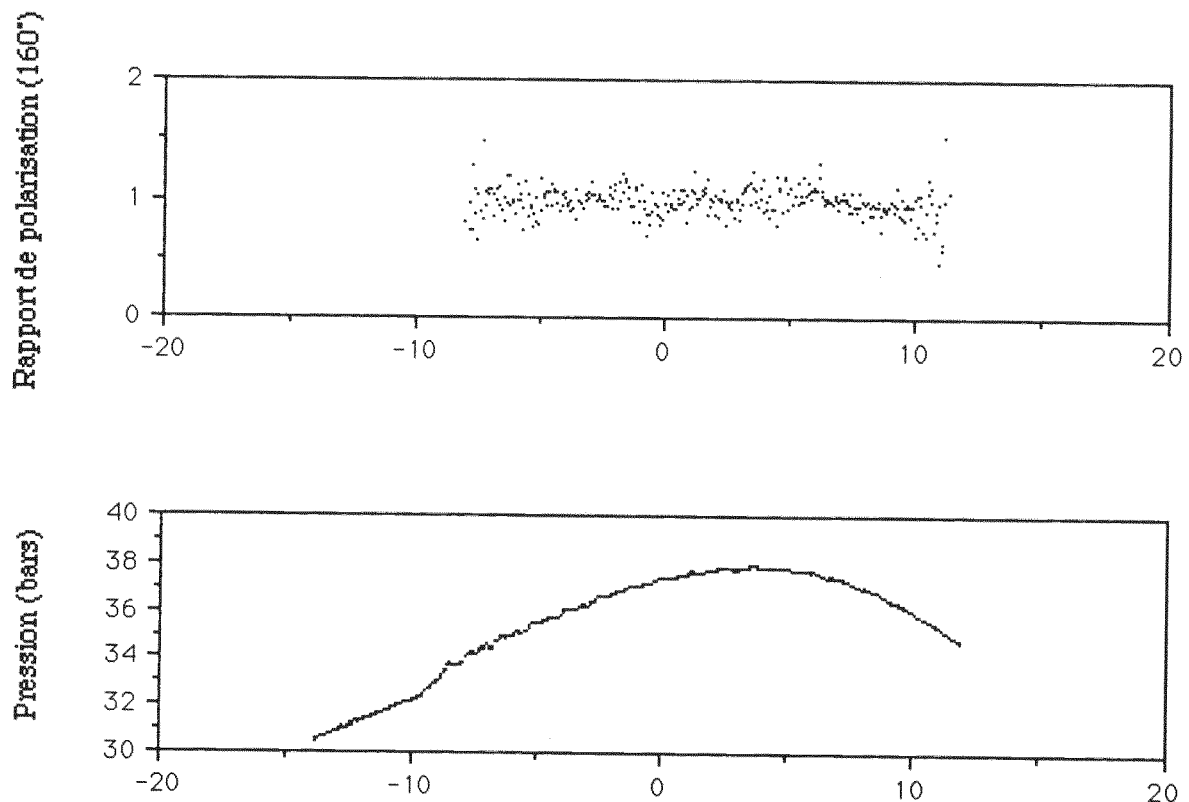


Figure D-6 Rayonnement du jet enflammé de gazole

c/ Distinction suie-gouttelettes

Essai n°1 : figure D-7 a

L'air admis est à la pression atmosphérique et à la température ambiante (30°C). Le processus d'auto-inflammation est alors trop lent pour permettre l'inflammation dans le cylindre. La combustion n'a pas lieu. Les diffusants atteignent la zone de mesure 2° vilebrequin après le début de l'injection. Les profils des rapports de polarisation mesurés présentent des valeurs moyennes légèrement supérieures à 1. Compte tenu des valeurs du tableau D-1, il semblerait que nous soyons en présence de gouttelettes de combustible d'un diamètre de quelques microns.

Essai n°2 : figure D-7 b

La pression de suralimentation est de 1300 mm Hg et la température de l'air admis est de 30°C. On n'observe pas de flamme lumineuse et la courbe de pression ne présente aucun changement de pente qui indiquerait un dégagement de chaleur et une inflammation. La vitesse de pénétration du jet diminue du fait de l'augmentation de pression dans la chambre et les diffusants n'atteignent le point d'observation que 4° vilebrequin après le début de l'injection. Les valeurs mesurées du rapport de polarisation sont élevées (jusqu'à 6) et très fluctuantes avec le temps. Ces remarques vont, d'après le tableau D-1, dans le sens d'une diffusion par des gouttelettes de plus petite taille. Cette évolution peut être interprétée par le fait que l'augmentation de pression favorise l'évaporation des gouttelettes [Fluzin, 1990].

Essais n°3 et 4 : figures D-7 c et d

La pression de suralimentation est inchangée et les températures passent à 40 et 80°C. L'augmentation de la température dans la chambre favorise de plus en plus l'évaporation du combustible liquide. La combustion a lieu dans chaque cas, comme en témoigne la présence d'une flamme lumineuse et le changement de pente sur la courbe de pression. Les valeurs des rapports de polarisation sont toujours élevées et fluctuantes. Il semblerait qu'il y ait prédominance des gouttelettes de petit diamètre dans le volume de mesure sans que le procédé puisse permettre d'exclure la possibilité d'une présence de suie mélangée aux gouttelettes.

Essais n°5 et 6 : figures D-7 e et f

La température de l'air à l'admission passe à 145 et 175°C. Ces conditions se rapprochent du mode de fonctionnement normal de ce moteur Diesel.

Les valeurs mesurées des rapports de polarisation sont comprises entre 0,7 et 0,9. Elles sont relativement constantes pendant les instants où le jet se trouve au point de mesure et

identiques d'un essai à l'autre. Compte tenu des conditions de fonctionnement du moteur et des valeurs données au tableau D-1, il semble que le volume de mesure ne soit traversé que par des particules de suie.

Des observations par cinématographie rapide ont été réalisées par Monteiro [1987] dans les mêmes conditions de fonctionnement du moteur. Elles confirment le fait que les gouttelettes n'arrivent alors pas au point de mesure. Les calculs de Fluzin [1990] dans ces mêmes conditions conduisent à une pénétration inférieure à la moitié de la longueur de la chambre et confirment aussi la conclusion précédente.

L'hydrocarbure initial est donc déjà partiellement sous forme de suie lorsqu'il atteint le milieu de la chambre de combustion. On doit remarquer en outre que cette suie est apparue avant le changement de pente de la courbe de pression, changement indiquant un important dégagement de chaleur et considéré généralement comme le début de la combustion. Des observations allant dans ce sens ont déjà été faites par Aoyagi et col. [1980] et Kontani et col. [1983] comme nous l'avons indiqué au § A-VI-3.

Notons l'intermittence des signaux mesurés. Celle-ci provient de la taille du volume de mesure qui est très petit devant les échelles de turbulence et les dimensions de la flamme.

Essais n°7 et 8 : figures D-7 g et h

Les pressions de suralimentation sont de 500 et 0 mm Hg pour des températures respectives de 165 et 160 °C. Les valeurs mesurées des rapports de polarisation sont voisines de 1. La combustion a lieu pour l'essai n°7 uniquement mais avec un long délai d'auto-inflammation. Le volume de mesure semble donc contenir essentiellement des gouttelettes sans toutefois ici encore exclure la présence simultanée de suie. Celle-ci n'existerait qu'en petite quantité en raison du très long délai qui a entraîné un bon prémélange, lors de l'essai n°7, et de la non-inflammation, lors de l'essai n°8.

Nous avons ainsi mis en évidence l'évolution du rapport de polarisation γ de la lumière diffusée à 160° lorsque les modifications des conditions de fonctionnement du moteur conduisent à la présence dans le volume de mesure de diffusants allant des gouttelettes jusqu'aux particules de suie seules.

Pour les jets de combustible liquide non-enflammé de d'Alessio et col. [1983], la valeur $\gamma(\theta = 160^\circ)$ était de 0,1 ce qui montre que le diamètre des gouttelettes était grand par rapport à celui de nos mesures pour lesquelles ce rapport $\gamma(\theta = 160^\circ)$ a dans tous les cas été plus grand que 0,7. Cet écart peut provenir soit du type d'injection, soit de l'influence des paramètres physiques extérieurs (pression et température).

Néanmoins, pour les essais n°5 et 6 qui correspondent à une présence quasiment certaine de suie (confirmée par la cinématographie rapide), la valeur du rapport γ est bien celle prévue par les calculs théoriques que nous avons faits.

d/ Evolution instantanée des particules de suie au cours d'un cycle

Ayant identifié la présence de suie au point de mesure (centre géométrique de la chambre de combustion) dans le cas de l'essai n°6, nous pouvons réaliser la mesure du diamètre et de la concentration de ces particules par la méthode du rapport d'anisotropie.

Toute la lumière diffusée provient donc des particules de suie. Elle est très fluctuante : le volume de mesure étant petit par rapport aux structures turbulentes de la combustion, le nuage de suie se trouve ou non dans le volume de mesure, de façon aléatoire, ce qui entraîne les fluctuations observées. Notons d'abord que les résultats que nous obtenons ne peuvent alors pas être comparés de manière simple à ceux d'autres auteurs [Beretta et col., 1981 et 1982, D'Alessio et col, 1983,] en raison du caractère très local de notre mesure.

Sur la figure D-8, nous avons représenté la pression dans le cylindre, la durée de l'injection et les signaux de lumière diffusée.

Les diamètres obtenus (figure D-8-e) ont une valeur moyenne de 200 nm, ce qui est en bon accord avec les observations effectuées par Nishida et col.[1984] pour une flamme de combustible liquide instationnaire si l'on tient compte du fait que MacFarlane et col. [1964] ainsi que Lahaye et col. [1986] ont remarqué une augmentation du diamètre avec la pression.

On observe sur la même série de figures D-8 l'évolution fluctuante de la concentration et de la fraction volumique de suie avec le degré vilebrequin.

Les fractions volumiques obtenues ont des maxima de 4.10^{-5} soit $2,4 \text{ g.m}^{-3}$ aux conditions TPN. Par des prélèvements instantanés, Matsuoka [1977] a trouvé une valeur maximale de 15 g.m^{-3} TPN pour une combustion en milieu beaucoup plus riche.

D-II-5/ Conclusion

Nous avons mis au point un procédé permettant d'avoir une idée du contenu du volume de mesure (gouttelettes de gazole ou particules de suie) et, dans le cas où il s'agit de particules de suie, nous avons déterminé l'évolution instantanée des paramètres caractérisant ce nuage. En plus de la taille et de la concentration de ces particules nous avons mis en évidence la rapidité de leur formation et les fluctuations rapides de leur caractéristiques.

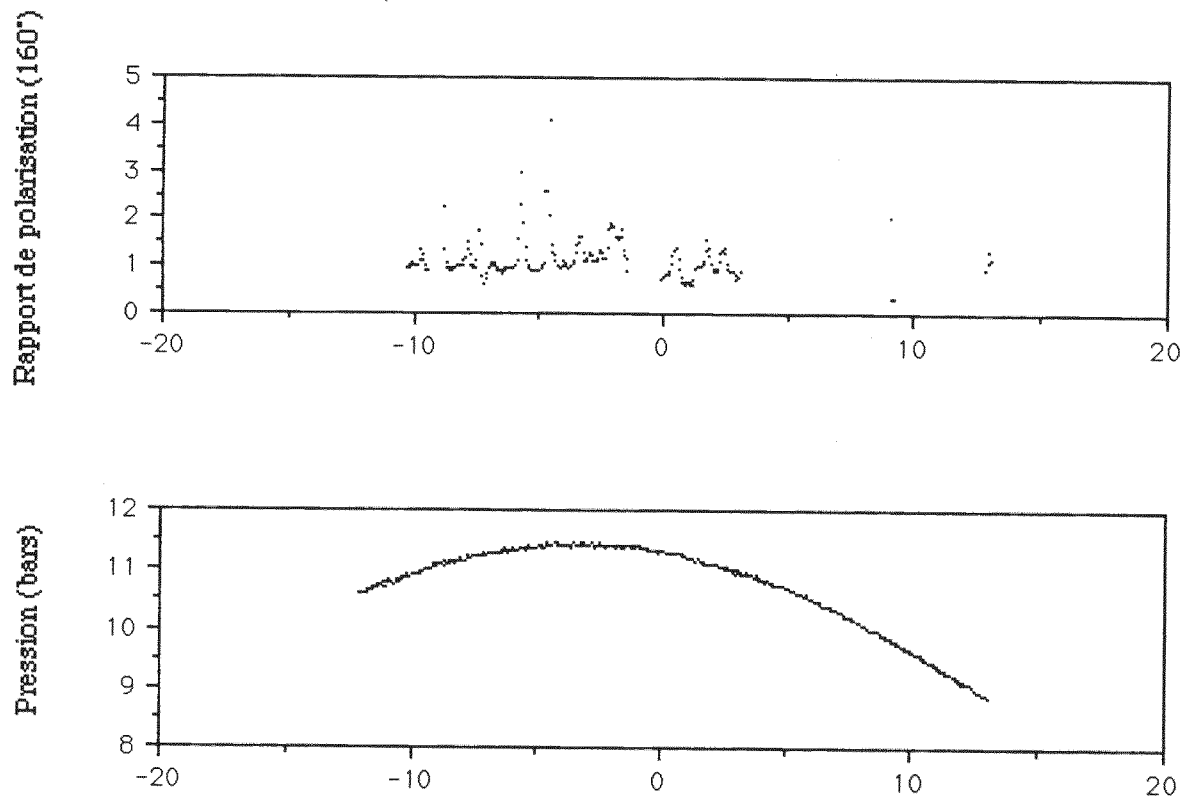


Figure D-7-a Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°1

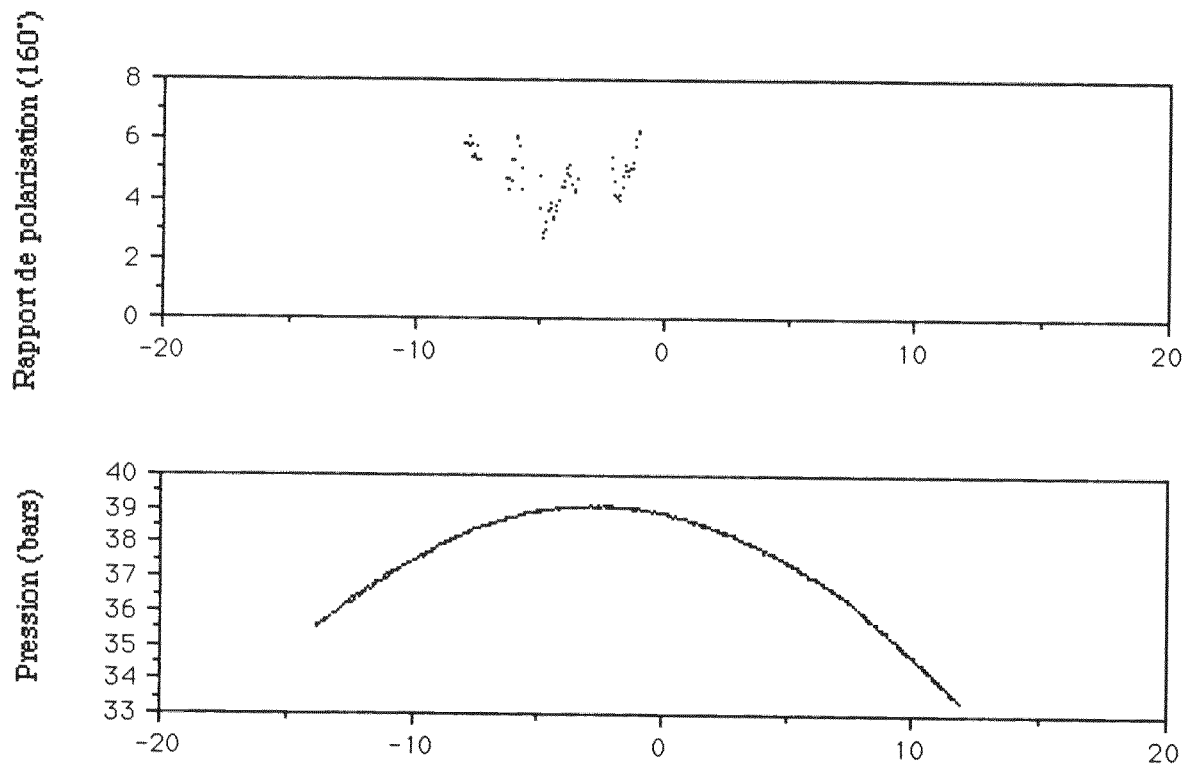


Figure D-7-b Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°2

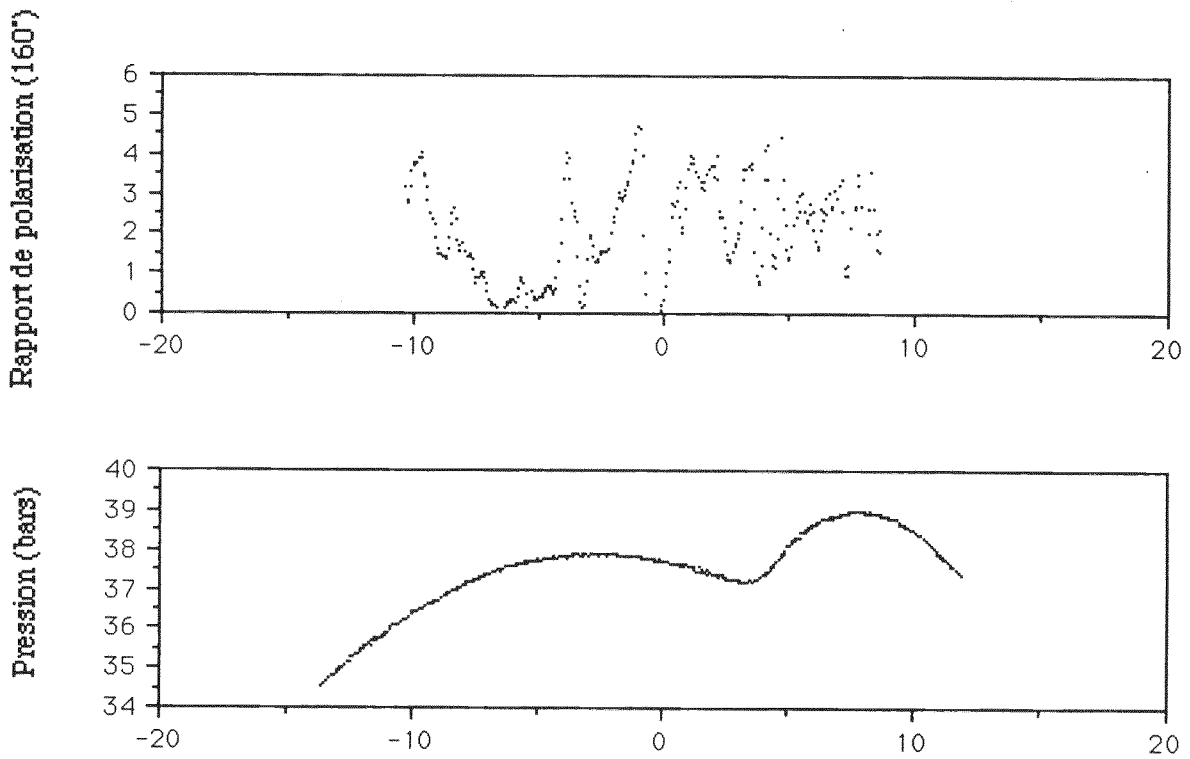


Figure D-7-c Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°3

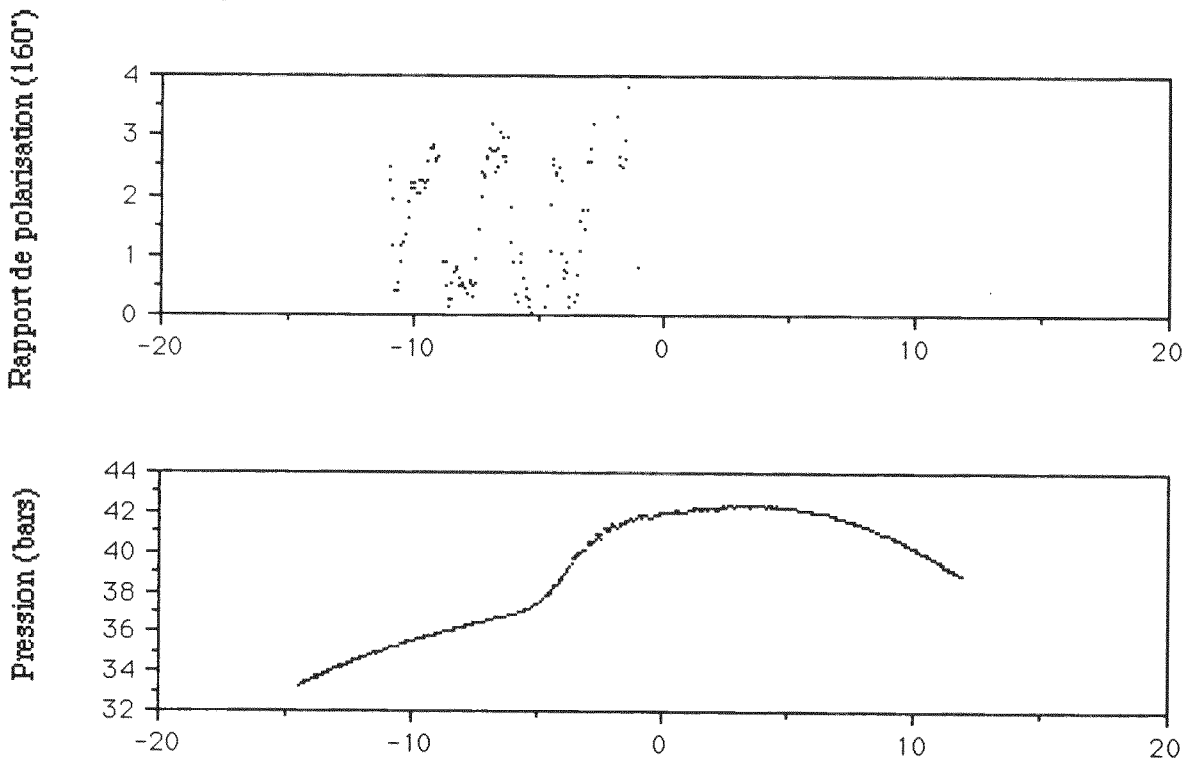


Figure D-7-d Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°4

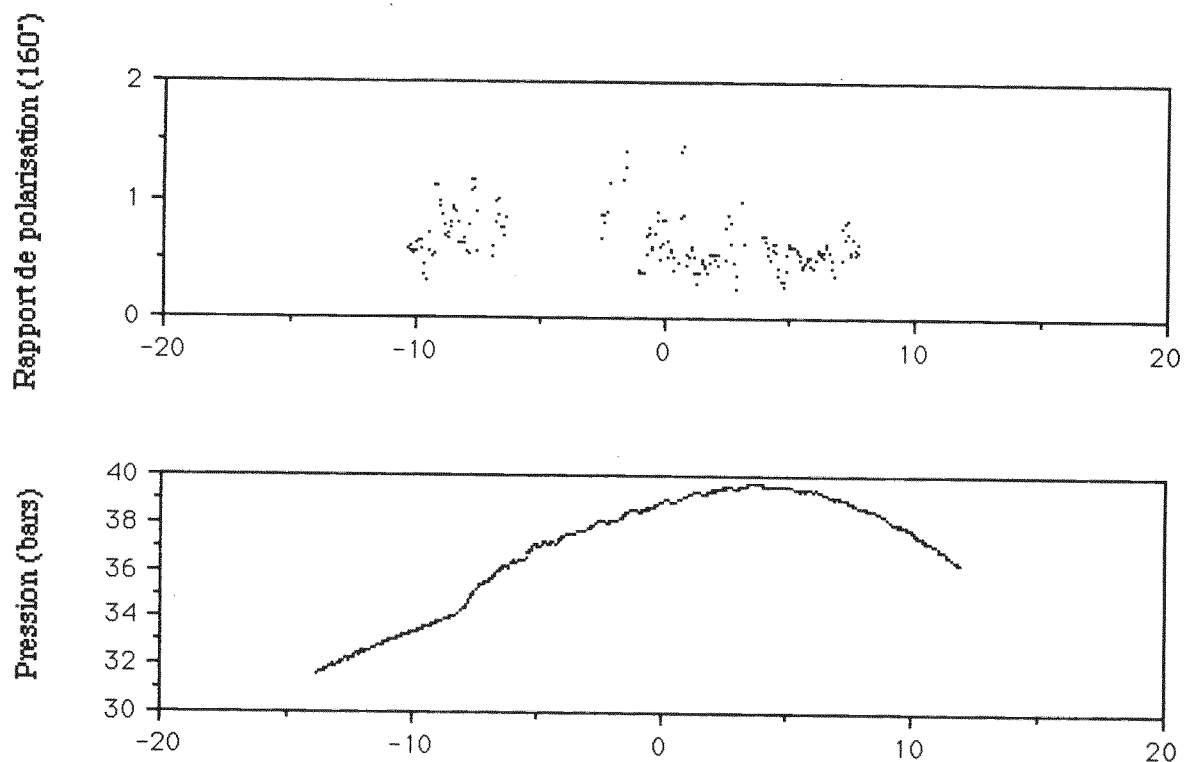


Figure D-7-e Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°5

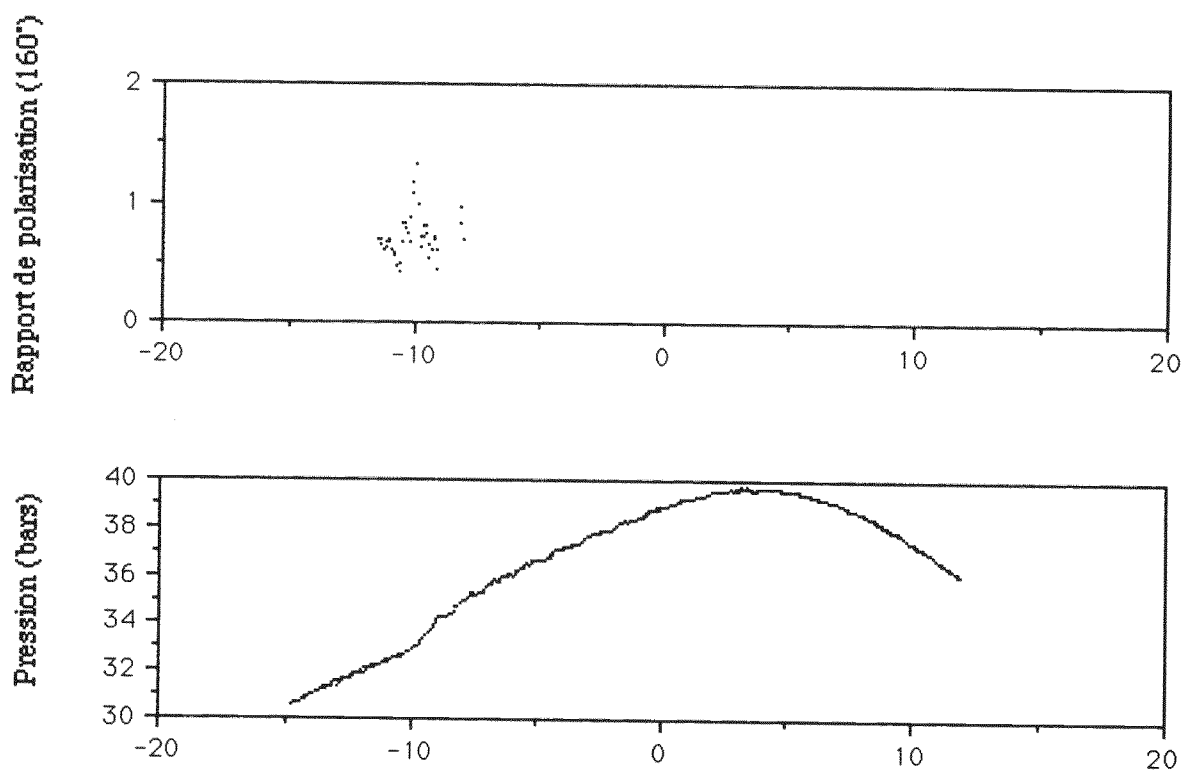
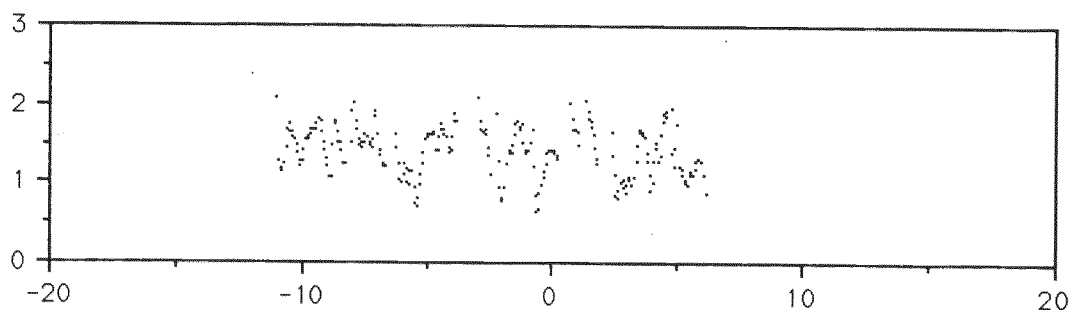


Figure D-7-f Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°6

Rapport de polarisation (160°)



Pression (bars)

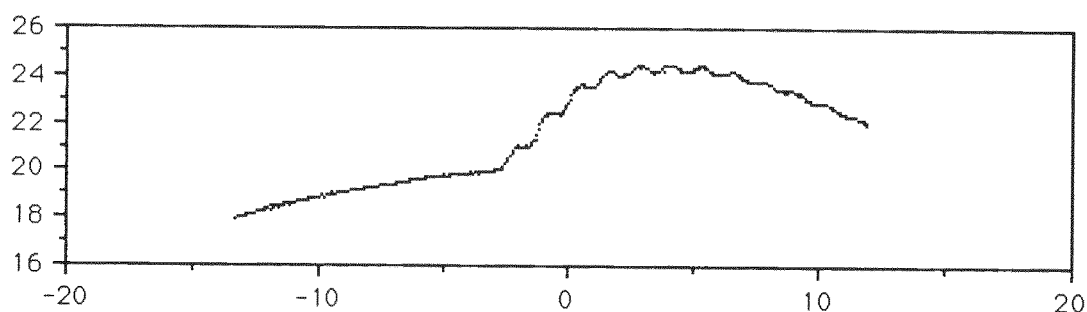
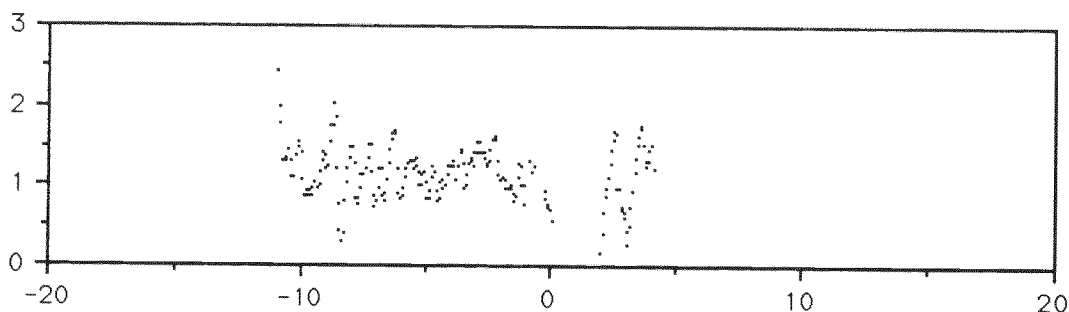


Figure D-7-g Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°7

Rapport de polarisation (160°)



Pression (bars)

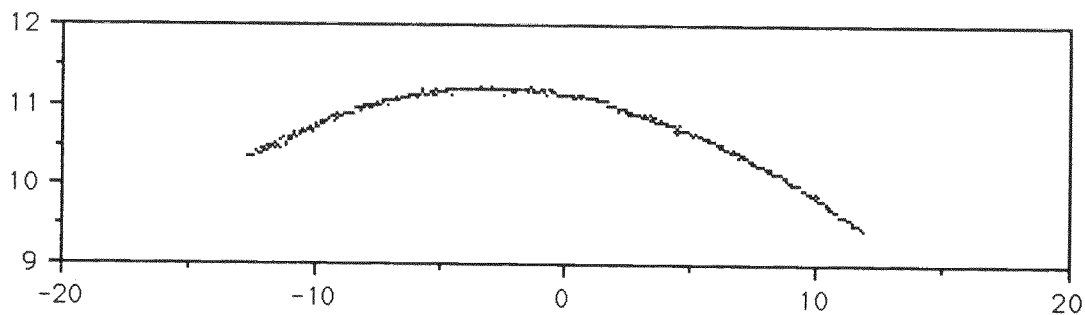


Figure D-7-h Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°8

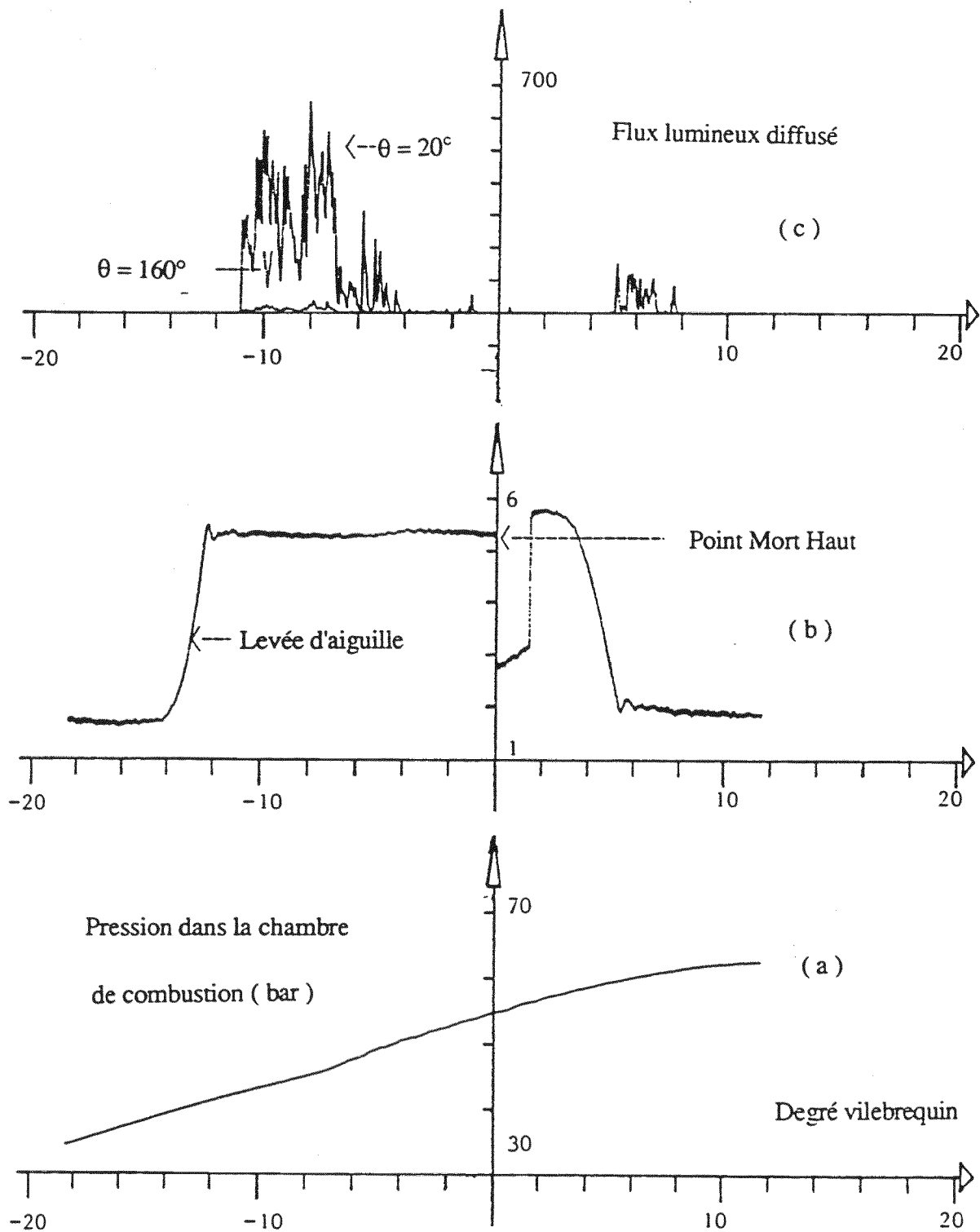


Figure D-8 Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°6
 (Mesures au centre de la chambre
 Conditions d'admission de l'air : $T = 175^\circ\text{C}$ $P = 1300\text{ mm Hg}$)

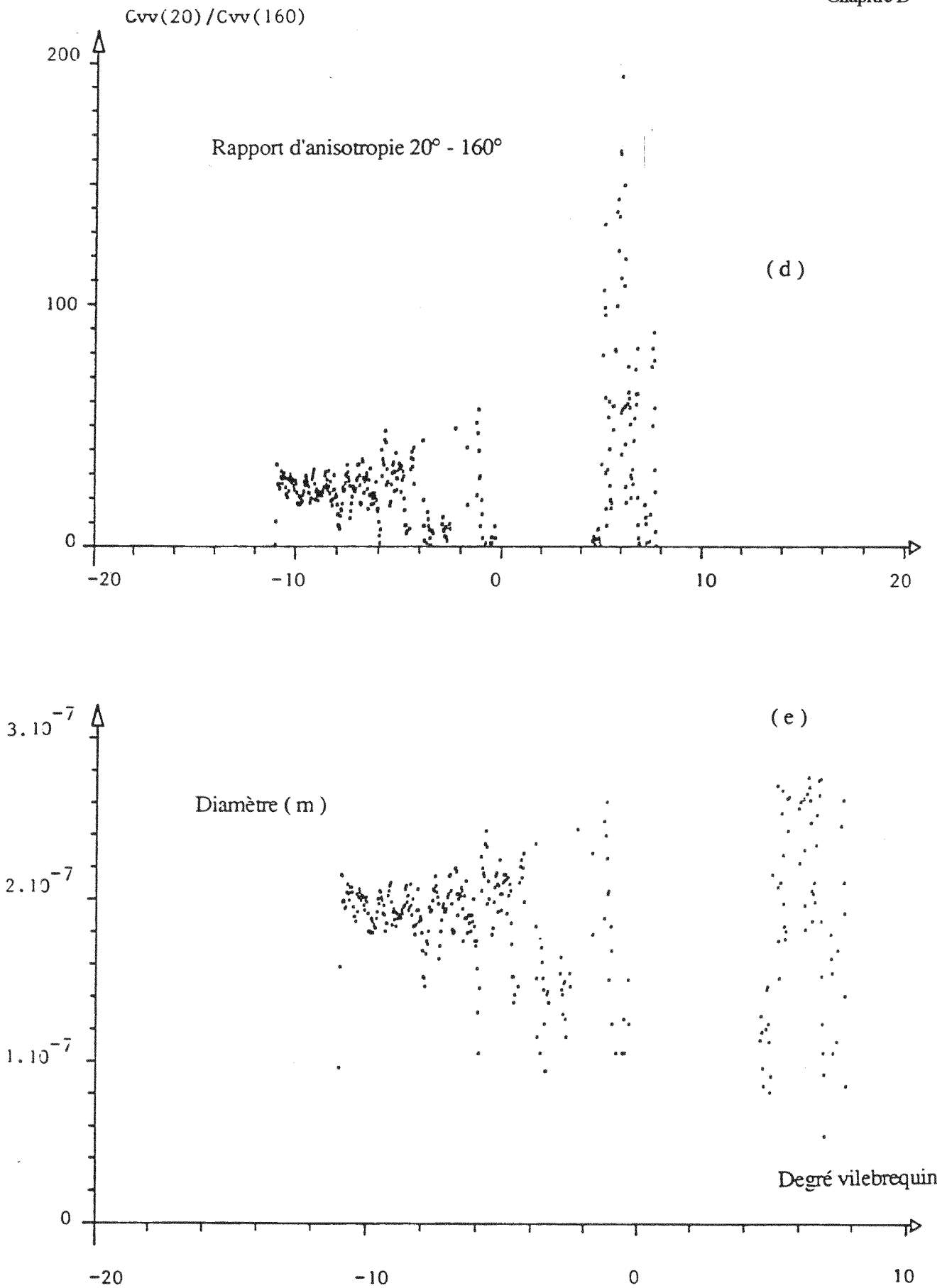
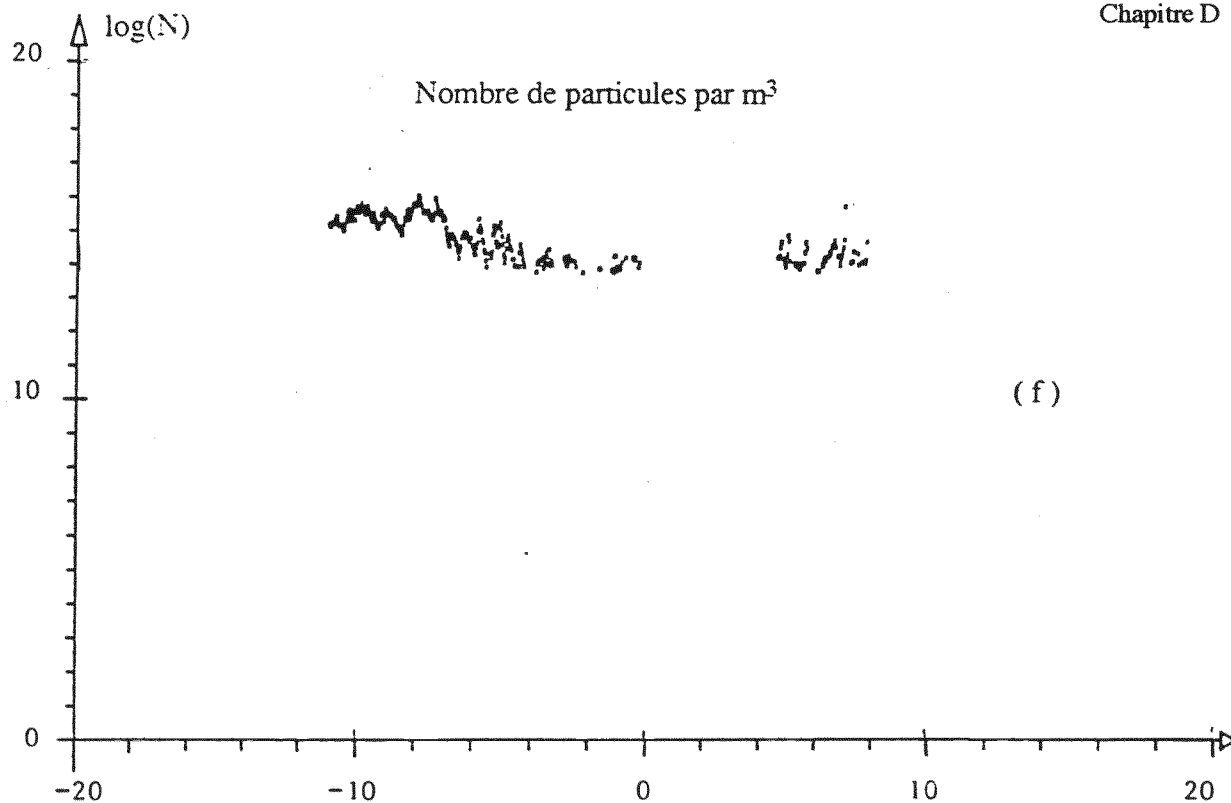
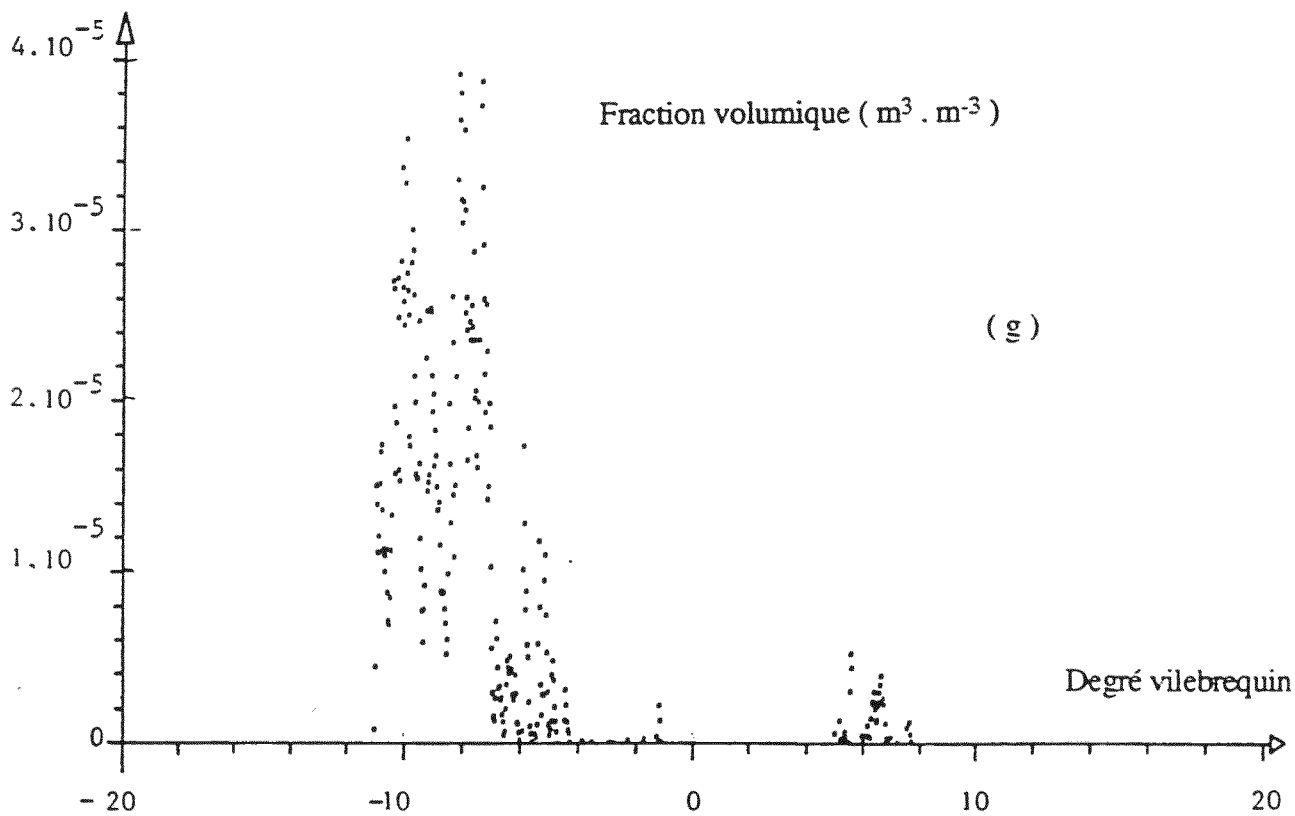


Figure D-8 Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°6 (suite)



(f)



(g)

Figure D-8 Mesures sur moteur dans les conditions de l'essai n°6 (fin)

D-III/ Mesure du volume de suie dans la chambre par atténuation de la lumière

D-III-1/ Bases théoriques

Nous avons vu au § B-II-3-c que l'atténuation d'un faisceau lumineux traversant un nuage de particules (figure B-3) peut être calculée à partir de la théorie de Mie décrivant la diffusion de la lumière par une particule sphérique, Kerker [1969] et de la loi de Beer-Lambert décrivant son absorption :

$$\frac{\phi}{\phi_0} = \exp \left[- \frac{\pi}{4} \cdot N \cdot L \cdot Q_{\text{ext}} \cdot D^2 \right] \quad (1)$$

Le facteur d'efficacité d'extinction Q_{ext} dépend principalement du diamètre D de la particule, de la longueur d'onde de la lumière incidente ainsi que de l'indice de réfraction complexe de suie pour lequel nous avons de nouveau retenu la valeur proposée par Dalzell et col. [1969] : $m = 1,57 - 0,56i$.

La distribution du diamètre des particules n'étant pas monodisperse, on peut la représenter par une loi de probabilité $P(D)$ et l'expression (1) devient :

$$\frac{\phi}{\phi_0} = \exp \left[- \frac{\pi}{4} \cdot N \cdot L \int_0^{+\infty} P(D) \cdot Q_{\text{ext}} \cdot D^2 \cdot dD \right] \quad (2)$$

Comme l'ont montré Kontani et col. [1986], la fraction volumique (volume de suie par unité de volume de gaz) s'exprime alors par :

$$F_V = N \cdot \int_0^{+\infty} P(D) \cdot \frac{\pi D^3}{6} \cdot dD \quad (3)$$

et en posant :

$$Q_m = \frac{\int_0^{+\infty} P(D) \cdot Q_{\text{ext}} \cdot D^2 \cdot dD}{\int_0^{+\infty} P(D) \cdot D^2 \cdot dD} \quad (4)$$

on peut écrire :

$$L \cdot F_v = -\frac{2}{3} \cdot \frac{D_{32}}{Q_m} \cdot \text{Ln}\left(\frac{F}{F_0}\right) \quad (5)$$

où D_{32} est le diamètre de Sauter pour la distribution $P(D)$ défini par :

$$D_{32} = \frac{\int_0^{+\infty} P(D) \cdot D^3 \cdot dD}{\int_0^{+\infty} P(D) \cdot D^2 \cdot dD} \quad (6)$$

Kontani et col. [1986] ont montré à l'aide de la théorie de Mie que, pour la longueur d'onde $\lambda = 514,5$ nm, le rapport $\frac{D_{32}}{Q_m}$ ne variait que de 200 à 130 nm lorsque le diamètre D des particules varie de 30 à 100 nm. Compte tenu des valeurs expérimentales que nous avons obtenues pour le diamètre des particules, nous adoptons la valeur $\frac{D_{32}}{Q_m} = 130$ nm qui conduit à la relation numérique simple :

$$L \cdot F_v = -87 \cdot 10^{-9} \cdot \text{Ln}\left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \quad (7)$$

Notons que cette valeur $87 \cdot 10^{-9}$ est comparable à celle de l'hypothèse d'une distribution monodisperse du § B-II-3-d où la valeur était de $105 \cdot 10^{-9}$.

Le produit $L \cdot F_v$ représente le volume de suie contenue dans le volume traversé par un faisceau optique de section unité. Les méthodes de déconvolution du signal ne permettent d'atteindre les fractions volumiques ponctuelles que dans des cas de configurations géométriques symétriques qui ne correspondent pas à celui de la flamme turbulente instationnaire d'un moteur Diesel.

D-III-2/ Montages optiques

Nous nous proposons d'effectuer alternativement des mesures soit en plusieurs points de la chambre de combustion à l'aide de détecteurs au silicium, soit sur l'ensemble de la chambre, par cinématographie rapide. Le montage optique (figures D-11) utilise comme source de lumière

un laser à argon ionisé réglé sur la longueur d'onde 514,5 nm. Ce faisceau est d'abord élargi pour éclairer l'ensemble de la chambre de combustion (figure D-10) puis il passe à travers un filtre interférentiel ($\Delta\lambda = 1 \text{ nm}$) pour éliminer le rayonnement de la flamme.

Pour la première série de mesures, on a placé trois photodiodes en trois différentes positions décrites sur la figure D-11-a. Une quatrième rend compte de l'atténuation à travers toute la chambre.

Dans le montage destiné à la cinématographie et donné à la figure D-11-b, l'image de la chambre de combustion se forme sur la surface photosensible d'un film "16mm" d'une caméra rapide à la cadence de 6000 images par seconde. Une partie du faisceau initial est prélevée puis atténuée par un filtre neutre. Par réflexions sur trois miroirs semi-réfléchissants successifs, elle permet de créer trois niveaux de référence sur le film. Chaque image obtenue contient finalement une vue de la chambre de combustion et les trois niveaux de référence.

La digitalisation de cette image est faite à l'aide d'une caméra CCD reliée à un micro-ordinateur. On obtient une image discrète de 512 points par 512 points ayant chacun un niveau de gris compris entre 0 et 255 (figure D-17-a).

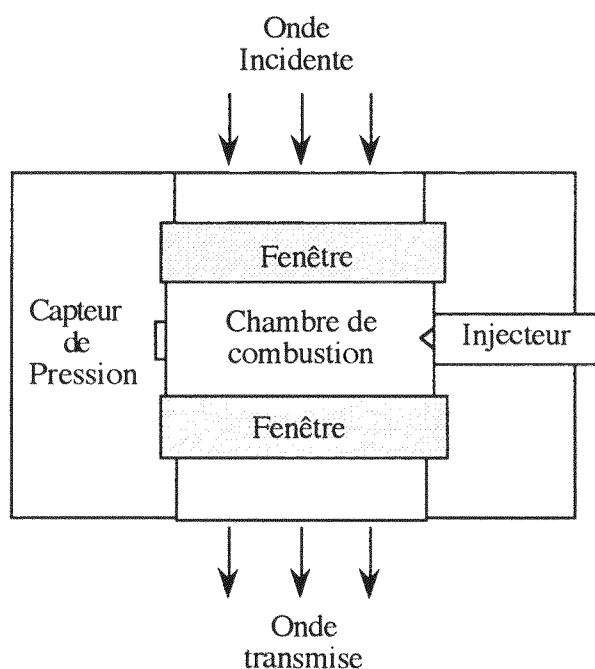


Figure D-10 Culasse traversée par un faisceau parallèle large

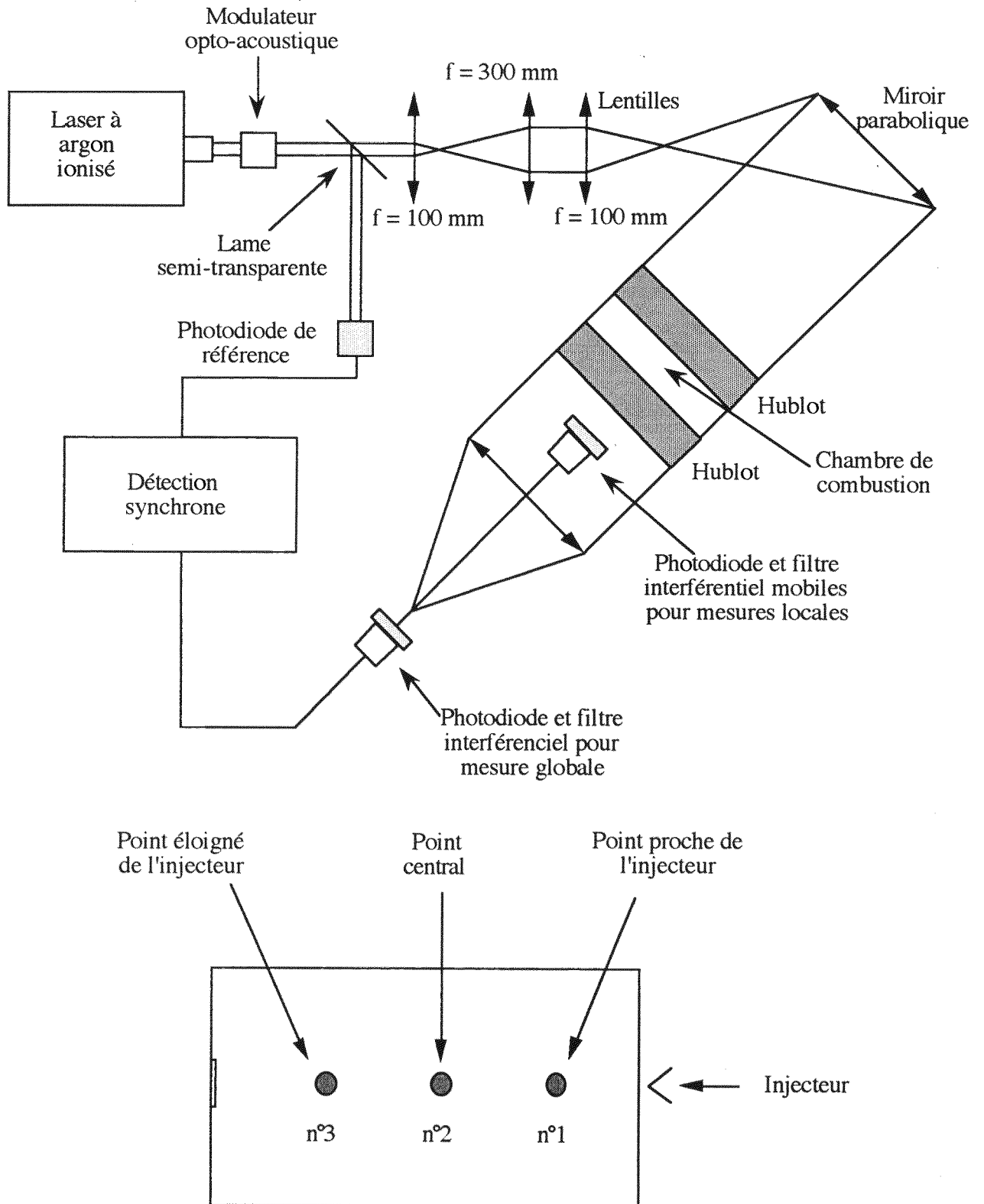


Figure D-11-a Montage optique pour la mesure de l'atténuation par des capteurs linéaires

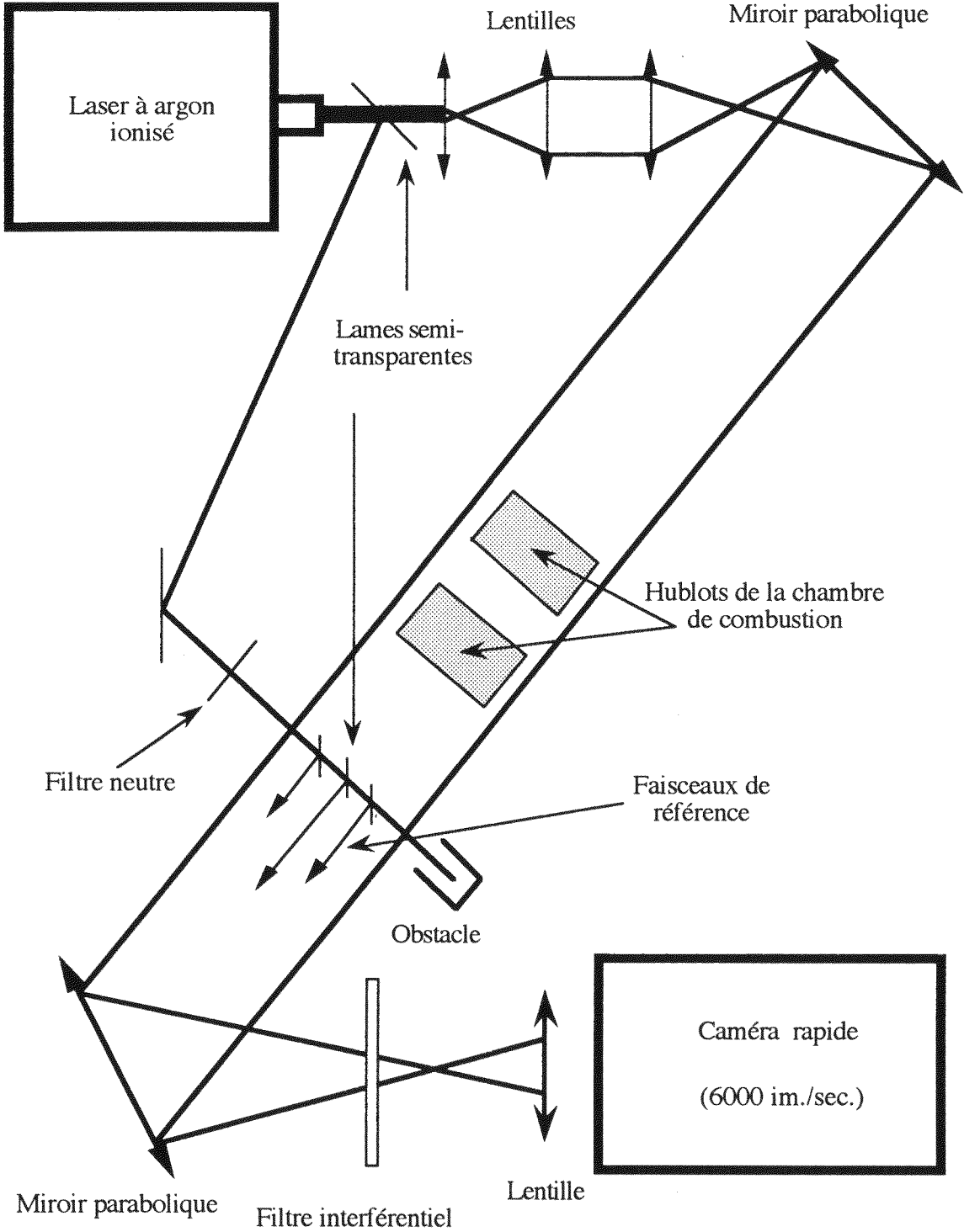


Figure D-11-b Montage optique pour la mesure de l'atténuation par cinématographie rapide

D-III-3/ Résultats et interprétation

Pour une pression de suralimentation de 1300 mm de mercure, une quantité de gazole injectée de 12 mm^3 par coup, une avance à l'injection de 22°V , une durée d'injection de 20°V et parfois un rebond de l'aiguille vers + 10 vilebrequin, nous avons réalisé les mesures d'atténuation sur différentes traversées de la chambre pour des températures de l'air à l'admission comprises entre 100 et 180°C .

Sur chaque groupe de courbes, nous représentons la pression dans la chambre et la fraction volumique déduite du signal lumineux en considérant une longueur traversée égale à la largeur de la chambre. La fraction volumique calculée représente donc une valeur moyennée sur cette traversée.

La température élevée des particules de suie et par conséquent leur rayonnement thermique ont ici encore nécessité l'utilisation conjointe du filtre interférentiel et de la détection synchrone qui permettent d'éliminer l'effet de ce rayonnement indésirable.

a/ Mesures ponctuelles et globales

- Mesure à proximité du nez de l'injecteur (figure D-12) :

Quelle que soit la température d'admission, l'atténuation du faisceau lumineux commence très rapidement après la levée d'aiguille et le début de l'injection du carburant. De plus, le profil de l'atténuation du faisceau lumineux en fonction du temps est peu bruité et ne présente pas de variations brutales. L'atténuation observée semble donc essentiellement provoquée par le jet liquide de carburant et ne peut en conséquence conduire à aucune information sur les particules de suie dans la chambre. Les valeurs de fractions volumiques étant toujours calculées à partir de l'indice de réfraction de la suie, elles n'ont ici aucune signification.

- Mesure au centre de la chambre de combustion (figure D-13) :

Toutes les courbes d'atténuation présentent deux pics caractéristiques. Un premier pic consécutif à l'injection représente l'atténuation par le jet liquide. Le deuxième pic est consécutif à la combustion (le début de la combustion est visualisé par le changement de pente sur les courbes de pression) et il est l'image de l'évolution de la quantité de suie présente sur la traversée considérée. On remarque deux évolutions importantes en fonction de la température de l'air à l'admission :

- le maximum d'atténuation relatif aux gouttelettes de gazole tend à diminuer en amplitude et en durée lorsque la température s'élève, en raison d'une vaporisation plus importante et d'un délai plus court, il devient presque imperceptible pour $\theta = 170^\circ\text{C}$

- le maximum de la fraction volumique de suie augmente avec la température de l'air à l'admission. Ce résultat concorde avec celui obtenu par Haupais [1987]. L'augmentation de la température de l'air à l'admission rendant le délai d'auto-inflammation plus court, la combustion commence alors que le carburant a peu diffusé dans la chambre. De plus, la masse volumique de l'air devenant moins importante, la quantité d'oxygène disponible et par conséquent l'oxydation de suie sont plus réduites et il en résulte une formation de suie plus importante.

- Mesure à l'opposé de l'injecteur (figure D-14) :

On remarque qu'ici les phénomènes sont décalés dans le temps en raison du temps de pénétration du jet et du temps de propagation de la flamme mais également qu'en fin de trajectoire les mouvements des gaz les ont rendus plus aléatoires. On note également que les concentrations en suie atteignent des valeurs plus élevées.

- Mesure sur toute la chambre (figure D-15) :

Cette mesure est plus difficile à interpréter pour deux raisons :

- elle prend en compte l'atténuation simultanée par des gouttelettes et par des particules de suie se trouvant à des endroits différents,
- elle rend compte de tout le volume de la chambre de combustion et donc aussi des régions à faible concentration. Elle est de ce fait "diluée" et peu sensible aux évolutions : en particulier nous n'observons pas de manière aussi sensible, sur la figure D-15, l'influence de la température constatée sur les mesures locales. On remarquera simplement sur les courbes d'atténuation que le décrochement consécutif à l'apparition de la suie apparaît en même temps que celui de la courbe de pression qui indique le début du dégagement de chaleur.

Les mesures effectuées au centre de la chambre conduisent à des valeurs de la fraction volumique deux fois plus faibles que celles obtenues par diffusion de la lumière. Cet écart s'interprète aisément par le fait que cette mesure par diffusion de la lumière concerne un petit volume au cœur du jet enflammé alors que la mesure par atténuation prend en compte toute la traversée de la chambre et opère donc une moyenne conduisant à des valeurs inférieures.

D'une manière générale, ces mesures mettent en évidence, d'une part la rapidité de la formation de la suie qui débute parfois avant même l'inflammation, et d'autre part l'augmentation de la quantité maximale de suie avec la température de l'air à l'admission (figure D-16) pour les raisons déjà évoquées ci-dessus : diminution de la masse d'air admise dans le cylindre et diminution du délai d'autoinflammation.

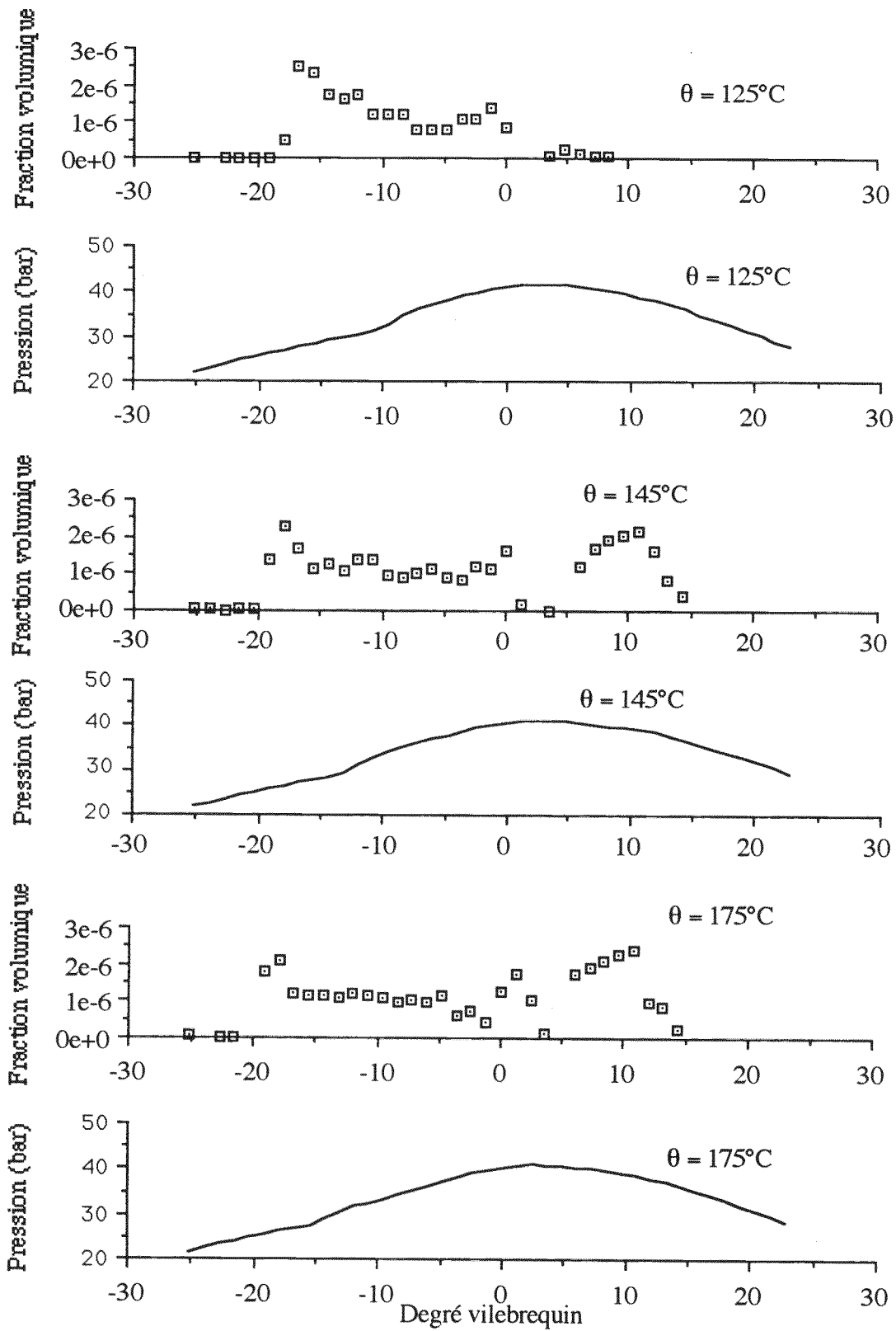


Figure D-12 Mesures d'atténuation au point proche de l'injecteur pour trois températures de l'air à l'admission

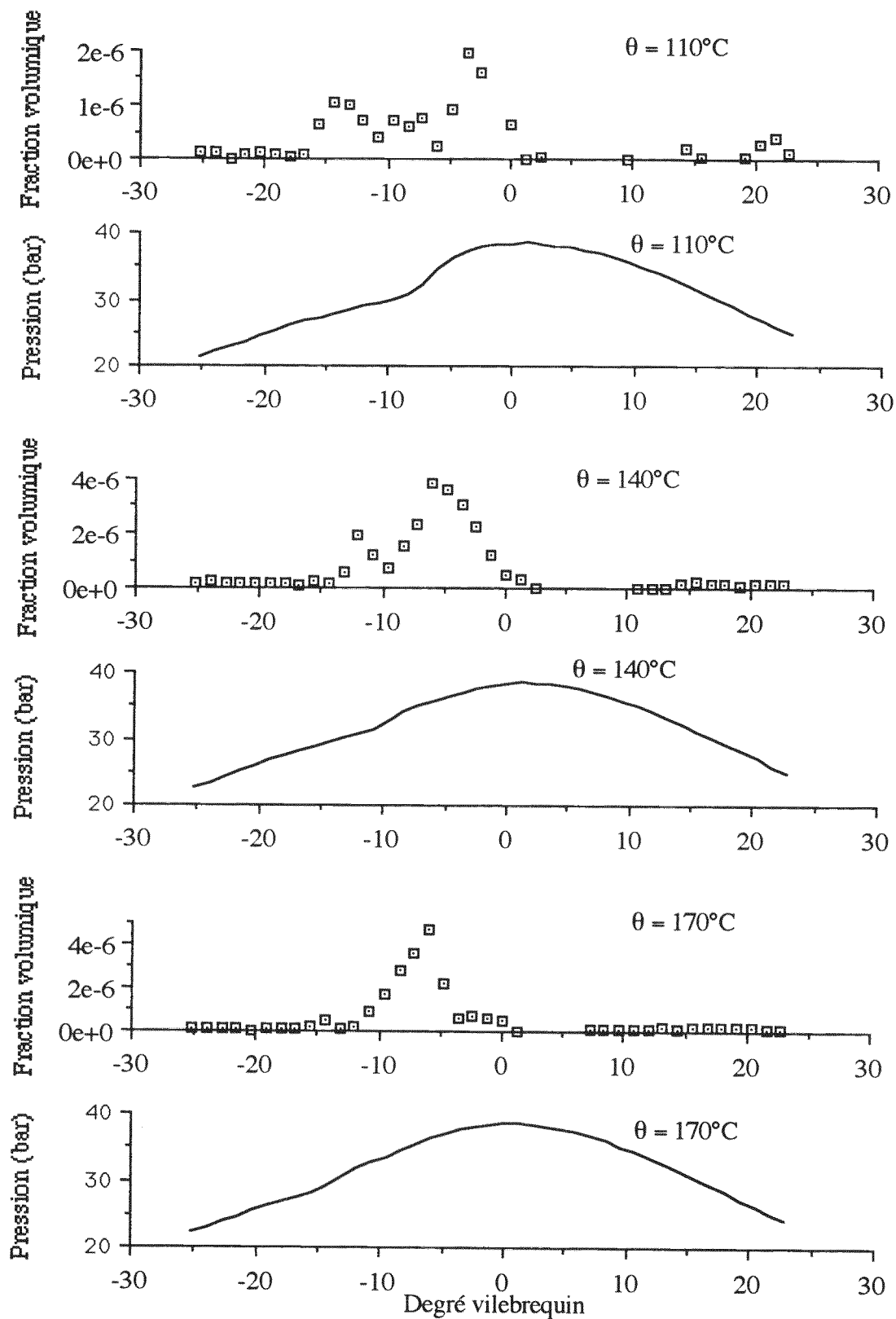


Figure D-13 Mesures d'atténuation au centre de la chambre de combustion pour trois températures de l'air à l'admission

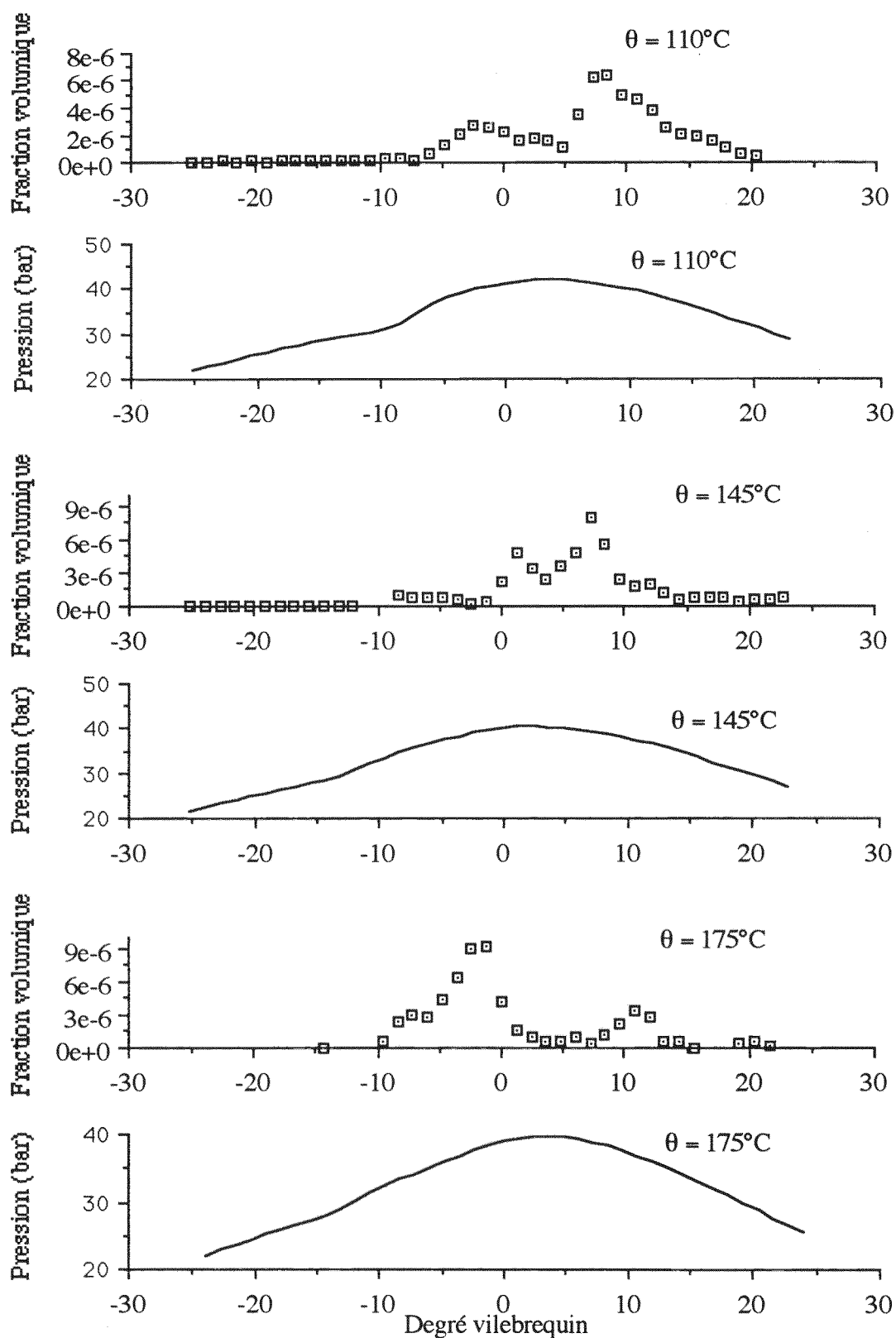


Figure D-14 Mesures d'atténuation au point éloigné de l'injecteur pour trois températures de l'air à l'admission

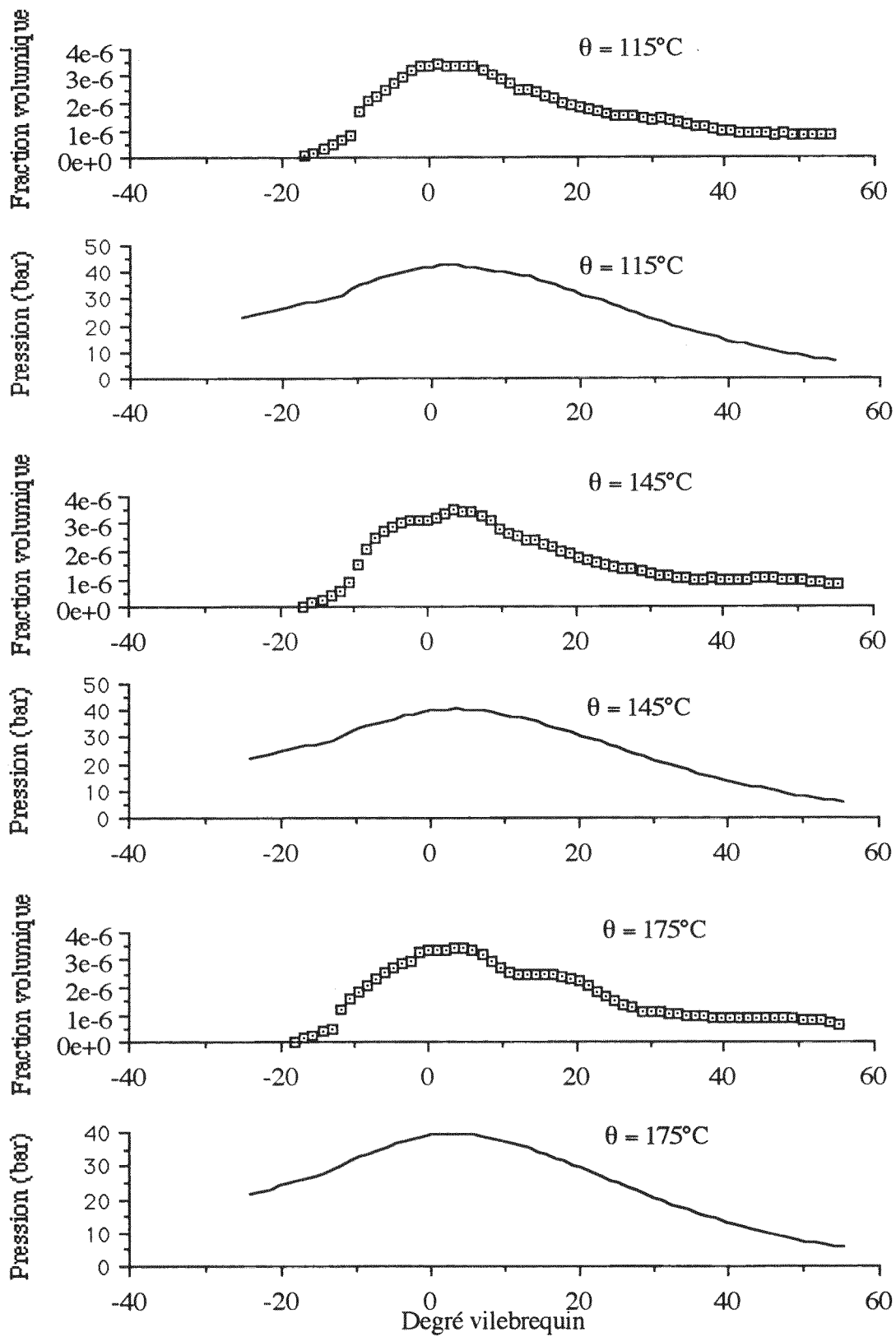


Figure D-15 Mesures d'atténuation sur toute la chambre de combustion pour trois températures de l'air à l'admission

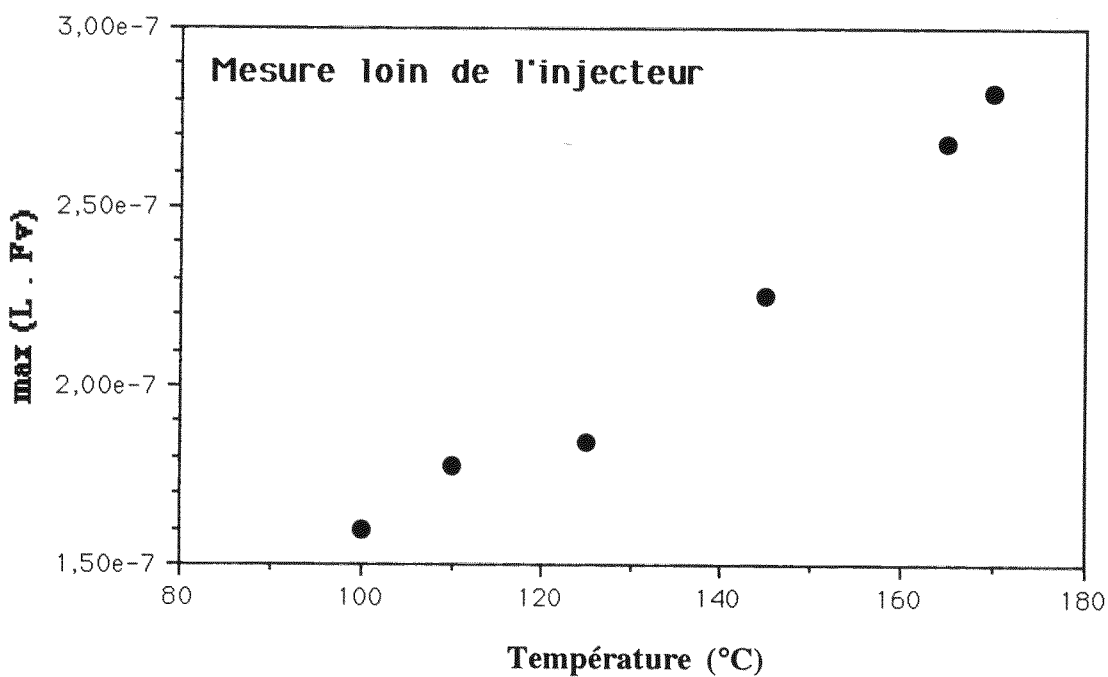
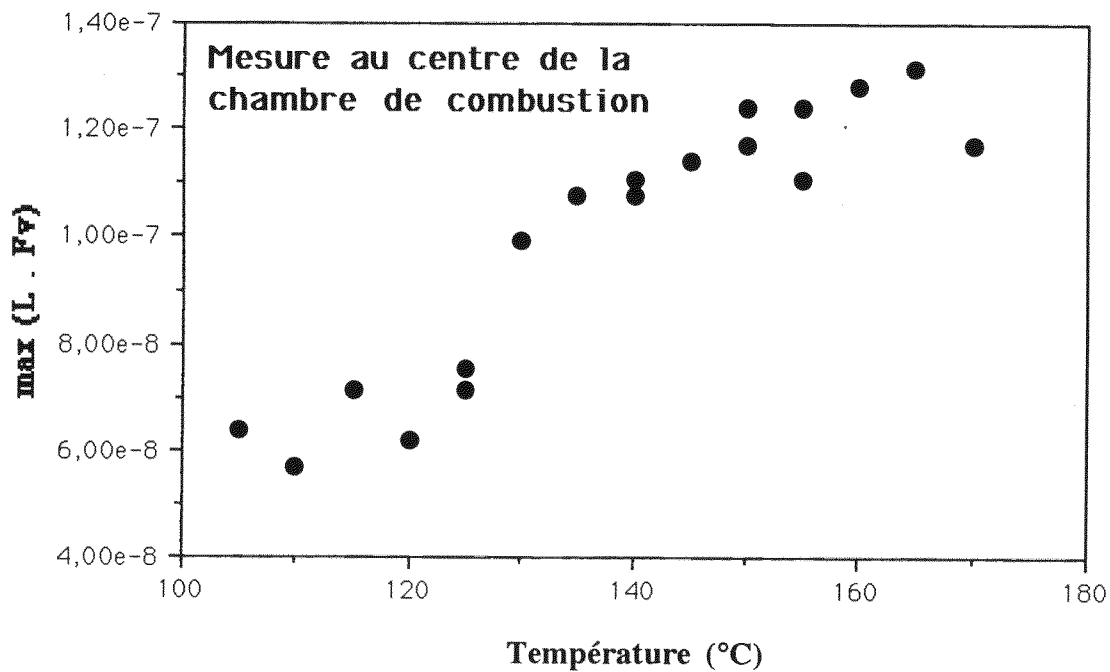


Figure D-16 Influence de la température de l'air à l'admission sur la valeur maximale de la fraction volumique de suie atteinte pendant le cycle

b/ Mesure par cinématographie rapide

Un essai a été réalisé dans les conditions de l'essai n° 6 du § D-II-4, à savoir une pression de suralimentation de 1300 mmHg et une température de l'air admis de 175°C.

- *Le traitement d'image*

Un logiciel de traitement des images digitalisées permet leur visualisation sous forme de niveaux de gris ou de fausses couleurs sur l'écran d'un micro-ordinateur ainsi que la présentation des résultats du calcul du produit L.Fv.

Ces calculs sont effectués pour toute la surface du hublot visé ce qui permet une résolution de 200 x 300 points. La vitesse de la caméra permet de disposer d'une image tous les degrés vilebrequin lorsque le moteur tourne à la vitesse de 1000 tours par minute.

Au cours de la traversée de la chambre de combustion, le faisceau laser subit une atténuation produite par les particules de suie mais aussi par les gouttelettes de gazole. Or, ici encore, les calculs sont conduits en considérant que toute l'atténuation provient de la suie seulement. Il faut donc interpréter ces images en tenant compte des courbes d'évolution de pression et de levée d'aiguille afin de dissocier les effets de la suie de ceux des gouttelettes.

Nous avons défini dans la chambre de combustion cinq zones, correspondant chacune à une tranche, qui se projettent sur l'image sous forme de bandes verticales (figure D-18). Le calcul de la valeur moyenne de L.Fv sur chacune de ces bandes et pour chaque degré de rotation du vilebrequin permet de connaître l'évolution du nuage de suie à travers la chambre de combustion d'une part et au cours de la combustion d'autre part (figure D-19). D'une manière identique, nous avons défini cinq points (figure D-18) (2 x 2mm de côté) pour lesquels nous avons effectué les mêmes calculs (figure D-19).

L'observation des images obtenues montre bien (figure D-17) cette évolution du nuage de particules de suie mais ne permet pas de détecter les premiers instants d'apparition des particules en raison de l'impossibilité de discerner, par cette méthode, gouttelettes de combustible et particules de suie.

Afin d'étudier de façon quantitative les résultats obtenus, nous représentons l'évolution de L.Fv calculée par la relation 7 et moyennée sur cinq bandes et cinq points comme indiqué sur la figure D-18. Les deux séries de courbes obtenues dans le cas des bandes et des points (figure D-19) présentent des allures comparables. Dans le cas des bandes, les variations sont moins importantes en raison de leur caractère moyenné sur la hauteur.

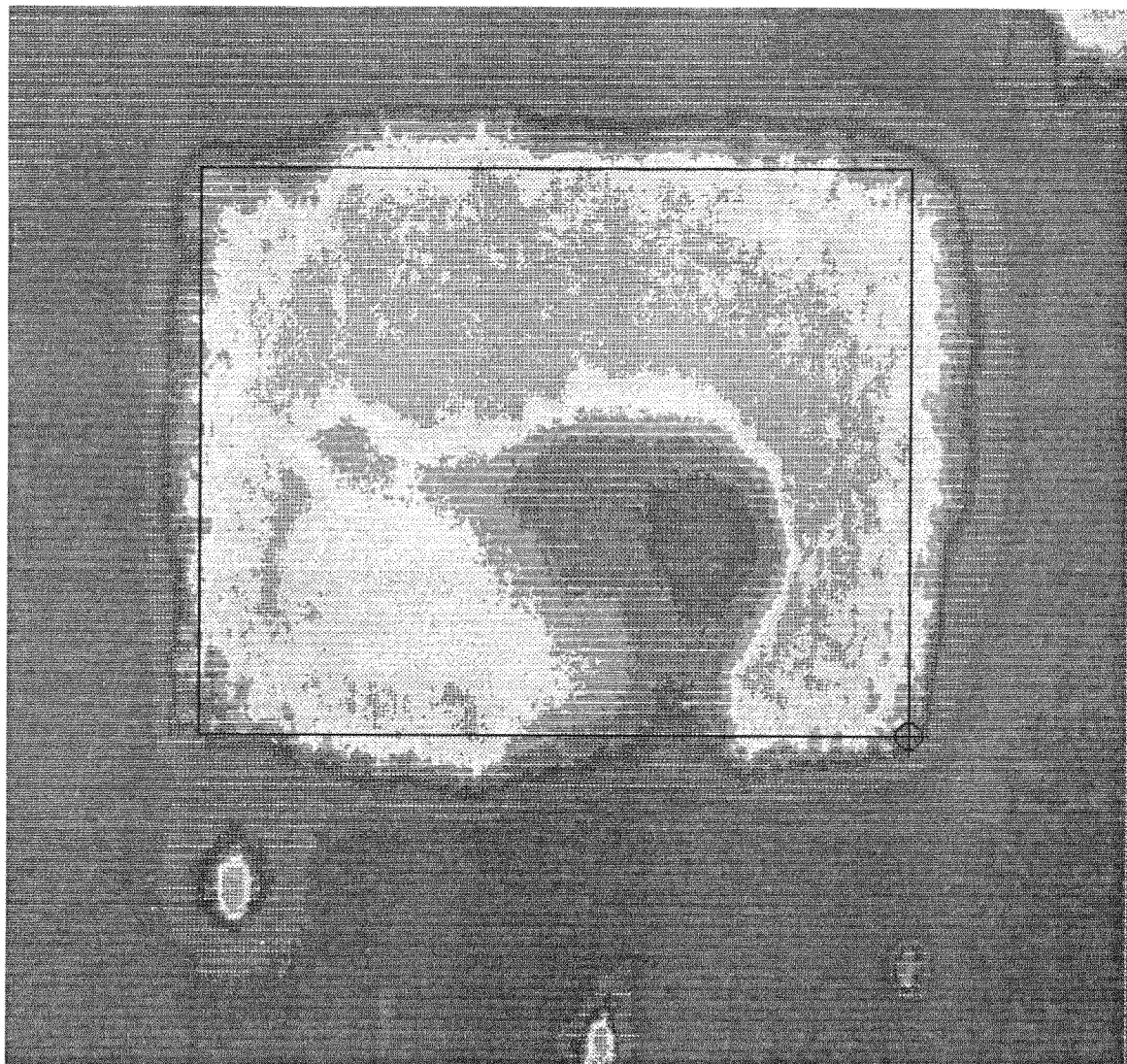
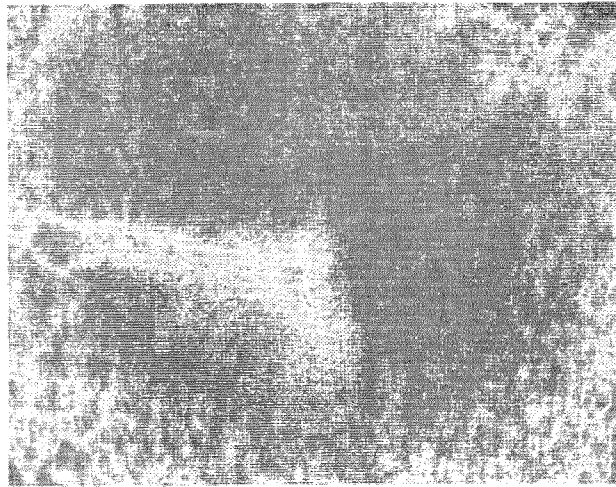
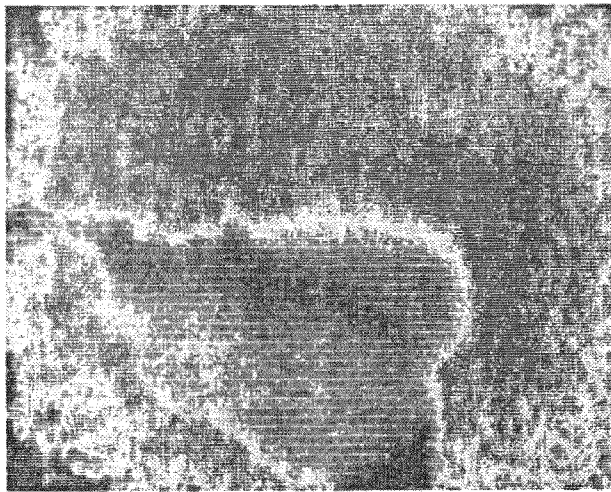


Figure D-17-a Image digitalisée accompagnée des trois points de référence



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -15 degré vil**

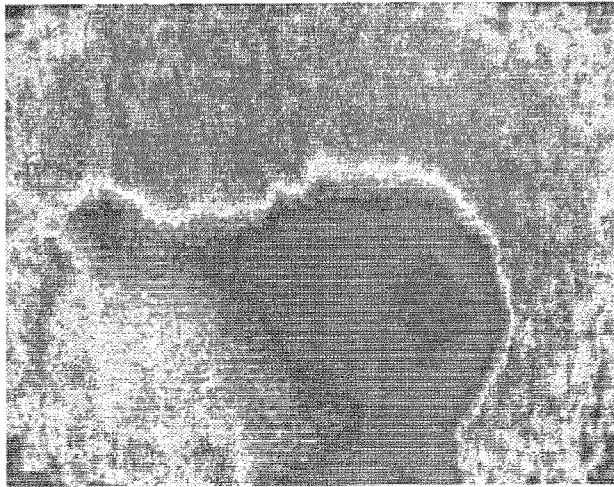
0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -13 degré vil**

0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213

Figure D-17-b Concentration surfaccique de suie à - 15 et - 13 ° vilsbrequin



**Concentration Surfaceute L.Fv
à -11 degré vil**

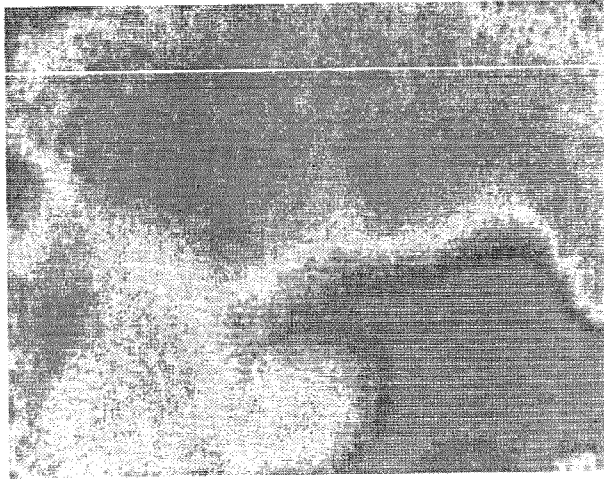
0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213



**Concentration Surfaceute L.Fv
à -9 degré vil**

0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213

Figure D-17-c Concentration surfaceute de suite à - 11 et - 9 ° vilebrequin



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -7 degré vil**

0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -5 degré vil**

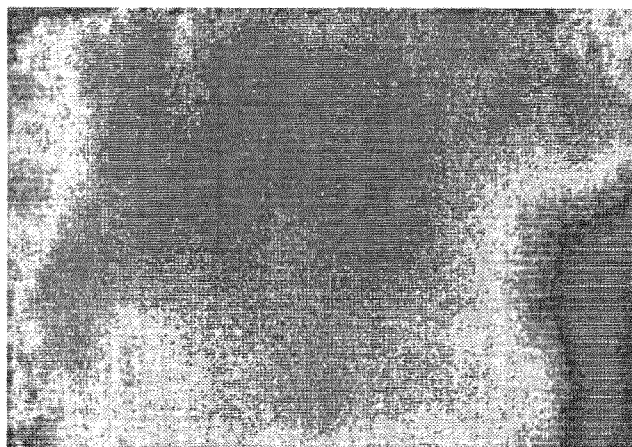
0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213

Figure D-17-d Concentration surfaccique à - 7 et - 5 ° Vilebrequin



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -3 degré vil**

0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213



**Concentration Surfaccique L.Fv
à -1 degré vil**

0*14
15*29
30*45
46*60
61*75
76*91
92*106
107*121
122*137
138*152
153*167
168*183
184*198
199*213

Figure D-17-e Concentration surfaccique à - 3 et - 1 ° vilebrequin

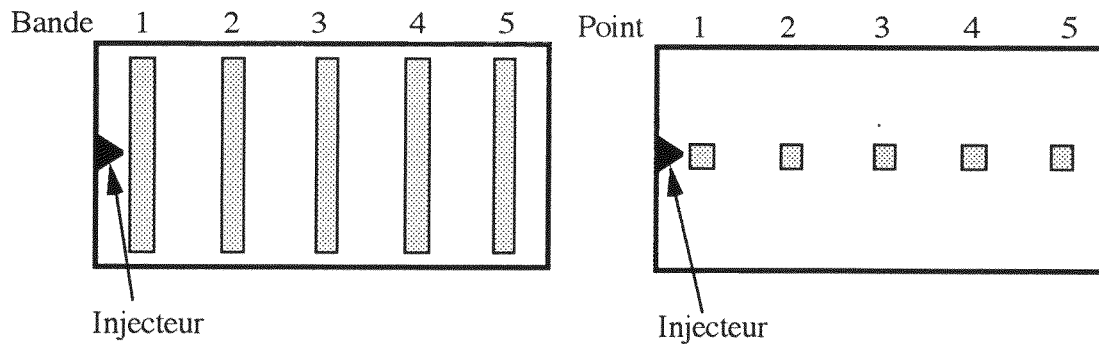


Figure D-18 Disposition des points et des bandes dans la chambre de combustion

Les courbes concernant les mesures proches de l'injecteur (b_1, b_2, p_1, p_2) présentent les deux pics bien marqués, déjà observés sur les mesures locales par capteurs optiques (figure D-14). Le premier correspond à l'atténuation provoquée par les gouttelettes de combustible qui n'ont pas encore commencé à brûler et le second à l'apparition des particules de suie.

On constate que les pics correspondants sont déphasés dans le temps : en effet, à mesure que l'on s'éloigne de l'injecteur, le pic dû à la suie arrive de plus en plus tard. Ce phénomène trouve son origine dans la propagation du nuage de particules de suie formées dans les zones riches proches de l'injecteur.

Pour la dernière bande, située loin de l'injecteur, on note l'apparition d'un troisième pic se situant à -3° vilebrequin. La mesure étant effectuée à proximité de la paroi qui fait face à l'injecteur, le jet enflammé, après être passé devant la zone de mesure, "se réfléchit" sur cette paroi et repasse dans la zone de mesure. Ceci est également directement observable sur les images relevées en cinématographie.

Des mesures basées sur le même principe ont été réalisées par Haupais [1987] sur un moteur semblable au notre. Le dispositif de mesure de l'atténuation de la lumière utilise des capteurs optiques et un dispositif électronique qui permet de faire une moyenne instantanée de $L.F_v$ sur des bandes semblables à celles décrites plus haut. La comparaison des courbes obtenues montrent que les deux méthodes de traitement du signal lumineux conduisent à des résultats qualitativement voisins. La cinématographie présente en outre une résolution spatiale très supérieure à celle que l'on peut obtenir avec des capteurs optiques répartis. En estimant la valeur du parcours optique égale à la demi-largeur de la chambre de combustion (16 mm), la fraction volumique maximale atteinte est égale à $2,5 \cdot 10^{-5}$.

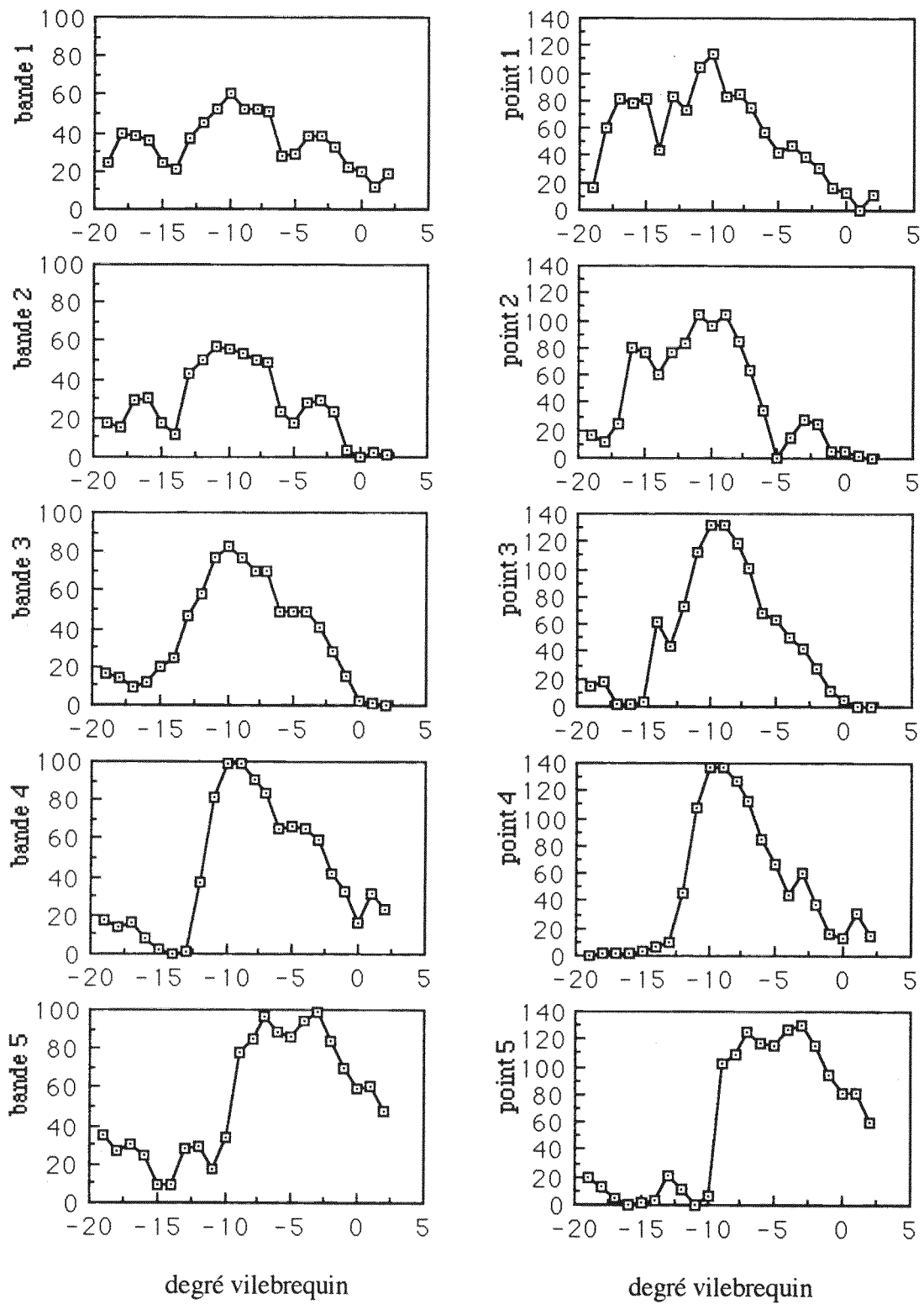


Figure D-19 Mesure intégrée sur bandes et points de la fraction volumique de suie sur le trajet optique

D-IV/ Conclusion

L'application de la méthode de la diffusion de la lumière aux jets liquides enflammés d'un moteur Diesel souffre d'une ambiguïté sur la nature du diffusant. Nous avons mis au point une mesure optique complémentaire permettant de déterminer la présence de la suie et nous avons pu alors mesurer par la méthode du rapport d'anisotropie le diamètre de ces particules de suie.

Nous avons ensuite appliqué la méthode de l'atténuation pour des mesures plus globales de la fraction volumique de la suie et la distribution instantanée à travers une projection de la chambre de combustion a été obtenue.

La valeur déterminée par le rapport d'anisotropie est quatre fois plus grande (tableau D-3) que celle obtenue lors de la mesure d'atténuation par un capteur optique linéaire (photodiode). Nous avons vu que cela provient du fait que la première est une mesure locale au centre de la chambre de combustion tandis que la seconde est pondérée sur toute la traversée optique (alors que les particules de suie ne sont pas uniformément présentes sur tout ce trajet).

Ces mesures ont également fait ressortir la rapidité de la formation de suie et l'influence de la température de l'air d'admission sur cette formation.

n°	méthode	Fv maximale
1	diffusion 20-160°	4.10^{-5}
2	extinction photodiode	1.10^{-5}
3	extinction cinématographie	$0,9.10^{-5}$

*Tableau D-3 Comparaison des fractions volumiques maximales
obtenues par les trois méthodes*

CONCLUSION

CONCLUSION

L'étude bibliographique préliminaire a permis d'évaluer le degré de complexité des processus régissant la nucléation, la croissance et l'oxydation des particules de suie et a mis en évidence la nécessité d'effectuer des mesures instantanées de la taille et de la concentration de ces particules afin de mieux comprendre leur évolution dans les milieux en combustion et plus particulièrement dans les moteurs Diesel.

Les méthodes optiques généralement utilisées dans ce but sont basées sur la théorie de la diffusion de la lumière. Une analyse théorique de leur applicabilité aux aérosols a permis de mettre en évidence les critères les mieux adaptés à chaque configuration expérimentale.

Une étude préalable sur une flamme libre de diffusion laminaire a d'abord été effectuée. Elle a permis d'établir une cartographie détaillée des tailles et concentrations des particules dans cette flamme. L'interprétation de ces résultats reste néanmoins complexe. En effet, la distribution des diamètres de particule est supposée monodisperse mais la multiplicité des phénomènes mis en jeu peut faire évoluer leurs tailles dans des sens opposés et provoque ainsi la coexistence de particules de suie de dimensions différentes. Toutefois, à partir d'une estimation de la vitesse à l'intérieur de la flamme, les paramètres cinétiques des différentes étapes ont pu être déterminés et comparés favorablement aux résultats de travaux antérieurs.

La détermination de ces paramètres dans diverses configurations de flamme permettra de mettre en évidence l'importance relative des différentes étapes (nucléation, croissance...) sur la quantité de suie finale.

Cette méthode a pu être appliquée à un moteur Diesel expérimental possédant des accès optiques. Ainsi le diamètre des particules de suie a pu être mesuré in situ par une technique de diffusion de la lumière bien plus sensible à la taille que les méthodes basées sur le rayonnement propre ou l'extinction jusqu'alors appliquées. La mesure a pu être effectuée sur la quasi-totalité de la phase de combustion avec cependant deux limites :

- elle ne peut commencer qu'après disparition totale des gouttelettes de gazole du volume de mesure,
- elle s'achève lorsque l'oxydation des particules présentes réduit la taille et la concentration à des valeurs telles que l'intensité diffusée devient insuffisante.

Pour compléter cette étude, l'application de méthodes basées sur la mesure de l'atténuation d'un faisceau lumineux associées à la cinématographie rapide nous a permis d'avoir une information sur la distribution spatiale de la fraction volumique des particules de suie dans l'ensemble de la chambre de combustion de façon continue, à chaque degré vilebrequin. Par des mesures locales du même type (utilisant des capteurs optiques linéaires), nous avons pu mettre en évidence l'influence de la température de l'air à l'admission qui, en réduisant le délai d'auto-inflammation et la quantité d'air admise, entraîne une valeur maximale de la fraction volumique plus élevée.

Ces premières applications ont fait ressortir la possibilité d'évaluer la rapidité de la formation de suie au cours du cycle de combustion et de quantifier le phénomène de recombustion de ces particules. Elles pourront donc être étendues à une étude paramétrique plus large de l'influence des différentes conditions de fonctionnement du moteur.

ANNEXES

ANNEXE 1
Théorie de Mie

Les fonctions i_1 et i_2 définies pour la description de la théorie de Mie au § B-II-1-c s'expriment, en reprenant les notations de Kerker [1969], de la façon suivante :

$$i_1 = |S_1|^2 \quad \text{et} \quad i_2 = |S_2|^2$$

où

$$S_1 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[a_n \pi_n(\cos \theta) + b_n \tau_n(\cos \theta) \right]$$

$$S_2 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \left[a_n \tau_n(\cos \theta) + b_n \pi_n(\cos \theta) \right]$$

avec

$$a_n = \frac{\psi_n(\alpha) \psi'_n(\beta) - m \psi_n(\beta) \psi'_n(\alpha)}{\Sigma_n(\alpha) \psi'_n(\beta) - m \psi_n(\beta) \Sigma'_n(\alpha)}$$

$$b_n = \frac{m \psi_n(\alpha) \psi'_n(\beta) - \psi_n(\beta) \psi'_n(\alpha)}{m \Sigma_n(\alpha) \psi'_n(\beta) - m \psi_n(\beta) \Sigma'_n(\alpha)}$$

$$\alpha = \frac{\pi D}{\lambda} \quad ; \quad \beta = m \alpha$$

ψ_n et χ_n étant les fonctions de Ricatti-Bessel

$$\tau_n(\cos \theta) = \frac{P_n^{(1)}(\cos \theta)}{\sin \theta}$$

et τ_n et π_n étant définis par :

$$\Pi_n(\cos \theta) = \frac{d}{d\theta} (P_n^{(1)}(\cos \theta))$$

dans lesquelles $P_n^{(1)}$ est le polynôme de Legendre d'ordre n .

ANNEXE 2
Loi de Beer-Lambert

Les notations que l'on va utiliser sont celles du texte principal et sont rappelées sur le schéma de la figure AN-2-1.

Soit $d\Phi$ l'atténuation de la puissance du faisceau à l'abscisse z , d'après la définition de Q_{ext} on a :

$$d\Phi = - (N \cdot dV) \cdot \Phi \cdot \left[Q_{\text{ext}} \cdot \frac{(\pi D^2)}{4 S} \right]$$

d'où après intégration :

$$\ln \left(\frac{\Phi_t}{\Phi_o} \right) = - N \cdot L \cdot Q_{\text{ext}} \cdot \left(\frac{\pi \cdot D^2}{4} \right) = - L \cdot K_{\text{ext}}$$

ou encore

$$\frac{\Phi_t}{\Phi_o} = \exp \left(- \frac{N \cdot L \cdot Q_{\text{ext}} \pi D^2}{4} \right)$$

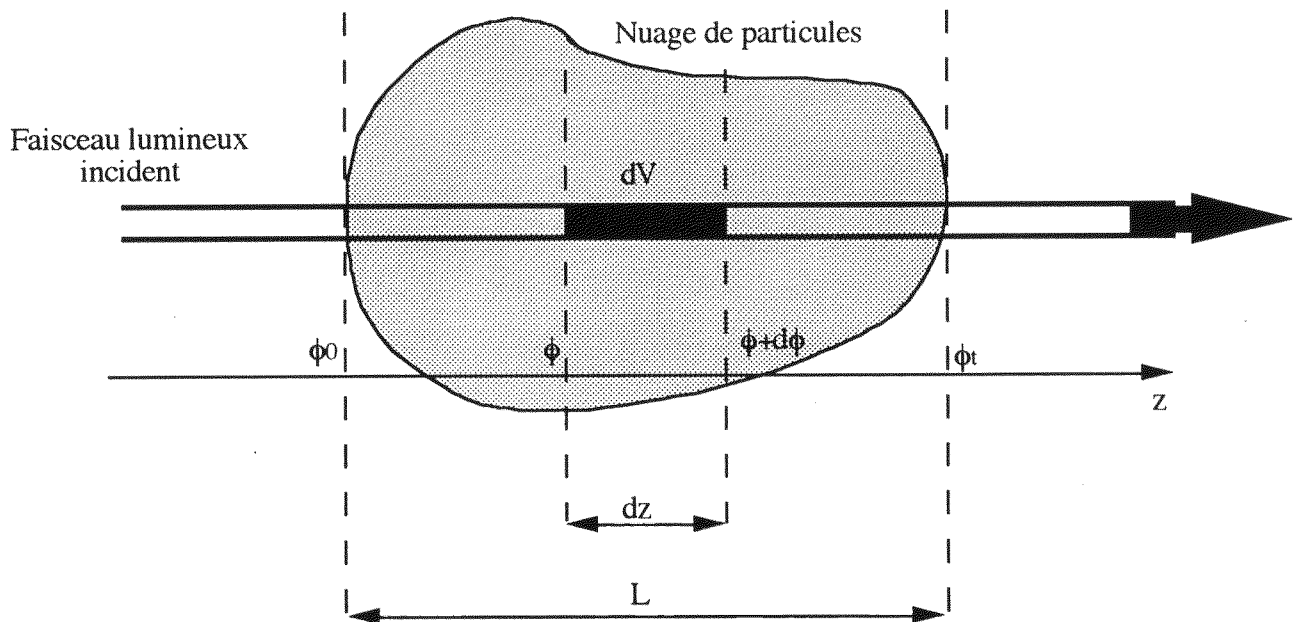


Figure AN-2-1 Atténuation progressive d'un faisceau lumineux par un nuage de particules

ANNEXE 3

Détection synchrone

Lors de la mesure de paramètres physiques, on est souvent confronté à des problèmes de signaux parasites qui viennent s'ajouter aux paramètres mesurés.

Parmi les solutions possibles, il existe celle de la détection synchrone. Cette méthode est basée sur l'extraction de l'amplitude d'un signal sinusoïdal noyé dans un bruit, qui peut être soit un bruit aléatoire, soit un bruit périodique, grâce à un signal de référence indiquant la phase et la fréquence et permettant un redressement suivi d'un filtrage.

Dans le cadre de ce travail nous avons développé un instrument électronique basé sur ce principe et nous l'avons appliqué au problème de la mesure de la lumière diffusée par les particules de suie dans les milieux en combustion.

Ce signal sinusoïdal peut être par exemple, la réponse d'un système linéaire à une excitation sinusoïdale ou le résultat de la modulation d'un signal continu d'amplitude très faible que l'on désire mesurer, comme le déséquilibre d'un pont de mesure dont on module la tension d'alimentation.

Représentons le signal sinusoïdal dont on veut mesurer l'amplitude par l'expression :

$$e(t) = V_0 \sin(2\pi f_0 t + \phi)$$

Nous supposons que l'on dispose d'un signal de référence de même fréquence :

$$s(t) = A \sin(2\pi f_0 t)$$

$e(t)$ est mélangé à un bruit $b(t)$ et le signal résultant à analyser est :

$$y(t) = e(t) + b(t)$$

Il s'agit donc d'extraire de $y(t)$ un signal à la fréquence f . Pour cela, on utilise la démodulation synchrone dont la détection synchrone n'est qu'un cas particulier.

Le but recherché est la connaissance de l'amplitude V_0 de $e(t)$. C'est la fonction d'intercorrélation de $y(t)$ avec $s(t)$ qui va nous le permettre.

En effet, celle-ci nous donne :

$$C_{ys}(\tau) = \frac{V_0 A}{2} \cos(2\pi f_0 \tau + \phi)$$

La fonction de corrélation $C_{ys}(t)$ entre $e(t)$ et $s(t)$ est périodique sinusoïdale, d'amplitude $\frac{V_0 A}{2}$, de fréquence f_0 dont la valeur à retard nul ($t = 0$) est :

$$C_{ys}(0) = \frac{V_0 A}{2} \cos \phi$$

Pour connaître l'amplitude V_0 de $e(t)$, il suffit donc de calculer $C_{ys}(0)$.

$$C_{ys}(0) = \frac{1}{T} \int_0^T e(t)s(t)dt$$

D'un point de vue pratique, un multiplieur analogique et un filtre passe-bas qui fait la moyenne des produits permettent d'obtenir ces résultats. Le signal $e(t)$ est bien extrait du bruit $b(t)$ puisque la moyenne due au bruit est faible devant celle due à $e(t)$ ($C_{ys}(0)$).

C'est ce procédé qu'on appelle "démodulation synchrone".

On peut au lieu de fonctions sinusoïdales, multiplier $y(t)$ par un signal carré en phase avec $s(t)$, par exemple la fonction signe de $s(t)$, que nous noterons $\text{sgn}(s(t))$. Ceci simplifie encore la réalisation du dispositif qui prend alors le nom de "détecteur synchrone" et dont la figure AN-3-1 donne un schéma simplifié.

Un générateur sinusoïdal injecte le signal $s(t)$ à l'entrée du système à étudier. La réponse du système à ce signal, entachée du bruit $b(t)$, constitue le signal de sortie $y(t)$, qui est envoyé à l'entrée de deux amplificateurs de gains $+1$ et -1 , à la sortie desquels on dispose de $+y(t)$ et $-y(t)$. Evidemment, si $y(t)$ a un niveau trop faible, on pourra choisir un gain plus élevé de ces amplificateurs pourvu qu'ils restent égaux et opposés. Deux portes analogiques G_A et G_B sont commandées l'une par le signal logique $\text{sgn}(s(t))$ pris à la sortie du générateur, l'autre par le signal complémentaire. La somme des signaux résultants est ensuite moyennée par un filtre passe-bas de constante de temps $\tau = RC$ à la sortie duquel on mesure le signal détecté V_D . En supposant que les portes G_A et G_B sont conductrices lorsque le signal de commande est égal à $+1$, on vérifie que l'on réalise bien la fonction désirée.

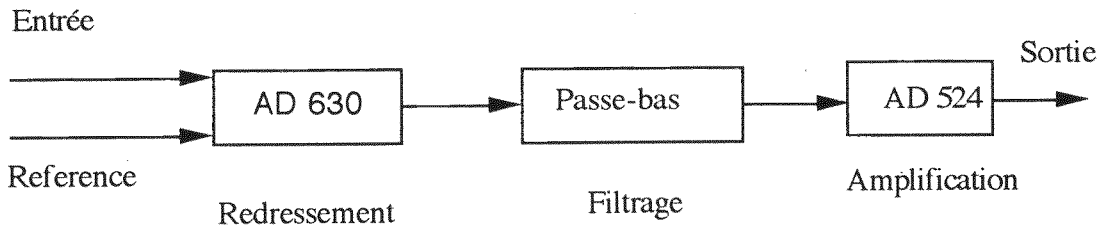


Figure AN-3-1 Schéma de principe de la détection synchrone

Supposons un signal théorique de la forme :

$$y(t) = V_0 \sin(2\pi ft + \phi)$$

Le signe du signal de référence, $s(t) = A \sin(2\pi f_0 t)$, s'écrit :

$$\text{sgn}(s(t)) = \frac{4}{\pi} \left\{ \sin(2\pi f_0 t) - \frac{1}{3} \sin(3 \cdot 2\pi f_0 t) + \dots + \frac{1}{2k+1} (-1)^k \sin[(2k+1)2\pi f_0 t] \right\}$$

d'où , avec $p(t) = y(t) \cdot \text{sgn}(s(t))$

$$p(t) = \frac{2V_0}{\pi} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{2k+1} (-1)^k \{ \cos(2\pi t[(2k+1)f_0 - f] - \phi) - \cos(2\pi t[(2k+1)f_0 + f] + \phi) \}$$

En supposant la constante de temps du filtre du premier ordre infinie, la tension détectée sera $V_D = \overline{p(t)}$. Dans ce cas f et f_0 ne sont pas simultanément nuls car la détection n'aurait alors pas de sens. Donc $(2k+1)f_0 + f \neq 0$ d'où

$$\overline{\cos(2\pi t[(2k+1)f_0 + f] + \phi)} = 0$$

Enfin $\overline{\cos(2\pi t[(2k+1)f_0 - f] - \phi)}$ sera différent de zéro pour $f = (2k+1)f_0$

Pour une telle valeur :

$$V_D = \frac{2V_0}{\pi} \frac{1}{2k+1} (-1)^k \cos \phi$$

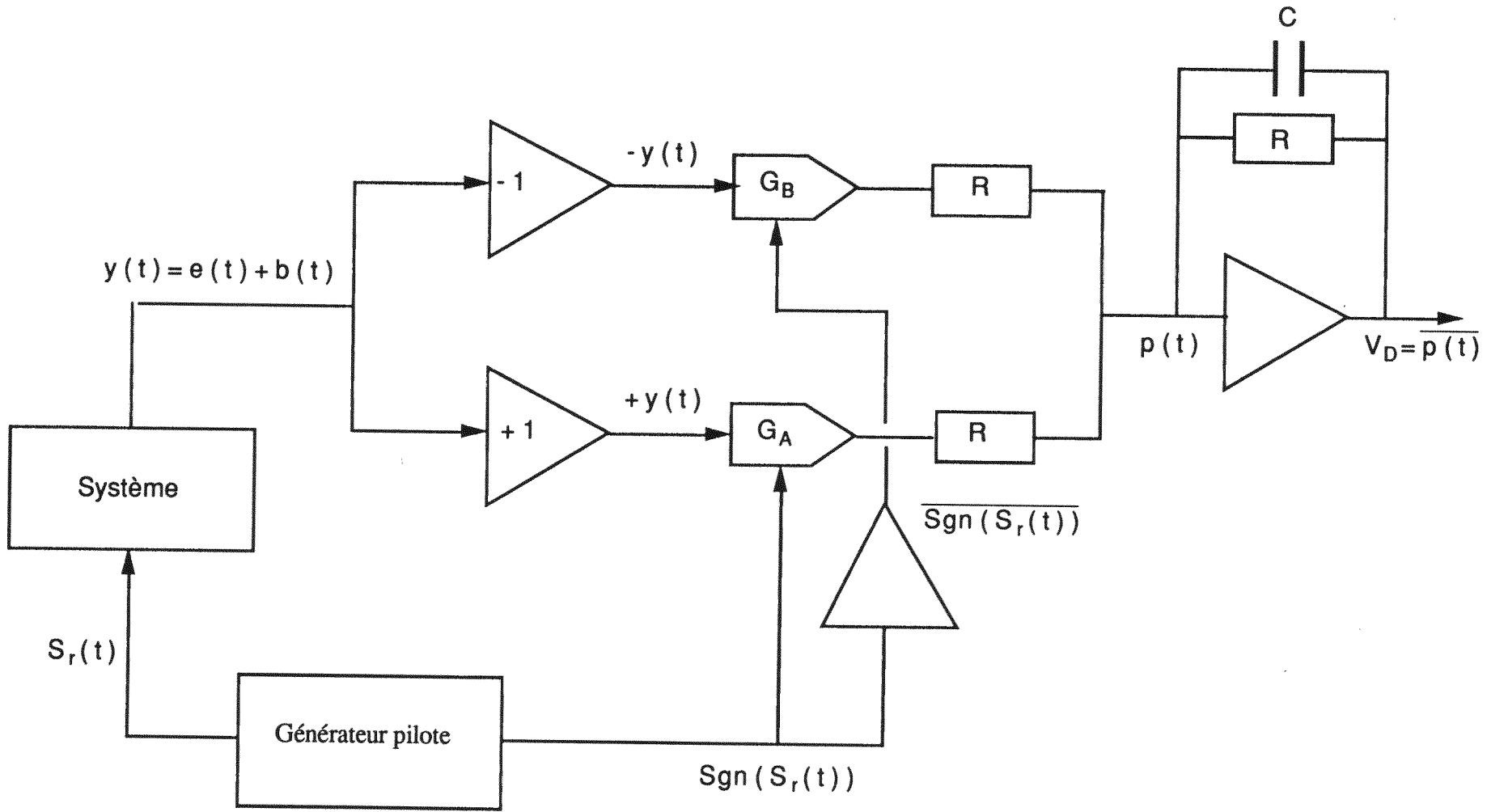
En particulier, si $f=f_0$, alors $V_D = \frac{2V_0}{\pi} \cos \phi$

En résumé, seul un signal d'entrée dont la fréquence est égale à f_0 ou à un de ses multiples impairs sera détecté. Comme seule la fréquence f_0 nous intéresse, on évite toute interférence que pourraient produire des bruits périodiques de fréquences égales à celles des harmoniques impairs de f_0 , en faisant précéder la détection synchrone d'un amplificateur sélectif centré sur f_0 dont la largeur de bande Δf est suffisamment faible pour éliminer les fréquences $3f_0, 5f_0, \text{etc...}$

Pour parfaire la réduction de bande, il suffira de ne transmettre à la détection synchrone que des fréquences voisines de f_0 . Ce sera le rôle de l'amplificateur sélectif qui précède celle-ci : il élimine les fréquences $3f_0, 5f_0, \text{etc...}$

On ne conserve donc en sortie que le bruit situé dans une bande centrée sur f_0 et que l'on peut rendre aussi étroite que l'on veut par le choix de t .

Figure AN-3-2 Schéma électronique de la détection synchrone



ANNEXE 4
Lois de probabilité

La distribution de probabilité du diamètre des particules de suie adoptée par différents auteurs n'est pas la même. Celle que nous avons adoptée dans ce travail est la distribution logarithmique d'ordre zéro proposé par Bonczyk [1979] :

$$P(D) = \frac{\exp - \left(\frac{[\ln(D) - \ln(D_m)]^2}{2\sigma^2} \right)}{\sqrt{2} \Pi D_m \sigma_o \exp \left(\frac{\sigma_o^2}{2} \right)}$$

où D_m = diamètre le plus probable
 σ_o = écart-type de la distribution

Nous représentons sur la figure AN-1 l'évolution pour différentes valeurs de D_m de la distribution ZOLD en fonction du diamètre.

Une autre loi de distribution a été utilisée par Newman et col. [1987], Pagni et col. [1978] ainsi que Lee et col. [1981] : $P(D) = a \cdot D^c \cdot e^{-bD}$ où a, b et c sont des paramètres de la distribution.

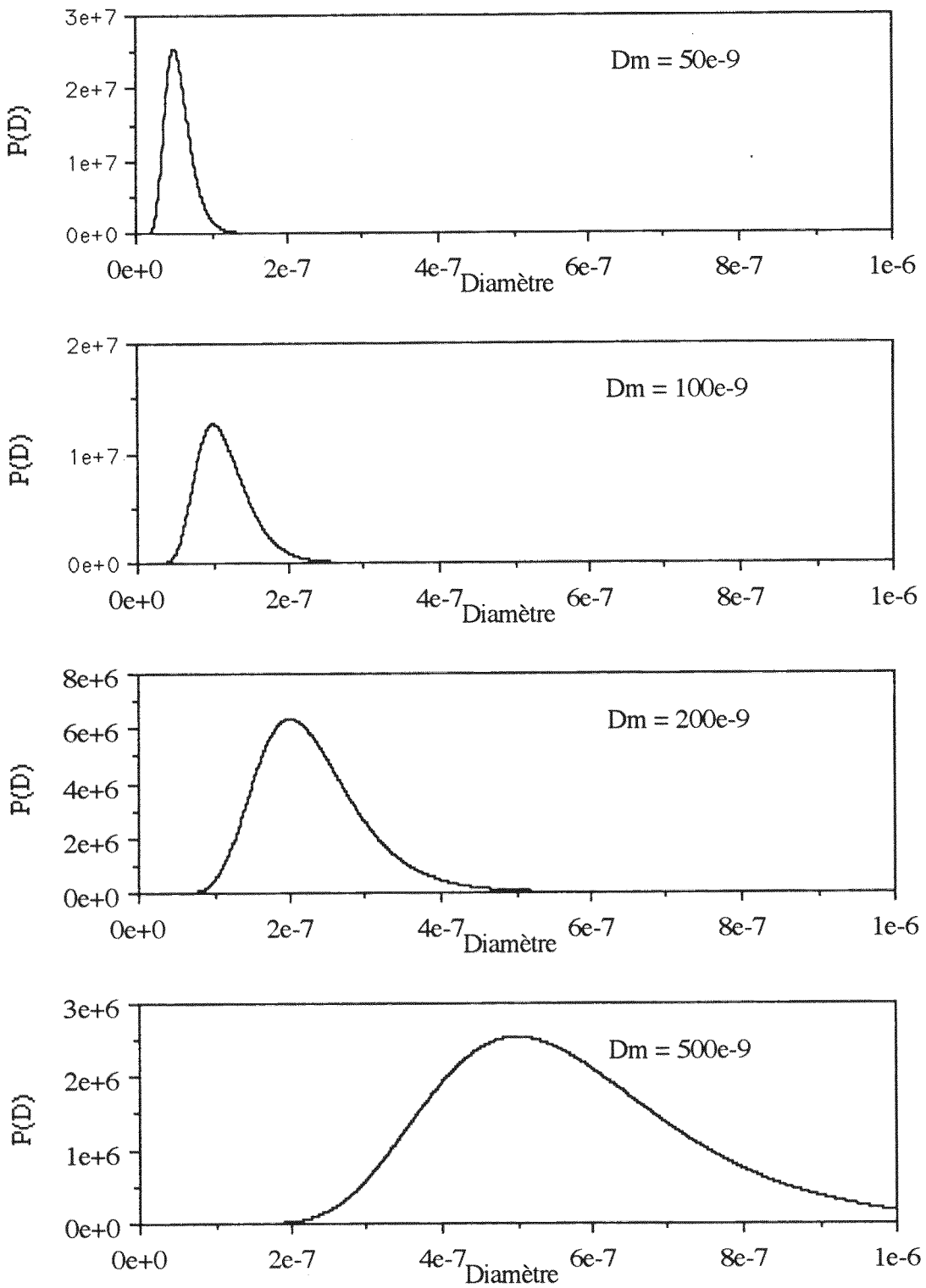


Figure AN-4-1 Evolution de la distribution logarithmique d'ordre zéro en fonction du diamètre

ANNEXE 5

Caractéristiques du moteur LDA-100 dans sa version modifiée [Monteiro, 1987]

<i>Paramètre</i>	<i>Propriété</i>
entraînement des soupapes	par arbre à cames en tête, à attaque directe et entraînement par courroie
soupape admission	diam. 25 mm
soupape échappement	diam. 25 mm
croisement des soupapes	nul
pompe à injection	Sigma CMS 2B 80L à deux pistons doseurs
injecteur	Bosch type DLLA P à trou unique
lubrification culasse	forcée par pompe électrique et circuit indépendants
refroidissement de la culasse	forcé par pompe à eau électrique indépendante
course	90 mm
alésage	100 mm

ANNEXE 6

Résolution de la pelure d'oignon

Il s'agit ici de donner la procédure mathématique qui permet de déterminer le coefficient d'extinction K_{ext} à partir de la transmission τ .

Soit une section de la flamme à une hauteur donnée et N_t le nombre de traversées de cette section par un faisceau lumineux. La flamme étant à symétrie axiale de révolution, considérons uniquement une moitié de celle-ci. Notons $j = 1$ à N_t les faisceaux lumineux traversant la flamme et $i = 1$ à N_t les anneaux concentriques à l'intérieur desquels passent ces faisceaux comme l'indique la figure AN-6-1.

Soit $K_{\text{ext}}(i)$ le coefficient d'extinction à l'intérieur de l'anneau i et $\tau(j)$ la transmission du faisceau j à travers la flamme :

$$\tau(j) = \ln \left(\frac{\phi_j}{\phi_0} \right)$$

Soit $L(i,j)$ la longueur du faisceau j à travers l'anneau i . Selon la loi de Beer-Lambert on a :

$$\tau(j) = -2 \cdot \sum_{i=1}^j K_{\text{ext}}(i) \cdot L(i, j)$$

La résolution de ce système d'équations linéaire peut se faire de la façon récursive suivante :

$$K_{\text{ext}}(1) = -\frac{1}{2} \cdot \tau(1) \cdot L(1, 1)$$

et pour $j = 2$ à N_t

$$K_{\text{ext}}(j) = -\frac{1}{2 \cdot L(j, j)} \cdot \left\{ \tau(j-1) - \tau(j) - 2 \cdot \sum_{i=1}^{j-1} K_{\text{ext}}(i) [L(i, j) - L(i, j-1)] \right\}$$

On peut ainsi déterminer $K_{\text{ext}}(j)$ pour $j = 1$ à N_t , à partir des valeurs (expérimentalement mesurées) de $\tau(j)$ pour $j = 1$ à N_t .

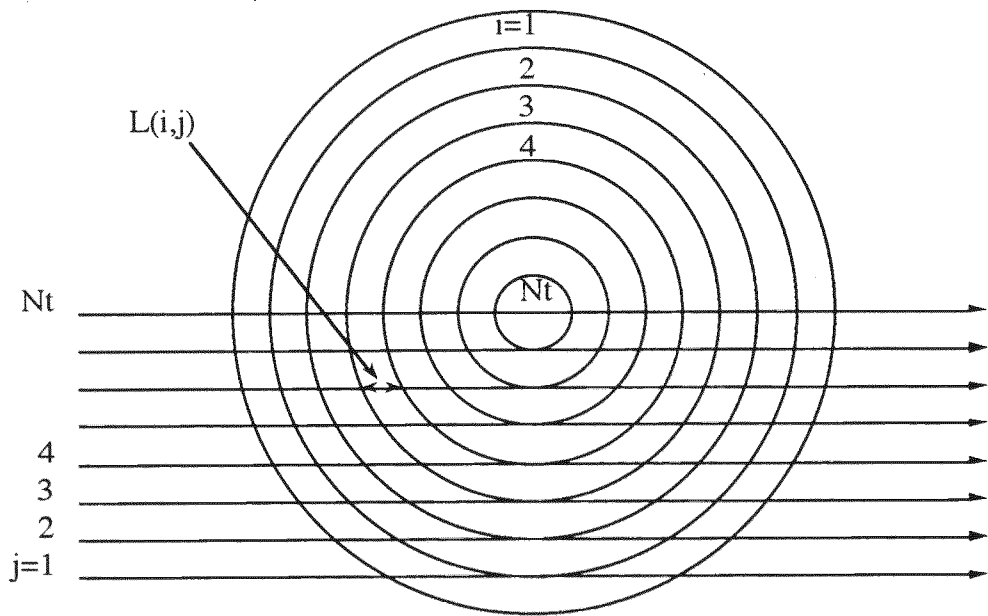


Figure AN-6-1 Illustration de la pelure d'oignon

BIBLIOGRAPHIE

- AOYAGI Y., KAMIMOTO T., MATSUI Y., MATSUOKA S., *A Gas Sampling Study on the Formation Processes of Soot and NO in a DI Diesel Engine*, SAE Paper 800254, (1980)
- AYACHI, N., MAHJOUBI, H., BRUN, M., *Etude Expérimentale des caractéristiques Radiatives d'une Flamme de Diffusion : Mesures Instantanée de la Température, de la Concentration et de la Taille des suies*, in : *Les Résultats Récents de Recherche en Matière d'Écoulement dans les Moteurs Alternatifs à Combustion Interne*, Journée d'Etudes de la SFT, 13 Juin (1990)
- BECKER H. A., YAMAZAKI S., *Soot Concentration Field of Turbulent Propane/Air Diffusion Flames*, 16th Symposium (International) on Combustion, pp. 681-691, (1976)
- BELMABROUK H., *Pyrométrie Optique à trois Couleurs*, Diplôme d'Etudes Approfondies, Ecole Centrale de Lyon, (1988)
- BERETTA F., CAVALIERE A., CIAJOLO A., D'ALESSIO A., LANGELLA C., DI LORENZO A., NOVIELLO C., *Laser Light Scattering, Emission/Extinction Spectroscopy and Thermogravimetric Analysis in the Study of Soot Behaviour in Oil Spray Flames*, 18th Symposium (International) on Combustion, pp. 1091-1096, (1981)
- BERETTA F., CAVALIERE A., D'ALESSIO A., *Soot and Pah Distributions in Oil Spray Flames, Inferred by elastic and Inelastic Laser Light Scattering*, 19th Symposium (International) on Combustion, pp. 1359-1267, (1982)
- BITTNER J. D., HOWARD J. B., *Composition Profiles and Reaction Mechanisms in a Near Sooting Premixed Benzene/Oxygen/Argon Flame*, 18th Symposium (International) on Combustion, (1977)
- BONCZYK P. A., *Measurement of Particulate Size by in Situ Laser Optical Methods : A Critical Evaluation Applied to Fuel-Pyrolized Carbon*, Combustion and Flame, N° 35, pp. 191-196, (1979)
- BROOME D., KHAN I.M., *The Mechanism of Soot Release from Combustion of Hydrocarbon Fuels*, in : *Air Pollution Control in Transport Engines*, Automotive Division, IME (Institution of Mechanical Engineering), pp.185, (1971)
- CALCOTE H. F., *Brief Communication*, Combustion and Flame, N° 71, pp. 105-106 (1989)
- CALCOTE H. F., *Mechanisms of soot nucleation in flames-a critical review*, Comb. Fl. 42, pp.215-242, (1981)
- CALCOTE H. F., OLSON D. B., KEIL D. G., *Are ions important in soot formation?*, Energy & Fuels 1988, 2, pp.494-504, (1988)
- CHIPPETT S., GRAY W. A., *The Size and Optical Properties of Soot Particles*, Combustion and Flame, N° 31, pp.149-159, (1978)
- D'ALESSIO A., CAVALIERE A., MENNA P., *Theoretical Models for the Interpretation of Light Scattering by Particles Present in Combustion Systems*, in : *Soot in Combustion Systems and its Toxic Properties*, Plenum Press, (1983)
- D'ALESSIO A., BERETTA F., CAVALIERE A., MENNA P., *Laser Light Scattering and Fluorescence in Fuel Rich Flames : Techniques and Selected Results*, in : *Soot in Combustion Systems and its toxic properties*, pp. 355-378, Plenum Press, New-York, (1983)

- D'ALESSIO A., DI LORENZO A., SAROFIM A. F., BERETTA F., MASI S., VENITTOZZI C., *Soot Formation in Methane-Oxygen Flames*, 15th Symposium (International) on Combustion, (1974)
- DALZELL W. H., SAROFIM A. F., *Optimistical Constants of Soot and Their Application to Heat Flux Calculations*, Transaction of the ASME, Vol.91, N°1, pp. 100-104, Février (1969)
- DONNET J.BVOET A., *Carbon Black*, in : *Physics, Chemistry and Elastomer Reinforcement*, Marcel Dekker Inc., (1976)
- DONNET J. B., LAHAYE J., *Burnout of Soot Particle*, in : *Soot in Combustion Systems and its Toxic Properties*, Plenum Press, New York, London, pp. 259-271, (1983)
- DU C. J., KITTELSON D. B., *Total cylinder sampling from a Diesel engine : Part III - Particle measurements*, SAE Paper 830243, (1983)
- DYER T. M., FLOWER W. L., *A Phenomenological Description of Particulate Formation During Constant Volume Combustion, Particulate Carbon Formation During Combustion*, Plenum Press, New York, London, (1981)
- ERICKSON W. D., WILLIAMS G. C., HOTTEL, H.C., *Light Scattering Measurements on Soot in a Benzene-Air Flames*, Combustion and Flame, N°8, pp. 127-132, (1963)
- FENIMORE C. P., JONES G. W., MOORE G. E., *Carbon Formation in Quenched Flat Flames at 1600 °K*, 6th Symposium (International) on Combustion, pp. 242-247, (1956)
- FLAMENT G., PAYNE R., ENGLAND G. C., *Analyse par diffraction laser de la taille des gouttelettes dans les jets de fuel pulvérisé*, dixièmes journées d'études sur les flammes, 19 et 20 mars 1980
- FLOWER W. L., BOWMAN C. T., *Soot Production in Axisymmetric Laminar Diffusion Flames at Pressures from One to Ten Atmospheres*, 21st Symposium (International) on Combustion, pp. 1115-1124, (1986)
- FLOWER W. L., BOWMAN C. T., *Soot Production in Axisymmetric Laminar Diffusion Flames at Pressures from One to Ten Atmospheres*, Annual Report of the Sandia Combustion Research, (1986)
- FLOWER W. L., FLOWER W. L., *Time and Space Resolved Measurements of Particulate Formation During Constant Volume Combustion*, Spring 1980 Technical Meeting, Central States Section, The Combustion Institute, Baton Rouge, LA (1980)
- FLOWER W. L., *Soot Particle Temperatures in Axisymmetric Laminar Ethylene-Air Diffusion Flames at Pressures up to 0.7 Mpa*, Combustion and Flame, N° 77, pp. 279-293, (1989)
- FLUZIN, G., *Modélisation d'un jet diphasique turbulent jusqu'à son auto-inflammation dans une enceinte à pression et température variables*, Thèse de Docteur, Ecole Centrale de Lyon, (1990)
- FOSTER P. J., HOWARTH C. R., *Optical Constants of Carbons and Coals in the Infrared*, Carbon, Pergamon Press, Vol. 6, pp. 719-729, (1986)
- GARO A., LAHAYE J., PRADO G., *Mechanisms of Formation and Destruction of Soot Particles in a Laminar Methane-Air Diffusion Flame*, 21th Symposium (International) on Combustion, pp. 1023-1031, (1986)
- GARO A., *Mécanismes de Formation et de Destruction de Particules de Carbone dans une Flamme de Diffusion Laminaire Méthane-Air*, Thèse de Docteur d'Etat Es Sciences, Physique, Université de Haute Alsace, (1984)
- GAYDON A. G., WOLFHARD H. G., *Flames - Their Structure Radiation and Temperature*, CHAPMAN AND HALL LTD, Third Edition Revised, (1970)

- GOUESBET G. GREHAN G., *Optical Particle Sizing, Theory and Practise*, Plenum Press, (1987)
- GOULDIN F. C., HALTHORE R. N., *Rayleigh scattering for density measurements in premixed flames*, Experiments in Fluids 4, pp.269-278, (1986)
- GRAHAM S. C., *The Collisional Growth of Soot Particles at High Temperatures*, 16th Symposium (International) on Combustion, pp 663-669, (1976)
- GRAHAM S. C., *The Refractive Indices of Isolated and of Aggregated Soot Particles*, Combustion Science and Technology, Vol. 9, pp. 159-163, (1974)
- GREEVES G., MEEHAN J. O., *Measurement of Instantaneous Soot Concentration in a Diesel Combustion Chamber*, CIMAC, pp. 73-81, (1975)
- GREEVES G., MEEHAN J. O., *Measurement of Instantaneous Soot Concentration in a Diesel Combustion Chamber*, Lucas Engineering Review, pp. 19-24, (1975)
- GREHAN, G., Thèse de Docteur, Rouen, (1986)
- HABIB Z. G., VERVISCH P., *Propriétés Radiatives des Suies de Combustion*, Revue Générale de Thermiques, N° 315-316, pp. 206-212, (1988)
- HAFIANI N., PRADO G., LAHAYE J., *Formation de Particules par Pyrolyse d'Hydrocarbures*, in : *La Combustion dans les Moteurs d'Automobile : Recherches et Developpements Recents*, pp. 225-232, (1988)
- HARRIS S. J., WEINER A. M., ASHCRAFT C. C., *Soot particle inception kinetics in a premixed ethylene flame*, Comb. Fl. 64, pp. 65-81, (1986)
- HARRIS S. J., WEINER A. M., *Determination of the Rate Constant for Soot Surface Growth*, Combustion Science and Technology, Vol. 32, pp.267-275, (1983)
- HAUPAIS A., *Etude Expérimentale sur Moteur de la Formation et de l'Oxydation des Suies*, in : *La Combustion dans les Moteurs d'Automobiles, Recherches et Developpements Récents*, Colloque du Groupement Scientifique Moteurs, Rueil-Malmaison, Eds. Technip, (5 novembre 1987)
- HAUPAIS A., GIRAUD A., *Etude de la Formation des Suies dans les Moteurs Diesel pour Véhicules Automobiles et Utilitaires*, in : *Moteurs Diesel pour Véhicules Automobiles et Utilitaires*, Communication du Congrès International , Ecole Centrale de Lyon, (13 et 14 mai 1987)
- HAYNES B. S., JANDER H., WAGNER H. G.G., *The Effect of Metal Additives on the Formation of Soot in Premixed Flames*, 17th Symposium (International) on Combustion (1978)
- HAYNES B.S., WAGNER H. Gg., *Soot Formation*, Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 7, N° 4, (1981)
- HEINRICH G., PRESCHER K., FINSTERWALDER G., *Procédé de Mesure Spectrométrique Utilisé pour l'Etude de la Formation de Suie dans un Moteur Diesel*, Rapport d'activité de l'Association Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen e. V.), ATZ, N° 84 (1982)
- HEYWOOD J. B., *Internal Combustion Engine Fundamentals*, McGraw-Hill Book Company, pp. 626-627, (1988)
- HIROYASU, KADOTA, SAE Paper 760129
- HOMANN K. H., STRÖFER E., WOLF H., *Growth of Electrically Charged Soot Particles in Flames*, In : Combustion Problems in Turbine Engines, AGARD Conference Proceedings N°353, (1983)(AGARD : Advisory Group for Aerospace Research & Development)
- HOWARD, J., B., WERSBORG, B., L., Faraday Symposia of the Chemical Society, 7, 109, (1973).

- HOWARTH C. R., FOSTER P. J., THRING M. W., *The Effect of Temperature on the Extinction of Radiation by Soot Particles*, Proceedings of the Third International Heat Transfer Conference, Vol. 5, pp. 122-128, (1986)
- JAGODA I. J., PRADO G., LAHAYE J., *An Experimental Investigation into Soot Formation and Distribution in Polymer Diffusion Flames*, Combustion and Flame, N° 37, pp. 261-274, (1980)
- JINNO H., FUKUTANI S., TAKAYA A., *Estimation of the Stability of Droplet as Nucleus of Soot Formation in Hydrocarbon Flames*, 16th Symposium (International) on Combustion, (1976)
- KADOTA T., HIROYASU H., FARAZANDEHMEHR A., *Soot Formation by Combustion of a Fuel Droplet in High Pressure Gaseous Environments*, Combustion and Flame, N° 29, pp. 67-75, (1977)
- KAMIMOTO T., BAE M. H., KOBAYASHI H., *A study on Soot Formation in Premixed Constant-Volume Propane Combustion*, Combustion and Flame, N° 75, pp. 221-228, (1989)
- KAMIMOTO T., KOBAYASHI H., MATSUOKA S., *A Big Size Rapid Compression Machine for Fundamental Studies of Diesel Combustion*, SAE Paper 811004, (1981)
- KENNEDY I. M., KOLLMANN W., CHEN J. Y., *A model for Soot Formation in a Laminar Diffusion Flame*, Combustion and Flame, N° 81, pp. 73-85, (1990)
- KENNEDY I. M., *The Evolution of a Soot Aerosol in a Counterflow Diffusion Flame*, Combustion and Flame, N° 68, pp. 1-16, (1987)
- KENT J. H., JANDER H., WAGNER G. G., *Soot Formation in a Laminar Diffusion Flame*, 18th Symposium (International) on Combustion, (1981)
- KENT J. H., WAGNER H. G., *Soot Measurements in Laminar Ethylene Diffusion Flames*, Combustion and Flame, N° 47, pp. 53-65, (1982)
- KERKER M., *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation*, ACADEMIC PRESS, (1969)
- KHAN I. M., GREEVES G., WANG C. H. T., *Factors Affecting Smoke and Gaseous Emissions from Direct Injection Engines and a Method of Calculation*, SAE Paper 730169, (1973)
- KHAN, I. M., GREEVES, G., WANG, C. H., T., "Factors Affecting Smoke and Gaseous Emissions from Direct Injection Engines and a Method of Calculation", SAE Paper, 730169, (1973).
- KHAN I. M., WANG C. H. T., LANGRIDGE B. E., *Coagulation and Combustion of Soot Particles in Diesel Engines*, Combustion and Flame, N° 17, pp. 409-419, (1971)
- KHATRI N. J., JOHNSON J. H., *Physical Size Distribution Characterization of Diesel Particulate Matter and the Study of The Coagulation Process*, SAE, (1979)
- KONTANI K., GOTO S., *A Basic Study on Soot Particle Measurement in Diesel Combustion Chambers by the Transmissive Light Extinction Method*, Bulletin of Mechanical Engineering Laboratory, N° 42 (1986)
- KONTANI K., GOTO S., *Measurement of Soot in a Diesel Combustion Chamber by Light Extinction Method and In-Cylinder Observation by Highspeed Shadowgraphy*, SAE Paper 831291, (1983)
- KONTANI K., GOTO S., *Soot Particle Measurement in Diesel Engine Combustion Chambers*, JSAE Review, Vol. 7, N° 3, (1986)

- KOUZELIS D., CANDEL S. M., ESPOSITO E., ZIKIKOUT S., *Particle sizing by laser light diffraction : improvements in optics and algorithms*, Journal of Particle Characterisation 4, (1987)
- KUNUGI M., JINNO H., *Determination of Size and Concentration of Soot Particles in Diffusion Flames by a Light-Scattering Technique*, 11th Symposium (International) on Combustion, (1967)
- LAHAYE J., ANDRE D., PRADO G., *Mécanisme de Formation des Suies et de leur Post-Oxydation - Cas Particulier de la Pyrolyse sous Pression*, 13ème Journées d'Études sur les Flammes, Paris, 18, 19 (novembre 1986)
- LAHAYE J., PRADO G., DONNET J. B., *Nucleation and Growth of Carbon Black Particles during Thermal Decomposition of Benzene*, Carbon, Pergamon Press, Vol. 12, pp. 27-35, (1974)
- LAHAYE J., PRADO G., *Morphology and Internal Structure of Soot and Carbon Blacks*, in : *Particulate Carbon Formation During Combustion*, Plenum Press - New York - London, (1981)
- LAPP M., HARTLEY D. L., *Raman scattering studies of combustion*, Combust Science and Technology, Vol. 13, pp. 199-210, (1976)
- LAURENDEAU N.M., *Temperature measurements by light scattering methods*, Prog. in Energy Combust. Sc., Vol. 14, pp.147-170, (1988)
- LEE K. B., THRING M. W., BEER J. M., *On the Rate of Combustion of Soot in a Laminar Soot Flame*, Combustion and Flame, N°6, pp. 137-145, (1962)
- LEE S. C., TIEN C. L., *Optical Constants of Soot in Hydrocarbon Flames*, 18th Symposium (International) on Combustion, (1981)
- LUO L., PIPHO M. J., AMBS J. L., KITTELSON D. B., *Particle Growth and Oxydation in a Direct-Injection Diesel Engine*, SAE Paper 890580, (1989)
- MATSUI Y., KAMIMOTO T., MATSUOKA S., *A Study on the Time and Space Resolved Measurement of Flame Temperature and Soot Concentration in a D.I. Diesel Engine by the Two-Color Method*, SAE Paper 790491, (1979)
- MATSUOKA S., KAMIMOTO T., *Spacial and Temporal Histories of Nitric Oxide and Soot Concentration in a Direct Injection Diesel Engine (Cylinder Sampling, Flame Temperature, Measurement and High Speed Photography)*, 13rd Symposium of JSME, Odawara-Japan, (1977)
- MATZING H., Wagner H. Gg., *Measurements about the Influence of Pressure on Carbon Formation in Premixed Laminar C₂H₄ - Air Flames*, 21th Symposium (International) on Combustion, pp. 1047-1055, (1986)
- MCARRAGHER J. S., TAN K. J., *Soot Formation at High Pressure : a Literature Review*, Combustion Science and Technology, Vol. 5, pp. 257-261 (1972)
- MCFARLANE J. J., HOLDERNES F. H., WHITCHER F. S. E., *Soot Formation Rates in Premixed C₅ and C₆ Hydrocarbon-Air Flames at Pressures up to 20 Atmospheres*, Combustion and Flame, N°8, pp. 215-229, (1964)
- MIE G., *Beitrage zur Optik Truber Medien. Speziell Kolloidaler Metallosungen*, Annalen der Physik 3, pp. 377-445, (1908)
- MILLER J.H., MALLARD W. G., SMYTH K. C., *The observation of laser-induced visible fluorescence in sooting diffusion flames*, Comb. Fl. 47, pp.205-214, (1982)
- MITCHELL, R., E., SAROFIM, A., F., CLOMBURG, L., A., Comb. Fl., 37, pp. 227-244, (1980).

- MONTEIRO L.F., *Etude Phénoménologique de la Phase Initiale de la Combustion dans les Moteurs Diesel*, Rapport Interne, Laboratoire de Machines Thermiques, Ecole Centrale de Lyon, (1987)
- MULARZ E., *Detailed fuel spray analysis techniques*, AGARD Conf. Proc. n°353, (1983)
- MULLER-DETHLEFS, K., *Optical studies of soot formation and the addition of peroxides to flames*, Thesis, Imperial College, London, (1979).
- NAGLE J., STRICLAND-CONSTABLE R. F., *Oxidation of Carbon between 1 000 - 2 000 °C*, Proceeding of the Fifth Conference on Carbon, (1962)
- NEOH K. G., HOWARD J. B., SAROFIM A. F., *Soot Oxidation in Flames*, in : *Particulate Carbon Formation During Combustion*, Plenum Press, New York, London, (1981)
- NEOH K. G., "Soot Burnout in Flames", Sc. D. , MIT, (1980).
- NEWMAN J. S., STECIAK J., *Characteristion of Particulates from Diffusion Flames*, Combustion and Flame, N° 67, pp. 55-64, (1987)
- NISHIDA O., MUKOHARA S., *Optical Measurement on Soot Particle in a Non-Steady Diffusion Flames*, SAE Paper 841079, (1984)
- NISHIDA O., OMUKOHARA S., *Optical Measurements of Soot Particles in a Laminar Diffusion Flame*, Combustion Science and Technology, Vol. 35, pp. 157-173, (1983)
- ONUMA Y., OGASAWARA M., INOUE T., *Further Experiments on the Structure of a Spray Combustion Flame*, 16th Symposium (International) on Combustion, (1976)
- ONUMA Y., OGASAWARA M., *Studies on the Structure of a Spray Combustion Flame*, 15th Symposium (International) on Combustion, (1974)
- PAGNI P. J., BARD S., *Particulate Volume Fractions In Diffusion Flames*, 17th Symposium (International) on Combustion, (1978)
- PALMER H., B., CULLIS C., F., in : *Chemistry and physics of Carbon*, Ed. WALKER P., L., (1965)
- PARK C., APPLETON J. P., *Shock-Tube Measurements of Soot Oxidation Rates*, Combustion and Flame, N° 20, pp. 369-379, (1973)
- PENNER S. S., WANG C. P., BAHADORI M.Y., *Laser diagnostics applied to combustion systems*, 20th symp. (intl) on combustion, pp. 1149-1176, (1984)
- PRADO G., LAHAYE J., *Physical Aspects of Nucleation and Growth of Soot Particles, Particulate Carbon Formation During Combustion*, Plenum Press, New York, London (1981)
- PRADO G. P., LEE M. L., HITES R. A., HOULT D. P., HOWARD J. B., *Soot and Hydrocarbon Formation in a Turbulent Diffusion Flame*, 16th Symposium (International) on Combustion (1976)
- RADCLIFFE S. W., APPLETON J. P., *Shock-Tube Measurements of Carbon to Oxygen Atom Ratios for Incipient Soot Formation with C₂H₂, C₂H₄ and C₂H₆ Fuels*, Combustion Science and Technology, Vol. 3, pp. 255-262, (1971)
- ROPER F. G., SMITH C., CUNNINGHAM A. C., *The Prediction of Laminar Jet Diffusion Flame Sizes : Part II. Experimental Verification*, Combustion and Flame, N° 29, pp. 227-234, (1977)
- ROSE L. S., McDONALD G. E., *Mechanism of Smoke Formation in Diffusion Flames*, 5th Symposium (International) on Combustion, (1954)

- SANTORO R. J., SEMERJIAN H. G., DOBBINS R. A., *Soot Particle Measurements in Diffusion Flames*, Combustion and Flame, N° 51, pp. 203-218, (1983)
- SENFTLEBEN H. BENEDICT F. Ann. Phys. (Leipzig) 54,65 (1918)
- SMITH G. W., *Kinetic Aspects of Diesel Soot Coagulation*, in : Soot in Combustion Systems and its Toxic Properties, Plenum Press, (1983)
- SMITH J. R., *Turbulent flame structure in homogeneous-charge engine*, SAE Paper 820043, (1982)
- SMITH O. I., *Fundamentals of Soot Formation in Flames with Application to Diesel Engine Particulate Emissions*, Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 7, N° 4, (1981)
- STEPOWSKI D., *Mesures par fluorescence laser en combustion*, Journées d'études du 13 janvier 1988 de la SFT, (1988)
- STULL V. R., PLASS G. N., *Emissivity of Dispersed Carbon Particles*, Journal of the Optical Society of America, Vol. 30, n° 2, pp. 121-129, (1960)
- TESNER P. A., SNEGIRIOVA T. D., KNORE V. G., *Kinetics of Dispersed Carbon Formation*, Combustion and Flame, N° 17, pp. 253-260, (1971)
- TESNER P. A., TSYBULEVSKII A. M., Combustion and Flame, N°11, pp. 227, (1967)
- TESNER P. A., TSYGANKOVA E. I., GUILAZETDINOV L. P., ZUYEV V. P., LOSHAKOVA G. V., *The Formation of Soot from Aromatic Hydrocarbons in Diffusion Flames of Hydrocarbon-Hydrogen Mixtures*, Combustion and Flame, N° 17, pp. 279-285, (1971)
- URNS S. R., LOVETT J. A., SOMMER III H. J., *Visualization of Soot Zones in Turbulent Diffusion Flames*, Combustion and Flame, N° 77, pp. 405-409, (1989)
- VANNOBEL F., NAZIH A., WEILL M. E., *Size and Weight Concentration Measurements of Soot and Particles on a Diesel Car Exhaust during a Normalized, 1ère Section Technique : Groupe Motopropulseur, SIA n° 90089*, (1990)
- WAGNER H. GG., *Soot Formation in Combustion*, 17th Symposium (International) on Combustion, (1978)
- WAGNER H. Gg., *Soot Formation-An Overview*, in : *Particulate Carbon Formation During Combustion*, Plenum Press, New York, London, (1981)
- WANG P., *Laser applications to turbulent reactive flows; Density measurement by resonance absorption and resonance scattering techniques*, Comb. Sc. and tech., Vol. 13, pp. 211-227, (1976)
- WERSBORG B. L., HOWARD J. B., WILLIAMS G. C., *Physical Mechanisms in Carbon Formation in Flames*, 14th Symposium (International) on Combustion, pp. 929-940, (1973)
- WERSBORG B. L., *Physical Mechanisms of Carbon Formation in Flames*, Sc. D. Thesis, MIT, (1968)
- WERSBORG B. L., YEUNG A. C., HOWARD J. B., *Concentration and Mass Distribution of Charged Species in Sooting Flames*, 15th Symposium (International) on Combustion, pp. 1439-1448, (1974)
- WHITEHOUSE N. D., UHUNMWANGHO S. O., *The development of some gaseous products during Diesel engine Combustion*, SAE Paper 800028, (1980)
- WRIGHT F. J., *The Formation of Carbon Under Well -Stirred conditions*, 12th Symposium (International) on Combustion, (1969)

XU H., MYERS P. S., UYEHARA O. A., *In-Cylinder Measurement of Particulate Number Density and Size*, SAE Paper 820462, (1982)

AUTORISATION DE SOUTENANCE

Vu les dispositions de l'arrêté du 5 Juillet 1984, modifié par l'arrêté du 21 Mars 1988 et l'arrêté du 23 Novembre 1988,

Vu la demande du Directeur de Thèse

Mr M. BRUN Professeur - Département. Machines Thermiques - ECL,

et les rapports de

Mr A. HAUPAIS Directeur Centre de Recherche en Machines Thermiques
- DARDILLY (69),

Mr J. LAHAYE Directeur Centre de Recherche sur la Physico-Chimie
MULHOUSE (68),

Monsieur AYACHI Naceur

est autorisé à soutenir une thèse pour l'obtention
du titre de DOCTEUR

Spécialité : TRANSFERTS THERMIQUES

Fait à Ecully, le 11 juillet 1991

P/Le Directeur de l'E.C.L.
Le Directeur
de l'Administration de la
Recherche



F. LEBOEUF

