

THÈSE DE DOCTORAT
UNIVERSITÉ PARIS OUEST - NANTERRE LA DÉFENSE

École Doctorale 139 : Connaissance, Langage, Modélisation
Spécialité : Énergétique et Génie des Procédés

Laboratoire d'Énergétique, de Mécanique et d'Électromagnétisme

Présentée par

Jérémy LEBEDINSKY

**DÉTERMINATION DES CHAMPS DE
TEMPÉRATURE ET DE CONCENTRATION
PAR SPECTROSCOPIE DANS UNE COMBUSTION**

Soutenue le 11 Décembre 2013 devant le jury composé de :

Pr.	Georges DESCOMBES	Président du Jury	Conservatoire National des Arts et Métiers
Pr.	Yannick BAILLY	Rapporteur	Université de Franche-Comté
Pr.	Philippe GUIBERT	Rapporteur	Université de Pierre et Marie Curie
Pr.	Philippe HERVÉ	Directeur scientifique	Université de Paris Ouest
MCf.	Vincent PINA	Co-Directeur scientifique	Université de Paris Ouest
Pr.	Bruno SERIO	Examineur	Université de Paris Ouest
Ing.	Jean-Pierre MINARD	Invité	MBDA

Table des matières

Remerciements	vii
Nomenclature	ix
Introduction	1
I Rappels sur les méthodes de mesure de température	7
Introduction	9
1 Les mesures intrusives	9
1.1 Les sondes à aspiration	9
1.2 Les thermocouples	10
1.3 Sondes en couches minces	13
1.4 Les fibres optiques	13
1.5 Tableau récapitulatif des méthodes intrusives	15
2 Les mesures non-intrusives	16
2.1 Les méthodes actives	16
2.1.1 Mesure par diffusion Rayleigh, diffusion élastique	16
2.1.2 Les thermomètres à ultrasons	17
2.1.3 Mesure par diffusion Raman spontanée (DRS), diffusion in- élastique	18
2.1.4 Mesure par diffusion Raman anti-Stokes Cohérente (DRASC)	19
2.1.5 Mesure par Fluorescence induite par Laser (LIF)	20
2.1.6 Mesure par la méthode de Kurlbaum (disparition de raies)	22
2.1.7 Mesure par LIDAR (Light Detection and Ranging)	24
2.2 Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non intrusives actives	26
2.3 Les méthodes passives	27
2.3.1 La pyrométrie	27
2.3.2 Méthode de mesure par spectroscopie	27
2.3.3 Spectroscopie d'émission	28
2.3.4 Spectroscopie d'absorption	29
2.3.5 Couplage entre une spectroscopie d'absorption et d'émission	30
2.4 Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non-intrusives passives	31
Conclusion	32

II	Rappels théoriques sur le rayonnement thermique et la combustion	35
1	Le rayonnement thermique	37
1.1	Nature et définition du rayonnement thermique	37
1.2	Rayonnement des corps opaques	38
1.2.1	Rayonnement d'une source élémentaire dans l'espace	39
1.2.2	Grandeurs radiométriques spectrales	40
1.2.3	Définition du Corps Noir	40
1.2.4	Luminance du Corps Noir	41
1.2.5	Rayonnement des corps réels	42
1.2.6	Réception d'un rayonnement par un corps réel	42
1.2.7	Relation entre émission et absorption : la loi de Kirchhoff	44
1.3	Rayonnement dans un milieu transparent	45
1.4	Rayonnement dans un milieu semi-transparent	46
1.4.1	Absorption du rayonnement en milieu semi-transparent	47
1.4.2	Gain du rayonnement en milieu semi-transparent	47
1.4.3	Équation du transfert radiatif (E.T.R)	48
1.4.4	Transmission d'une colonne de gaz	50
2	Spectroscopie moléculaire des gaz dans le proche infrarouges	51
2.1	Origine des spectres infrarouges	51
2.1.1	Les modes d'énergie d'une molécule	51
2.1.2	Les modes fondamentaux de vibration	52
2.1.3	Énergie vibrationnelle	52
2.1.4	Énergie rotationnelle	53
2.2	Positions spectrales des raies de l'eau	54
2.2.1	Les modes de vibration	54
2.3	Intensité d'absorption des raies	54
2.3.1	Loi de distribution de Boltzmann	54
2.3.2	Émission et absorption d'un photon par une molécule (Coefficient d'Einstein)	55
2.3.3	Expression de l'intensité d'absorption	57
2.4	Profils des raies	57
2.4.1	L'élargissement naturel	57
2.4.2	L'élargissement par collisions	58
2.4.3	L'élargissement Doppler	58
2.4.4	Profil de Voigt	59
3	Rappels sur la combustion	60
3.1	Les différents types de flamme	60
3.2	Équation de combustion d'un composé carboné ou non	62
3.3	Détermination de la température adiabatique de flamme [1]	62
III	Validation expérimentale du spectre de la vapeur d'eau	67
1	Introduction	69
2	Modélisation des coefficients d'absorption monochromatiques de la vapeur d'eau	69
2.1	Présentation de la base de données spectroscopiques HITRAN	70
2.2	Intensité d'absorption des raies	71
2.3	Profils des raies	72
2.3.1	Paramètres d'élargissement du profil Lorentzien	72
2.3.2	Profil de Voigt	72

	2.3.3	Calcul des coefficients d'absorption monochromatiques . . .	73
3		Dispositif expérimental	75
	3.1	Description générale	75
	3.2	Enceinte de combustion	76
	3.3	Accès optique : les hublots	77
	3.4	Capteurs de pression	78
	3.5	Système d'acquisition de données	79
	3.6	Élément dispersif : spectromètre à réseau	79
	3.6.1	Rappels théoriques sur les spectromètres à réseau	80
	3.6.2	Caractéristiques de notre spectromètre à réseau : SOPRA UHRS F1150	82
	3.7	Détection	85
	3.7.1	Caractéristiques générales de la camera	85
	3.7.2	Efficacité quantique de la camera Ln/CCD	86
	3.7.3	Temps d'intégration du signal et fréquence d'acquisition . . .	87
	3.8	Principe de l'étalonnage des mesures	88
	3.8.1	Lampe étalon	88
	3.8.2	Calibration spectrale	89
	3.8.3	Calibration radiométrique	91
	3.9	Détermination de la fonction d'appareillage	92
	3.9.1	Définition	92
	3.9.2	Détermination de la fonction d'appareillage	93
4		Présentation des mesures	95
	4.1	Méthodologie de traitement	95
	4.2	Répétabilité des mesures	96
	4.3	Présentation de quelques mesures : effet de la pression totale, effet de la température	97
	4.4	Comparaison entre les mesures et les résultats du modèle de rayonnement	99
	4.4.1	Récapitulatif des mesures d'émission sur les spectres de la vapeur d'eau	101
	4.4.2	Lois d'évolution du spectre d'émission de la vapeur d'eau . .	102
5		Programme d'inversion des mesures en émission	105
	5.1	Calculs approchés des coefficients d'absorption monochromatiques . .	107
	5.2	Résolution du problème inverse	107
	5.2.1	Paramétrisation	109
	5.3	Généralités sur les problèmes inverses	111
	5.4	Exemple d'inversion d'une mesure en émission sur une flamme H_2/O_2 .	113
6		Conclusion	116
IV Validation expérimentale du système LIDAR et du couplage émission/rétrodiffu- sion			119
1		Banc de rétrodiffusion	121
	1.1	Calcul du nombre de photons rétrodiffusés	121
	1.1.1	Estimation du nombre de photons rétrodiffusés dans le cas d'un Lidar élastique	121
	1.1.2	Influence de l'absorption	123
	1.1.3	Présentation des résultats aux longueurs d'onde d'intérêt dans le cas d'un Lidar rétrodiffusion élastique	124

1.1.4	Estimation du nombre de photons rétrodiffusés dans le cas d'un Lidar Dial	127
1.1.5	Aspects temporels	129
1.2	Présentation du matériel de détection et du matériel d'excitation	130
1.2.1	Caméra STREAK ou caméra à balayage de fente modèle SC-10 OPTRONIS	130
1.2.2	Laser accordable en fréquence ou Laser O.P.O EKSPLA PG 401	131
2	Réalisation de mesures sur le banc de rétrodiffusion	132
2.1	Mesure en rétrodiffusion	133
2.1.1	Mesure d'une flamme verticale de prémélange H_2/Air	133
2.1.2	Mesure d'une flamme inclinée H_2/Air	135
2.1.3	Mesure d'une flamme de méthane sur un brûleur rampe linéaire	136
2.2	Programme d'inversion des mesures en rétrodiffusion	137
2.2.1	Principe de l'inversion des mesures en rétrodiffusion	137
2.2.2	Résultat de l'inversion en rétrodiffusion des différentes flammes étudiées au paragraphe 2.1	138
2.3	Couplage des mesures en émissions avec les mesures en rétrodiffusion	141
2.3.1	Principe du couplage émission/rétrodiffusion	141
2.3.2	Couplage émission/rétrodiffusion sur un brûleur rampe linéaire	142
2.3.3	Couplage émission/rétrodiffusion sur une turbine JetCat P100RX145	
	Conclusions et perspectives	155
	Bibliographie	a
	Table des figures	j
	Liste des tableaux	k

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Laboratoire d’Énergétique, Mécanique et Electromagnétisme (LEME) de l’Université Paris Ouest Nanterre.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur Philippe Hervé, mon directeur de thèse de m’avoir accueilli au sein du laboratoire et d’avoir accepté d’encadrer ces travaux de recherche. Je tiens également à remercier Monsieur Vincent PINA Maître de conférence HDR qui a co-dirigé cette thèse pour ses conseils et échanges que nous avons eus au cours de ces travaux.

Monsieur le Professeur Georges DESCOMBES du Conservatoire National des Arts et Métiers m’a fait l’honneur de présider le jury de thèse. Tous mes remerciements vont à Messieurs les Professeurs Yannick BAILLY et Philippe GUIBERT pour avoir accepté d’être rapporteurs de ce mémoire et pour les conseils et les discussions que nous avons eues. Tous mes remerciements également à Monsieur le Professeur Bruno SERIO pour avoir examiné avec grande attention ce travail. Monsieur Jean-Pierre MINARD responsable Propulsion Statoréacteur chez MBDA, nous a accueilli pour des expériences sur statoréacteur sur le site de Bourges et a suivi avec attention l’évolution des travaux, je l’en remercie.

Je tiens également à remercier l’ensemble des personnels du Pôle Scientifique et Technologique de Ville d’Avray pour leur disponibilité et leur contribution à l’amélioration de mes bancs expérimentaux. Je remercie également l’ensemble du laboratoire pour les bons moments partagés, notamment Robin CONSEIL et Nicolas RAMBURE pour leur savoir faire et leurs nombreuses idées pendant ces trois années, ainsi que Julien-Pierre OFFRET pour son aide et sa contribution précieuse au banc de test de signaux rétrodiffusés et aux mesures couplées.

Mes pensées affectueuses à mes parents, ma famille et mes amis pour leur soutien et leur présence tout au long de mes études. Enfin, je remercie Caroline pour sa compréhension, sa présence et son soutien durant ces années de thèse.

Nomenclature

Constantes physiques

c_0	célérité de la lumière dans le vide	$2,9979 \cdot 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$
h	constante de Planck	$6,626 \cdot 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$
k_B	constante de Boltzmann	$1,3806 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$
N_a	nombre d'Avogadro	$6,0221 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
R	constante des gaz parfaits	$8,3145 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

Paramètres géométriques

x	variable d'espace	cm
V	volume	cm^3
Δ	direction	sans unité (s.u.)
Ω	angle solide	sr
A	constante de calibration du système	s.u.
L	longueur	m
d	épaisseur de la couche de gaz	m
$\frac{dS}{d\Omega}$	section efficace différentielle	$\text{cm} \cdot \text{sr}^{-1}$

Paramètres thermodynamiques

C	concentration	$\text{molécules} \cdot \text{cm}^{-3}$
M	masse molaire	$\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$
T	température	K
T_0	température de référence	K
P_{Tot}	pression totale	bar
X	fraction molaire	s.u.
n	nombre de mol	mol
cp	capacité thermique à pression constante	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
$\Delta_r H^0$	enthalpie de formation dans les conditions standard	$\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$
ΔH	variation d'enthalpie	J
U	énergie interne	J

Paramètres radiatifs

$M(\sigma)$	émittance	$\text{W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{cm}$
$L_{\sigma T}^{\circ}$	luminance du corps noir	$\text{W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{cm}$
L_m	luminance émise	$\text{W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{cm}$
$d\phi^e(\theta, \varphi)$	flux énergétique émis	Watt
$K_{\sigma}(\sigma, T, C, P_{Tot})$	coefficient d'absorption monochromatique	cm^{-1}
ε_{σ}	facteur d'émission	s.u.
λ	longueur d'onde	m
ν	fréquence	Hz
τ_{σ}	facteur de transmission	s.u.
ρ_{σ}	facteur de réflexion	s.u.
α_{σ}	facteur d'absorption	s.u.
σ	nombre d'onde	cm^{-1}

Paramètres spectroscopiques

A_{fi}	coefficient d'Einstein d'émission spontanée	s^{-1}
B_{if}	coefficient d'Einstein d'absorption induite	$\text{cm}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-2}$
B_{fi}	coefficient d'Einstein d'émission stimulée	$\text{cm}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{s}^{-2}$
E_i	énergie du niveau inférieur de la transition	cm^{-1}
$f_D(\sigma - \sigma_0, \gamma_D)$	profil Doppler	cm
$f_L(\sigma - \sigma_0, \gamma_L)$	profil Lorentzien	cm
f_V	profil de Voigt	cm
g	degré de dégénérescence	s.u.
I_a	abondance isotopique	s.u.
$Q_{Tot}(T)$	fonction de partition totale	s.u.
$S_{\sigma}^N(T)$	intensité d'absorption	$\text{cm}^2 \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{molécules}^{-1}$
γ_D	largeur à mi-hauteur du profil Doppler	cm^{-1}
γ_L	largeur à mi-hauteur du profil Lorentzien	cm^{-1}
η_{21}	rendement de fluorescence	s.u.
$\sigma(\lambda)$	section efficace de diffusion	$\text{cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$
$\beta(x)$	coefficient de diffusion	cm^{-1}

Introduction

Le sujet de ce mémoire de thèse est la détermination des champs de température et de concentration par montage optique dans les machines de combustion. Il s'inscrit dans le cadre d'un projet nommé REI-CELEP (Recherche Exploratoire et Innovation - Caractérisation par Émission et Lidar d'Écoulements de Propulseurs) en collaboration avec MBDA, l'ONERA ainsi que le laboratoire FEMTO-ST de l'Université de Franche-Comté et le laboratoire LEME de l'Université Paris Ouest Nanterre La Défense porteur du projet.

Les premiers moteurs datent du XVIII^e siècles. Ces premiers moteurs étaient des moteurs à combustion externe qui transformaient l'énergie thermique de la vapeur d'eau issue d'une chaudière en énergie mécanique. Ce fut la première transformation d'énergie thermique en énergie mécanique. Les premiers travaux sur la vapeur d'eau datent de l'antiquité (1^{er} siècle après JC) avec notamment Héron d'Alexandrie qui a conçu et construit la première machine à vapeur : une éolipyle considérée à l'époque comme un jouet.



FIG. 1 – L'éolipyle d'Héron d'Alexandrie.

La première machine à vapeur roulante a été réalisée de nombreux siècles plus tard au XVIII^e siècles par Joseph Cugnot qui pendant qu'il servait dans l'armée souhaitait améliorer la mobilité des canons qui étaient à l'époque tractés par des chevaux. Il eut alors l'idée grâce notamment aux travaux de Denis Papin et James Watt (soupape, piston, chambre de condensation) de construire un fardier à vapeur. La machine est constituée à l'avant d'une énorme marmite sous pression dans laquelle on brûle du bois pour chauffer de l'eau. Le moteur est composé de la machine à vapeur et de deux cylindres verticaux qui entraînent une unique roue motrice. La

machine à vapeur est alimentée par transmission de la vapeur sous pression. Les points faibles de ce fardier était la mise en route (montée en température de l'eau) et le freinage car le fardier pèse environ 8 tonnes en charge. Un autre point limitant est sa vitesse d'environ 4 km/h inférieure à la vitesse de déplacement de l'infanterie.



FIG. 2 – Le fardier de Cugnot.

Cette première machine à vapeur roulante a été construite de manière empirique sans prendre en compte l'efficacité et le rendement du système mais reste une innovation à l'aube de la révolution industrielle. Les préoccupations au XIX^e siècles étaient d'améliorer le système en particulier pour éviter les explosions et ensuite l'étanchéité. Avec Sadi Carnot qui en 1824 a établi les concepts fondateurs qui régissent l'évolution du rendement maximal d'une machine thermique fonctionnant entre deux sources sont les bases du fonctionnement d'un système thermodynamique. Il cherchait à créer un cycle avec la meilleure efficacité possible [2]. Le rendement thermodynamique du moteur est le rapport du travail W recueilli au cours d'un cycle et de la quantité de chaleur Q_M reçue au cours de ce même cycle, soit encore, conformément au premier principe de la thermodynamique :

$$W + Q_M - Q_m = 0 \quad (1)$$

Avec Q_m la quantité de chaleur cédée au cours du cycle :

$$\eta = \frac{-W}{Q_M} = \frac{Q_M - Q_m}{Q_M} \quad (2)$$

Le cycle de Carnot suppose qu'entre deux sources S_m et S_M , les transformations thermodynamiques sont réversibles d'un point de vue mécanique comme thermique ce qui impose l'absence de pertes internes et tout échange de chaleur. Le cycle de Carnot est donc une transformation cyclique ditherme réversible constituée de deux isothermes et deux adiabatiques.

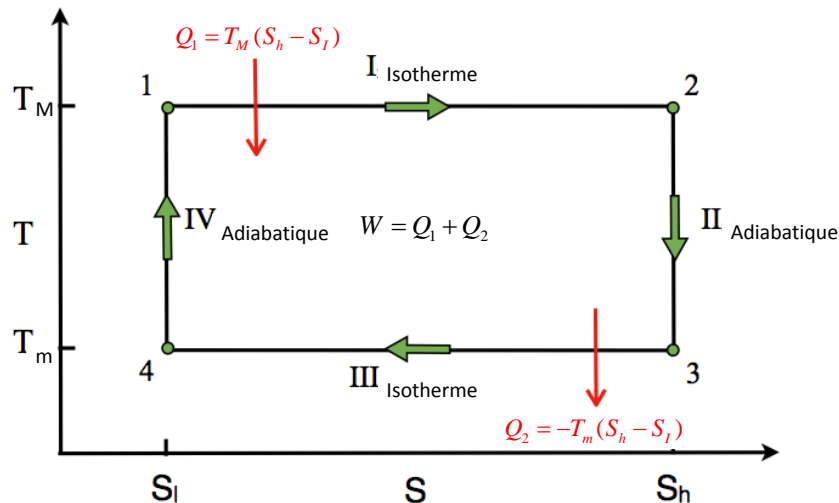


FIG. 3 – Le cycle de Carnot : cycle idéal.

La chaleur Q_M est prélevée selon l'isotherme 1-2 (T_M) à la source chaude et la chaleur Q_m est cédée suivant l'isotherme 3-4 (T_m) à la source froide. Le second principe de la thermodynamique appliqué à l'évolution fermée peut s'écrire :

$$\frac{Q_M}{T_M} - \frac{Q_m}{T_m} = 0 \quad (3)$$

Le rendement de Carnot constitue un maximum en terme d'énergie récupérable sur l'arbre moteur. Suite à cette relation, on se rend compte de l'importance de connaître la température de fonctionnement du système pour améliorer celui-ci. Le théorème de Carnot constitue ainsi un postulat incontournable dans l'étude thermodynamique théorique des moteurs, mais on observe toutefois qu'aucune machine expérimentale n'est capable de fonctionner suivant ce cycle. Mais il sert de référence pour la comparaison aux autres cycles tels que le cycle Stirling, Ericsson et celui de R.Diesel.

Après ces premières machines à combustion externe, on développa au cours du XIX^e siècles le moteur à combustion interne qui utilise la chaleur dégagée par un carburant qui fut ensuite adapté aux premières automobiles. Dans un moteur à combustion interne, la production de chaleur se fait au même endroit que la production de travail. Au début du XX^e siècles avec les besoins militaires, les turbines puis les moteurs à réaction et enfin les statoréacteurs furent proposés. Le rapport poids/puissance (puissance massique) de ce système était sans équivalent mais présentait des rendements faibles, les statoréacteurs seront donc un sujet d'étude qui va rester constamment en développement. En cherchant à créer des machines volantes de plus en plus rapides, l'inventeur René Lorin eut l'idée en 1913 d'un système propulsif conçu sans pièce tournante au sein du moteur : le statoréacteur appelé aussi tuyère thermo-propulsée.

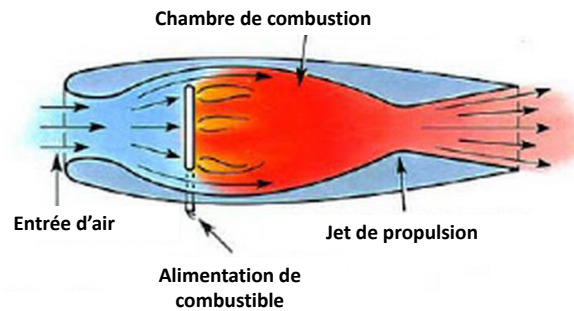


FIG. 4 – Schéma du projet de René Lorin de 1913.

C'est un système propulsif simple, peu coûteux et qui consomme moins de carburant et adapté aux grandes vitesses. Il n'a jamais pu passer à la réalisation de ce projet car à l'époque aucun avion ne pouvait porter l'appareil pour emmener celui-ci à une vitesse supérieure à 200 km/h suffisants pour obtenir la compression de l'air. Un peu plus de trente ans plus tard, René Leduc redécouvre le système et met au point le premier prototype de statoréacteur. Dans un premier temps, il effectue un test en vol plané lâché d'un avion en 1947. Le premier vol historique d'un statoréacteur aura lieu le 21 avril 1949 avec l'allumage de la tuyère et la montée en altitude avec la seule poussée du statoréacteur. L'inconvénient majeur du statoréacteur est qu'il ne peut faire décoller un engin seul, il doit être embarqué sur un appareil porteur ou équipé d'une propulsion mixte (turboréacteur + statoréacteur). M.Leduc réalisera le concept d'un propulseur à statoréacteur couplé à un turboréacteur, mais les essais réalisés en 1957 ne lui permettront pas de dépasser la vitesse du son en raison de l'aérodynamisme de son prototype. Son financement fut coupé par l'état ce qui scella la fin des essais. Des organismes comme l'ONERA et l'Aérospatiale se sont alors intéressés à cette innovation permettant d'atteindre des vitesses supérieures à Mach 3,5 avec notamment la réalisation d'un missile tactique (air-sol AMP Matra-Aérospatiale). Encore aujourd'hui l'ONERA et MBDA travaillent à développer ce système de propulsion qui a gardé la même forme géométrique de conception. Le développement porte sur des statoréacteurs à combustion supersonique permettant d'atteindre des vitesses de l'ordre de Mach 7. Récemment les américains ont testé un appareil nommé "WaveRider" qui a volé à Mach 5,1 pendant 30 secondes le 14 août 2012 avant de tomber dans l'océan.

Dans ce but, les matériaux utilisés et les températures atteintes en combustion sont devenus des données nécessaires et importantes pour la conception des chambres de combustion qui doivent résister à la température. Ces chambres peuvent être refroidies par plusieurs procédés. Dans un système couplé statoréacteur et turboréacteur, il faut tenir compte de cette température pour que la structure et notamment les aubes résistent. Avec l'évolution de tous ces moyens de mesure, on cherche toujours à améliorer la connaissance des phénomènes de combustion afin d'obtenir la température adiabatique de flamme la plus élevée possible pour un meilleur rendement. Par contre lorsque l'on dépasse la température de 2000 K , on forme des Nox très polluants. Les propulseurs doivent suivre des normes environnementales de plus en plus strictes depuis 1990, il faut donc trouver un compromis entre élévation de température et émission polluante (Norme Euro 5). On comprend alors l'importance de pouvoir mesurer la température au sein des moteurs et des systèmes propulsifs pour les développer. Après 1945 on a vu apparaître les premières mesures intrusives (thermocouple, canne à aspiration) qui permettent l'instrumentation des systèmes mais restent quelque peu erronées en perturbant le milieu. Différents moyens de mesure intrusifs ou non intrusifs basés sur le rayonnement ont été développés [?] [].

Ces travaux concernent la connaissance des mécanismes de combustion toujours valables aujourd'hui.

Dans le but d'améliorer ces systèmes par des mesures de température des produits de combustion (écoulement de gaz chaud), notre laboratoire a participé en 1998 à deux programmes européens en collaboration avec la SNECMA et Rolls Royce. Ces projets nous ont permis de mesurer les profils de température et de concentration par des mesures en émission durant quelques secondes avec une précision de l'ordre de 2 % [4] [5]. À l'époque nos résultats étaient limités à des profils simples. Dans le but de pouvoir étudier des profils complexes, d'améliorer la précision des mesures et d'apporter une information spatiale sur l'information mesurée, notre laboratoire a proposé en 2009 une méthode permettant de connaître en temps réel des profils complexes de températures et de concentrations de différentes espèces (H_2O , CO_2) présentes au sein des produits de combustion. Pour ne pas interagir avec le système, nous avons choisi de mettre en place une méthode non-intrusive basée sur l'analyse du rayonnement des gaz émis et rétrodiffusé. Cette idée a été proposée à la DGA et a été acceptée dans le cadre du projet REI-CELEP qui s'est déroulé entre Novembre 2009 et Juillet 2012.

Deux types d'analyses sont proposées :

La détermination du rayonnement émis par les molécules de gaz (H_2O , CO_2) en fonction de la variation des paramètres de pression et de température durant la combustion est un point important de l'étude. En effet la connaissance des spectres des gaz est nécessaire notamment les coefficients d'absorption monochromatique qui sont propre à chaque gaz et varient en fonction de la température et de la concentration de celui-ci. Ces coefficients sont disponibles dans des bases de données spectroscopiques (HITRAN, HITEMP) calculés et mesurés à partir de température ambiante pour HITRAN et à 1000 K pour HITEMP à et pression atmosphérique. ces bases pouvant contenir des erreurs aux hautes valeurs de température et de pression. Nous analyserons donc dans un premier temps les effets de la pression et de la température sur le rayonnement des gaz à haute pression et haute température. Ce point clef permettra la validation ou non des bases de données spectroscopiques nécessaires à la modélisation du rayonnement. Pour ce faire une cellule à déflagration a été utilisée pour étudier les spectres d'émission des différents gaz en fonction des paramètres tels que la température adiabatique de combustion et la pression. Nous validerons ensuite la méthode de mesure des spectres en émission sur des flammes de laboratoire produites par une combustion hydrogène/oxygène ainsi que les températures retrouvées par le programme d'inversion en émission. La température retrouvée sera en fait la température moyenne le long de la ligne de visée.

Afin de pouvoir caractériser notre profil de température sur la ligne de visée, nous allons réaliser un banc de mesure de signaux rétrodiffusés qui va apporter une information spatiale sur nos mesures. Nous réaliserons pour cela un Lidar à résolution millimétrique qui est une technique souvent appliquée pour l'étude des composés de l'atmosphère mais avec des résolutions spatiales en mètres ou dizaine de mètres. En effet le couplage des mesures en émission avec les mesures en rétrodiffusion ayant une résolution millimétrique est une méthode innovante brevetée par le laboratoire du LEME en mai 2009 permettant d'obtenir instantanément la cartographie des champs de température et de concentration. Cette méthode de couplage sera validée sur des cas de laboratoire (Flammes) ainsi que des cas réels (Turbine) Cette technique apportera des retombées scientifiques sur la compréhension des mécanismes de combustion en régimes instationnaires et stationnaires. Elle permettra aussi l'élaboration de lois régissant l'évolution des raies des gaz en fonction des paramètres de température, de pression et de concentration qui serviront aux calculs de transfert thermique par rayonnement.

Rappels sur les méthodes de mesure de température

Ce chapitre a pour objectif de rappeler les principales méthodes de mesure de température et de concentration dans les flammes et les machines de combustion. Nous expliciterons dans un premier temps les méthodes intrusives (mesure en contact avec l'écoulement ou la flamme) puis les méthodes non-intrusives actives (mesure sans contact avec excitation externe) et passives (mesure sans contact). Les différentes méthodes possibles pour l'étude des gaz chauds seront comparés en listant leurs avantages et leurs inconvénients justifiant ainsi nos choix.

Introduction

La température traduit l'énergie d'agitation des molécules, des atomes dans un système thermodynamique isolé. De ce fait, pour la détermination d'une température qu'elle soit moyenne ou globale, le milieu mesuré doit respecter des conditions d'équilibre thermodynamique qui seront explicitées au chapitre suivant.

L'étude de la température est essentielle pour améliorer les phénomènes liés à la combustion avec notamment l'émission des produits polluants tels que les Nox qui se forment à partir de 2000 K. La concentration des espèces gazeuses produites dans une combustion dépend fortement du taux de réaction chimique et de la température. La connaissance et la maîtrise du profil de température et de concentration instantanées permettrait de suivre l'évolution temporelle de la composition des espèces produites, l'avancement de la combustion, son rendement et ainsi d'améliorer le fonctionnement du foyer de combustion.

Sont concernés aussi par la connaissance de la température, l'amélioration des rendements thermiques qui influencent la consommation de carburant, la durée de vie et le coût d'utilisation du moteur.

La définition de la température peut être remise en cause par le fait que dans une combustion les zones de réactions possèdent de forts gradients de température alors que le système doit présenter un équilibre thermodynamique. Le but de ce chapitre est de recenser les diverses méthodes de mesure utilisées pour déterminer les champs de températures.

La mesure de température de gaz chauds impose de nombreuses contraintes suivant le type de combustion que l'on étudie et peuvent être classées en :

- « mesures intrusives »
- « mesures non intrusives »

Dans la deuxième catégorie, on peut encore distinguer deux sous parties :

- « méthodes actives »
- « méthodes passives »

Dans ce chapitre on présentera les différentes techniques de mesures intrusives ou non utilisées dans les milieux gazeux à hautes températures.

1 Les mesures intrusives

Les méthodes intrusives nécessitent un "contact" entre un élément thermométrique (un capteur) et le milieu étudié. Ce n'est pas explicitement un contact mais une intrusion dans la réaction de combustion. La présence de ces éléments au sein du milieu implique l'apport de capacités calorifiques, de perturbations et d'échanges thermiques. La mesure réalisée est dite "locale" car elle dépend de la position de la zone de contact et ne représente donc pas la mesure globale de la flamme en tout ces points. Afin de réaliser une cartographie détaillée, il suffit de multiplier le nombre d'intrusions mais cela peut fortement modifier le comportement du système.

1.1 Les sondes à aspiration

La mesure est déportée par aspiration du mélange gazeux. Dans une première étape on prélève par aspiration les produits de combustion que l'on recherche. Pour cela on établit autour du couple thermoélectrique un écran au sein duquel on veut mesurer la température du gaz que l'on aspire à grande vitesse (FIG I.1). Même en adaptant le système suivant la nature et la vitesse du gaz, la sonde ne permet pas une mesure précise de la température de la flamme. En effet, un

bilan énergétique est nécessaire pour tenir compte des différents modes de transfert thermique intervenant pour le calcul de la température effective qui n'est évidemment pas celle du capteur. Les produits de combustion sont ensuite étudiés soit par chromatographie en phase liquide ou vapeur soit par spectroscopie optique ou de masse. Cette méthode peut résister à des milieux réactifs jusqu'à des températures de 2300 K pour une sonde refroidie. Il existe plusieurs types de sondes notamment celle à aspiration qui est une des méthodes la plus utilisée dans l'industrie. Les trois aspects négatifs de cette mesure sont : son temps de prélèvement, la perturbation de l'écoulement et le changement de phase possible des produits pendant la phase de prélèvement. Par contre son utilisation est très simple [6].

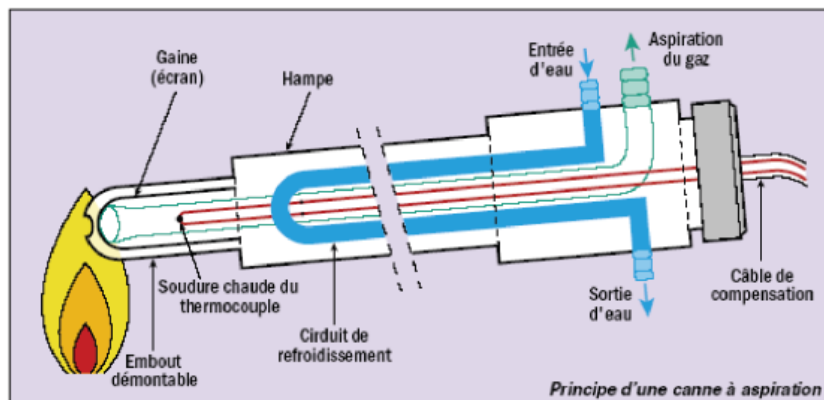


FIG. I.1 – Sonde à aspiration (Chauvin Arnoux) [?]

Dans notre étude, les phénomènes mis en jeu ont des temps de réaction très courts de l'ordre de 50 millisecondes. Ce type de sonde n'est donc pas envisageable pour une étude précise des champs de températures en régime dynamique.

1.2 Les thermocouples

Les thermocouples sont certainement les capteurs les plus utilisés pour mesurer la température dans l'industrie. Ils sont peu coûteux, simples d'emploi et suffisamment précis pour la plupart des applications.

Le capteur va déterminer l'effet Seebeck en mesurant les effets thermoélectriques entre deux métaux. Cet effet se traduit par la création d'une force électromotrice (f.e.m) entre les soudures de deux matériaux conducteurs qui varie en fonction de la température.

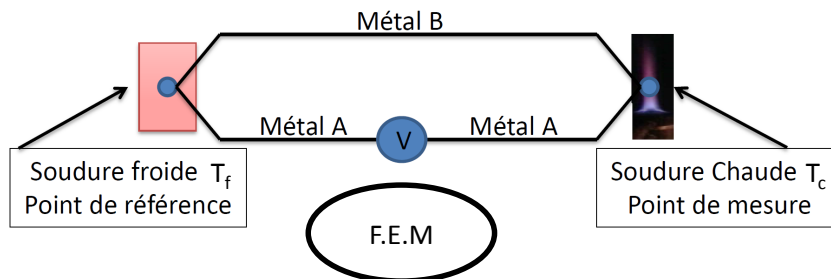


FIG. I.2 – Schéma de principe du thermocouple (Effet Seebeck)

Le pouvoir thermoélectrique s'écrit :

$$S_{BA}(T) = \frac{dE}{dT} \quad (\text{I.1})$$

D'où :

$$E = \int_{T_f}^{T_c} S_{BA}(T)dT = \int_{T_f}^{T_c} S_B(T) - S_A(T)dT \quad (\text{I.2})$$

La f.e.m délivrée dépend de la nature des métaux A et B. Elle permet de déterminer la température de la soudure chaude placée dans le milieu à mesurer. En fonction des matériaux ou "couples" mis en jeu, les thermocouples peuvent fonctionner dans l'intervalle de température allant de 80 à 3000 K.

Un des problèmes des thermocouples en combustion est leur oxydation lorsqu'ils ne sont pas sous atmosphère neutre. Dans ce cas particulier, leur durée de vie peut être très courte pour des petits diamètres (quelques millimètres au maximum) au sein de flamme à plus de 1000 K. En utilisant des composés de bore ou de carbone, on accède aux hautes températures mais en raison de leur fragilité ils possèdent de plus gros diamètres. Cette configuration géométrique entraîne des temps de réponse élevés ainsi que la possible création de points d'arrêts. On appelle cela un point d'arrêt car l'écoulement rentre en contact avec la surface du thermocouple et la température mesurée est alors erronée par l'échauffement localisé. Les mesures par thermocouples peuvent engendrer de nombreuses erreurs dûes :

- les échanges par rayonnement entre le capteur et l'environnement extérieur, on peut utiliser un "écran" comme pour les sondes mais ceci implique d'autres contraintes notamment géométriques.

Exemple de perte par rayonnement : on considère un écoulement de gaz chaud dans une conduite, on introduit un thermocouple au sein du milieu à étudier. La température de la paroi est plus froide que celle de l'écoulement. On peut considérer les échanges par convection et par rayonnement pour établir le bilan thermique en supposant le gaz transparent comme sur la Figure I.3.

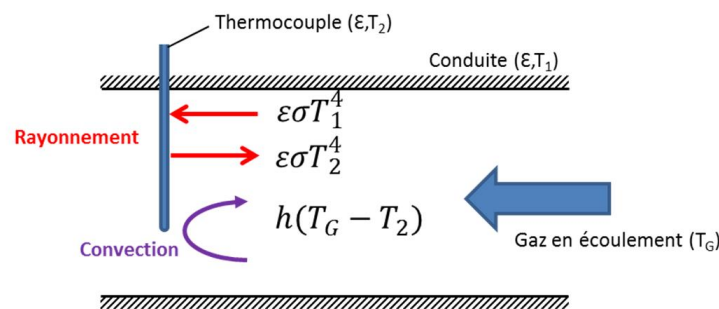


FIG. I.3 – Échanges par rayonnement et convection entre le thermocouple et son environnement

En régime permanent, le bilan s'écrit :

$$T_G - T_2 = \Delta T = \frac{F_{1 \rightarrow 2} S_2 \varepsilon \sigma (T_2^4 - T_1^4)}{h} \quad (\text{I.3})$$

En considérant notre conduite cylindrique, on estime que le facteur de forme est de 1 et $F_{1 \rightarrow 2} = F_{2 \rightarrow 1} = 1$. Dans les conditions de l'expérience, nous avons estimé que le coefficient

de convection h était de l'ordre de $150 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ et nous avons choisi arbitrairement une valeur de 1 mm^2 comme surface de contact, ce qui donne une différence de température entre le gaz et le thermocouple de 200 K pour une émissivité de l'acier de 0,2.

- les échanges par convection entre le gaz et le capteur.
- la création d'un point d'arrêt dans l'écoulement qui chauffe le capteur, cet échauffement est proportionnel au carré de la vitesse du gaz. On mesure donc une température supérieure à celle dite "vraie".

Exemple de création de point d'arrêt : On considère un statoréacteur à une vitesse de Mach 2, on introduit au sein de l'écoulement un thermocouple. On peut écrire que la température mesurée par le capteur est :

$$T_{\text{capteur}} = T_G + \frac{V^2}{2C_p} \quad (\text{I.4})$$

Car :

$$\frac{1}{2}mV_G^2 = mC_p\Delta T \quad (\text{I.5})$$

La perturbation du milieu par l'introduction d'un thermocouple est difficile à quantifier ce qui joue un rôle sur la validité de la mesure de température [7].

Conducteur positif/négatif	Sensibilité moyenne (mV/°C)	Domaine d'utilisation (°C)
K (Nickel-Chrome/Nickel-aluminium)	41	-270 à 1270
N (Nickel-Chrome-Silicium/Nickel-Silicium-Magnésium)	38	-270 à 1300
Pt/Pd	20	0 à 1500
S (Platine-10%Rhodium/Platine)	11,4	-50 à 1600
R (Platine-13%Rhodium/Platine)	12,9	-50 à 1600
Pt 0.1 Mo/Pt 0.5 Mo	13 à 36	0 à 1600
B (Platine-30%Rhodium/Platine-6%Rhodium)	10,6	0 à 1700
Pt 40% Rh/Pt 20% Rh	3	0 à 1850
Ir/Rh 40% Ir	5	0 à 2100
G/C/D	20	0 à 2600

TAB. I.1 – Classes et sensibilité des thermocouples

Remarque : Dans le cas qui nous intéressent, l'écoulement gazeux contient du carburant imbrûlé (H_2 , Kérozène...). Le point chaud du thermocouple réallume la combustion et la température mesurée n'a plus aucun sens.

1.3 Sondes en couches minces

Il existe deux types de sondes en couches minces. Pour ces deux types de sondes, on dépose une fine couche d'un matériau sur un autre appelé "substrat". Ce dépôt permet de donner des caractéristiques particulières à cette surface tout en bénéficiant des propriétés massives du substrat. On peut réaliser des mesures de température suivant deux méthodes :

- Un premier principe où l'on mesure la résistivité d'un matériau en fonction de la température. Ce type de sonde permet d'accéder à des températures de l'ordre de 1700 K avec un temps de réponse court (quelques millisecondes) du fait de la faible inertie thermique de la couche mince.
- Un second principe où on utilise l'effet Seebeck en créant un thermocouple sur un substrat. Avec cette méthode on peut atteindre des températures maximales de l'ordre de 1500 K avec un temps de réponse de quelques microsecondes à condition d'isoler électriquement la couche mince du substrat conducteur.

Le deuxième type de sonde est très utilisé par l'ONERA pour appréhender la température et la densité de flux thermique pariétal en surface des aubes de turbine.

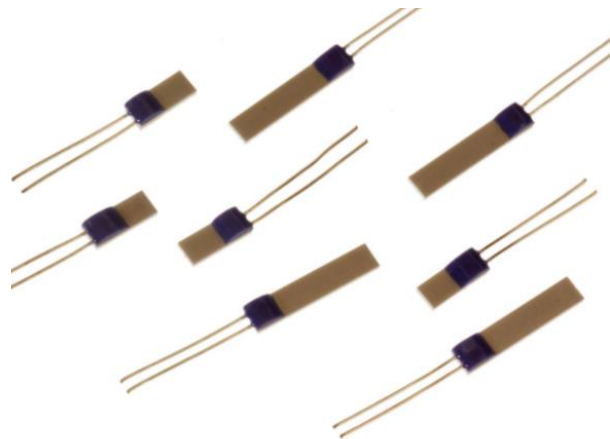


FIG. I.4 – Sonde platine en couche mince pour l'industrie automobile de chez LABFACILITY (épaisseur 2 mm et de largeur variant de $1,6$ à 10 mm)

Les erreurs de mesure avec les sondes en couche en mince sont du même type que celles données par les thermocouples.

1.4 Les fibres optiques

L'avantage d'une fibre optique est que l'on peut la déployer à distance et réaliser des mesures en déportant le système d'acquisition, par exemple pour l'étude d'un réacteur. Ces capteurs sont aussi insensibles aux champs électriques et magnétiques et présentent une bonne stabilité par rapport aux agents chimiques corrosifs des réactions. Par contre, le coût et la fragilité du matériel limitent leur utilisation à des températures peu élevées. Pour les mesures avec contact, on utilise de plus en plus des fibres optiques qui déportent la mesure ou le traitement de celle-ci. On peut les classer en deux catégories [?] :

- les capteurs intrinsèques.

Dans ce type de mesure, la lumière transmise par la fibre est directement proportionnelle à la température du milieu où elle se trouve. On peut citer les fibres optiques à effet Raman. On

excite les molécules constituant la fibre en envoyant des ondes incidentes monochromatiques à travers celle-ci. Les molécules réagissent par excitation et émettent des raies Stokes de plus grande longueur d'onde et anti-Stokes de plus petite longueur d'onde par rapport à celle d'excitation. Le rapport d'intensité de ces deux raies fournit alors une information sur la température tel que :

$$R(T) = \left(\frac{\lambda_s}{\lambda_{as}}\right)^4 \exp\left[\frac{h\nu}{k_b T}\right] \quad (\text{I.6})$$

Avec :

- $k_B = 1,3806.10^{-23} [J.K^{-1}]$ la constante de Boltzmann,
- λ_s et λ_{as} respectivement les fréquences des raies Stokes et anti-Stokes.

La limite de ces mesures avec les capteurs intrinsèques est de l'ordre de 700 à 800 K pour les fibres à effet Raman ce qui ne sera pas adapté pour notre étude sur les flammes.

- les capteurs extrinsèques qui utilisent des senseurs en bout de fibres.

Ce capteur est basé sur une mesure indirecte grâce à des thermomètres semi-conducteurs, sur la photoluminescence ou encore sur des micros corps noirs en bout de fibres. Ici la fibre sert uniquement à transporter l'information d'une onde électromagnétique résultant du senseur situé en bout. Les capteurs composés d'un micro corps noir en bout de fibre permettent de mesurer des températures jusqu'à 2200 K en théorie mais pour des phénomènes stationnaires. Le principe est basé sur la variation par rapport à la température de l'intensité spectrale émise par un micro corps noir placé en bout de fibre tel que :

$$W_{0\sigma} = \frac{c_1 \sigma^3}{\exp\left(\frac{c_2 \sigma}{T}\right) - 1} [W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm] \quad (\text{I.7})$$

Avec :

- $c_1 = 2hc_0^2 = 1,1910.10^{-12} [W.cm^2.sr^{-1}]$,
- $c_2 = hc_0/k_B = 1,4388 [K.cm]$,
- σ la longueur d'onde d'émission,
- T la température en Kelvin.

Ces capteurs sont adaptés à des mesures de flammes mais leurs principaux inconvénients restent leur rigidité et leur prix et le fait d'effectuer des mesures dans des conditions stationnaires ce qui restreint l'utilisation de ces capteurs sur des système dynamique. On retrouve aussi les problèmes évoqués avec les thermocouples.

1.5 Tableau récapitulatif des méthodes intrusives

Système de mesure	Principe physique	Avantages	Inconvénients et difficultés
Sondes à aspiration	Couplage entre aspiration des gaz et effet Seebeck par thermocouple	T jusqu'à 2300 K Simple d'utilisation	Mesure locale T est supérieure à T vraie Compensation des pertes Temps de prélèvement
Thermocouples	Effet Seebeck (mesure d'une f.e.m entre 2 matériaux)	Coût peu élevé Large gamme de T Simple d'utilisation	Temps de réponse élevé Echanges par rayonnement Point d'arrêt
Résistances métalliques en couches minces	Résistivité du matériau en fonction de la température	Bonne tenue mécanique T jusqu'à 1700 K	Fragilité Temps de réponse pas adapté
Thermocouples en couches minces	Effet Seebeck	Bonne tenue mécanique	Fragilité T inférieure à 1500 K Temps de réponse pas adapté
Fibres optiques	Senseurs en bout de fibres	Analyse déportée T jusqu'à 2300 K	Fragilité de la fibre Prix

TAB. I.2 – Tableau récapitulatif des méthodes intrusives

Pour un statoréacteur ou un turboréacteur toutes ces mesures intrusives perturbent les écoulements et à une température de 2000 K l'erreur est supérieure à 200 K.

2 Les mesures non-intrusives

Nous avons montré précédemment que les principaux inconvénients des mesures avec contact étaient la perturbation du milieu et la création de points d'arrêts. De plus, il est très difficile de compenser les pertes dues aux échanges entre le gaz et le capteur et celles entraînées par le milieu extérieur. Ces divers problèmes créent une différence entre la température mesurée et la température vraie.

Afin de s'affranchir de toutes ces contraintes, on privilégiera les méthodes de mesure sans contact par voie optique. Les détecteurs mis en jeu ne sont dans ce cas pas directement exposés aux fortes variations de pression de l'écoulement, ni à ses hautes températures. Ces techniques sont donc bien adaptées pour l'étude des milieux gazeux à hautes températures.

Elles peuvent être classées en deux catégories :

- Une première catégorie qui nécessite un moyen externe qui va venir exciter le milieu (Ex : un laser) : **les méthodes non intrusives actives**
- Une deuxième qui consiste à étudier le milieu directement : **les méthodes non intrusives passives**

Il existe de nombreuses méthodes non intrusives. Nous présenterons ici celles qui permettent de mesurer la température des espèces gazeuses présentes dans une combustion et non celle des suies ou particules.

2.1 Les méthodes actives

Avec l'évolution des lasers ces dernières années, ces méthodes sont de plus en plus utilisées. Le principe repose sur l'excitation des molécules du milieu par une source externe qui émet des photons. On joue sur l'interaction photons-molécules.

Les méthodes actives de diagnostic optique sont basées sur la diffusion de la lumière. Cette diffusion peut être élastique ou non.

2.1.1 Mesure par diffusion Rayleigh, diffusion élastique

La diffusion des photons dans un milieu peut se produire sans échange d'énergie si la fréquence du photon diffusé est égale à celle du photon incident ν_0 : c'est la **diffusion Rayleigh**. L'intensité de la lumière diffusée est proportionnelle à l'inverse de la longueur d'onde à la puissance quatrième. Ce phénomène est donc très sensible aux courtes longueurs d'onde, c'est pourquoi on le néglige dans l'infrarouge.

Par exemple, si on utilise une lumière visible monochromatique λ_0 issue d'un laser à la puissance P_0 éclairant un volume de gaz. Le signal diffusé collecté est d'après [8] :

$$I = I_0 A \Omega L C \frac{dS}{d\Omega} \quad (I.8)$$

Avec :

- A la constante de calibration du système,
- Ω l'angle solide,
- L la longueur du faisceau interagissant avec le milieu en cm,
- C le nombre de molécules par cm^3 ,
- $\frac{dS}{d\Omega}$ la section efficace différentielle de diffusion moyenne rapportée à l'angle solide de diffusion.

Cette section efficace varie pour chaque gaz. En connaissant la section efficace " σ_R " du milieu visé, on peut mesurer la densité du gaz et l'on peut en déduire la température avec la loi des gaz parfaits :

$$P V = n R T = N k_B T \quad (\text{I.9})$$

Avec :

- P la pression du gaz en Pascal,
- V le volume en m^3 ,
- n le nombre de moles,
- $R = 8,3144621 [J.mol^{-1}.K^{-1}]$ la constante des gaz parfaits,
- T la température en Kelvin,
- N le nombre de molécules,
- $k_B = 1,3806.10^{-23} [J.K^{-1}]$ la constante de Boltzmann.

On peut alors exprimer la concentration des molécules par unité de volume par :

$$C = \frac{P N_a}{R T} \quad (\text{I.10})$$

Avec $N_a = 6,0221.10^{23} [mol^{-1}]$ le nombre d'Avogadro.

Cette technique est très facile à mettre en oeuvre et ne nécessite pas un traitement des résultats compliqué si une seule espèce de gaz est présente dans le milieu. L'énergie diffusée est en général très faible par rapport à celle du laser (environ plus faible d'un facteur 1000), et la mesure peut être perturbée par la présence de particules qui sont beaucoup plus grosses que les molécules. Le signal peut se confondre alors avec la diffusion de Mie sur les particules. Le phénomène peut cependant être masqué dans une réaction de combustion par la diffusion sur les suies.

2.1.2 Les thermomètres à ultrasons

Les thermomètres à ultrasons dans notre cas d'étude peuvent être adaptés à des hautes températures car ils couvrent un domaine très varié qui s'étale de 1800 à 15000 K [9]. Le principe est basé sur le fait que la vitesse de propagation du son est proportionnelle à la racine carrée de la température du milieu traversé par l'onde.

En connaissant la distance entre l'émetteur et le récepteur, on peut en déduire la température du milieu avec la formule tirée des travaux de Lynnworth et Carnevale [10] :

$$v = \sqrt{\frac{\gamma R T}{M}} \quad (\text{I.11})$$

Avec :

- v en $[m.s^{-1}]$ la vitesse du son dans le gaz
- γ le coefficient isentropique du milieu
- $R = 8,3144621 [J.mol^{-1}.K^{-1}]$ la constante des gaz parfaits
- T = la température du milieu
- M = la masse molaire du gaz en $[g.mol^{-1}]$

Avec un thermomètre à ultrasons composé d'un détecteur utilisant du N_2 et d'un conducteur en quartz on peut travailler sur un domaine très vaste compris entre 1800 à 15000 K.

Cette technique est adaptée pour la mesure des hautes températures [10]. Toutefois, une étude

préalable sur la dépendance de la vitesse par rapport à la pression et la composition du milieu pour définir correctement la température devra être faite. Pour notre étude sur des flammes, il faudrait donc réaliser cette étude pour tous les gaz étudiés ainsi que l'erreur qui peut en résulter mais cela ne prendra pas la perturbation du milieu sur les mesures.

2.1.3 Mesure par diffusion Raman spontanée (DRS), diffusion inélastique

Lorsque l'on excite les molécules du milieu par un laser ν_0 . Une faible quantité du rayonnement diffusé possède une fréquence ν_D légèrement différente telle que :

$$\nu_D = \nu_0 \pm \nu_R \quad (\text{I.12})$$

C'est la **diffusion inélastique Raman**. On distingue la raie Raman Stokes ($\nu_0 - \nu_R$) de la raie Raman anti-Stokes ($\nu_0 + \nu_R$).

La raie anti-Stokes est généralement moins intense que la raie Stokes. D'un point de vue énergétique, quand on éclaire une molécule d'énergie E_i à la fréquence ν_0 celle-ci passe à l'état énergétique $E_i + h\nu_0$ avec $h = 6,626 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$. La molécule est alors dans un niveau d'énergie instable, et va retomber spontanément à un niveau plus stable en émettant un photon $h(\nu_0 - \nu_R)$ (Stokes) ou $h(\nu_0 + \nu_R)$ (Anti-Stokes). Au niveau de la molécule, cet échange correspond à une variation de son énergie électronique et c'est un phénomène inélastique.

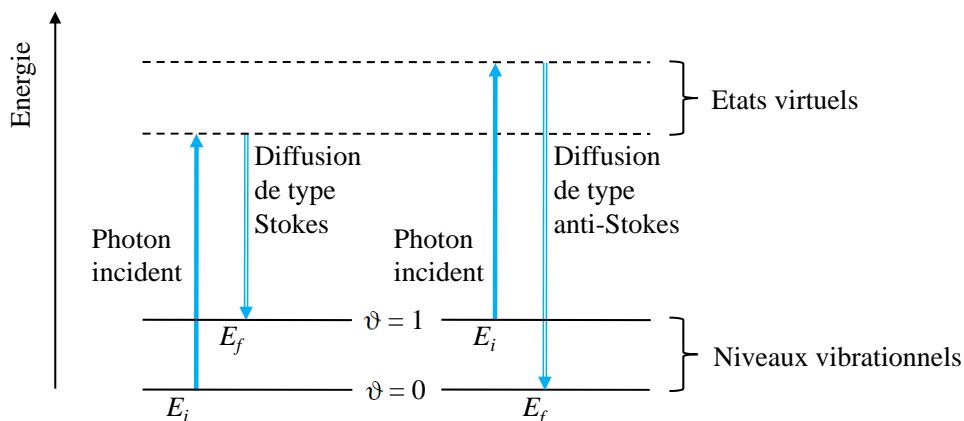


FIG. I.5 – Schéma de principe de la diffusion Raman

La raie Raman-Stokes est la plus forte car il est plus probable qu'une molécule passe d'un niveau d'énergie $v = 0$ (non excité) vers $v = 1$. En effet, le niveau d'énergie 0 est le plus peuplé dans les conditions standard de pression et de température que le niveau $v = 1$ qui correspond à un niveau excité.

La diffusion Raman spontanée permet de mesurer la densité des espèces telles que N_2 , O_2 , CO_2 , H_2O [11] dans les combustions et ainsi remonter à leur température. Comme pour la diffusion Rayleigh, le signal collecté est très faible par rapport à la source d'excitation. La diffusion Raman spontanée est 1000 fois plus faible comparé à la diffusion Rayleigh [12].

Cette méthode est plus sensible aux suies et aux particules qui parasitent totalement la mesure. De plus, elle nécessite l'utilisation d'une source laser plus puissante pour augmenter le rapport signal sur bruit. Le laser peut lui produire un phénomène de fluorescence induite. La diffusion Raman spontanée n'est donc pas très adaptée pour caractériser des jets de combustion, c'est pourquoi la méthode de mesure basée sur la diffusion Raman anti-Stokes Cohérente (DRASC) a été développée pour pallier à ces problèmes.

2.1.4 Mesure par diffusion Raman anti-Stokes Cohérente (DRASC)

Lorsque la densité de photons du faisceau laser d'excitation devient très élevée, on peut observer l'effet Raman spontané (pour lequel le signal diffusé est proportionnel à celui du laser). Il apparaît un effet non linéaire.

Le principe de la DRASC repose sur l'utilisation de deux ondes planes colinéaires de fréquences ω_L et ω_S qui traversent le milieu étudié. ω_L est la fréquence du laser de pompe et ω_S est la fréquence Stokes. En excitant le milieu qui est sensible à la fréquence $\omega_R = \omega_L - \omega_S$, on crée une diffusion cohérente, et son intensité est 5 à 10 fois plus élevée que la DRS.

Dans le cas où le milieu est à la fréquence ω_R , un faisceau intense est créé sous la forme d'une onde plane monochromatique colinéaire aux ondes excitatrices à la fréquence Anti-Stokes :

$$\omega_{AS} = \omega_L + (\omega_L - \omega_S) \quad (\text{I.13})$$

Les molécules du milieu vibrent alors à la fréquence $\omega_L - \omega_S$.

On a la création d'une deuxième onde symétrique de fréquence :

$$\omega_L - (\omega_L - \omega_S) \quad (\text{I.14})$$

Elle est située dans le domaine spectral des fluorescences induites par le faisceau exciteur.

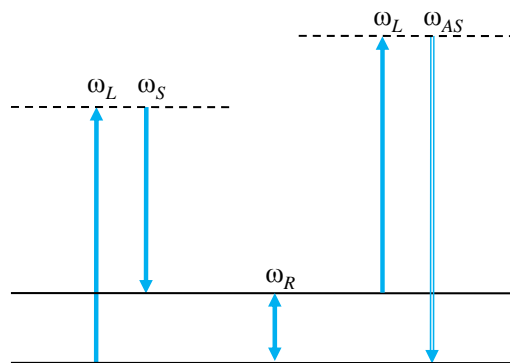


FIG. I.6 – Diagramme de niveaux d'énergie

En gardant constante la fréquence du laser de pompe ω_L et en faisant varier ω_S , on peut appliquer cette technique à toutes les espèces gazeuses présentes dans le milieu. En connaissant la position des raies et leur intensité, on peut remonter à la molécule et à sa concentration, mais aussi à la température (grâce à l'intensité de plusieurs niveaux de rotation-vibration) [13].

Avec cette méthode, on obtient un signal cohérent qui peut être utilisé sur toutes les molécules avec une bonne résolution spatiale (de l'ordre du millimètre). Le développement des lasers a permis avec un seul pulse laser de couvrir plusieurs fréquences. La DRASC est efficace pour étudier l'espèce majoritaire dans la combustion. Mais elle est limitée dans le dépouillement car les résultats obtenus sont comparés à des spectres théoriques issus de bases de données qui ne couvrent pas toutes les molécules. De plus, à hautes températures et pressions, les informations contenues dans les bases de données souffrent d'incertitude [14]. Ce point sera développé dans le chapitre III, avec la nécessité de travailler pour notre étude sur les spectres de H_2O à hautes températures et fortes pressions pour valider le modèle théorique.

Cette méthode est efficace en laboratoire sur des écoulements simples, mais est difficilement applicable en industrie en particulier pour que les sources soient colinéaires en permanence. En

effet il faut que les deux faisceaux laser se croisent sur un petit volume de mesure et le système d'étude soit équipé de hublot ce qui n'est pas simple dans le cas de moteur.

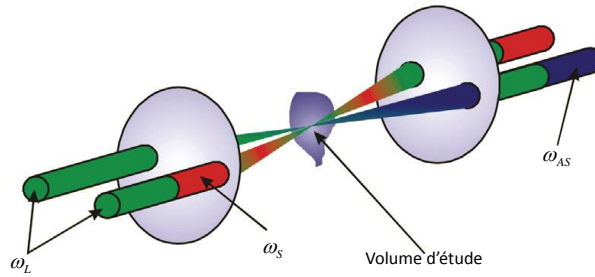


FIG. I.7 – Exemple de croisement de faisceau laser en Drasec

2.1.5 Mesure par Fluorescence induite par Laser (LIF)

Le processus de fluorescence se produit lorsqu'une molécule ou un atome est excité à sa fréquence de résonance. La molécule ou l'atome se trouve alors dans un état instable. Il revient à son état fondamental par émission d'un ou plusieurs photons selon que la transition s'effectue en une seule relaxation ou en cascade. C'est un phénomène très rapide avec un temps de désexcitation inférieur à la microseconde.

Sans excitation et à l'équilibre thermodynamique, la population des niveaux électroniques des molécules est gouvernée par la loi de Boltzmann. Avec l'excitation, on va amplifier cette population. En sélectionnant pour le pompage laser une longueur d'onde de résonance de la molécule que l'on veut étudier, on va peupler le niveau d'énergie supérieur. Le retour à l'état fondamental de la molécule peut être expliqué par trois phénomènes.

Tout d'abord, on excite le milieu par le laser. La molécule change de niveau électronique par absorption. Cette molécule peut revenir à un état stable par émission stimulée. Pour s'affranchir de ce signal, il faut observer le phénomène dans une direction différente de l'axe du laser.

Dans le cas des flammes, à hautes pressions et températures, les molécules peuvent se désexciter par collisions avec les autres molécules. Quand il y a collision, la molécule revient vers son état fondamental sans rayonner : c'est le "quenching" mais elle peut redescendre à son état stable par fluorescence.

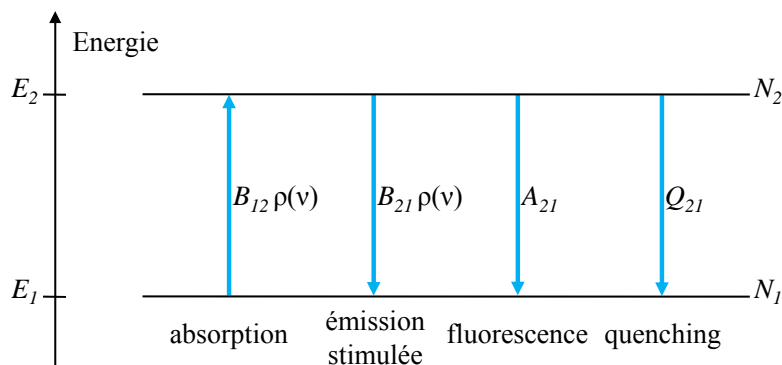


FIG. I.8 – Schéma de fluorescence à deux niveaux

Dans ce cas on peut écrire pour une transition à deux niveaux que le signal reçu par le détecteur est proportionnel à :

$$I_F \propto B_{12} \rho(\nu) f_1(T) C_i \eta_{21} \quad (\text{I.15})$$

Avec :

$$\eta_{21} = \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} \quad (\text{I.16})$$

- B_{12} en [$cm^3 . J^{-1} . s^{-2}$] est le coefficient d'Einstein pour l'absorption de la transition 1 vers 2.
- $\rho(\nu)$ en [$J . cm^{-3} . s$] la densité spectrale volumique d'énergie du faisceau laser
- $f_1(T)$ est la fraction de molécule dans l'état E_i suivant la distribution de Boltzmann.
- C_i la concentration de l'espèce étudiée.
- η_{21} le rendement de fluorescence de la transition 2 vers 1. Ce dernier terme dépend du coefficient d'Einstein A_{21} en [s^{-1}] relatif à l'émission spontanée et aux taux de quenching Q_{21} en [s^{-1}].
 Q_{21} est généralement très supérieur à A_{21} d'où :

$$\eta_{21} = \frac{A_{21}}{Q_{21}} \quad (\text{I.17})$$

Le signal LIF dépend de la température, de la pression, de la concentration et aussi du terme de quenching. Q_{21} est difficilement quantifiable car il dépend de la température, de la pression, de la molécule et il n'existe que peu d'études portant sur le sujet. En utilisant la méthode de mesure de la double LIF qui nécessite deux lasers à des longueurs d'onde différentes, on peut s'affranchir de ce problème.

Cette technique nous donne accès à une visualisation directe de la concentration et la température sur la ligne de visée ou la nappe. Elle peut être appliquée pour de nombreux composés :

- Les radicaux O , H , C , OH , CH , HCO formés pendant une combustion d'hydrocarbure,
- Les composés nitrogénés N , NO , NH , CN , NC , NH_2 , NO_2 ,
- les molécules de CO , CO_2 et I_2 .

Un autre avantage de cette méthode est que le signal collecté est de forte intensité. Mais elle peut être limitée dans le cas de flamme à hautes pressions. En raison de nombreux chocs entre les molécules, le signal peut se retrouver masqué très rapidement ou presque nul car les molécules peuvent retourner vers un état fondamental sans rayonner. Il faut de plus que les molécules mises en jeu dans la combustion possèdent une longueur d'onde excitable par le laser de pompe. Il reste une inconnue pour le traitement des mesures qui provient du terme de quenching difficilement quantifiable qui dépend de toutes les espèces en présence dans le mécanisme de la réaction de combustion qui est le plus grand inconvénient de cette méthode de mesure. De plus lorsque nous sommes à des très hautes température et très hautes pressions le signal devient faible et est difficilement exploitable [15].

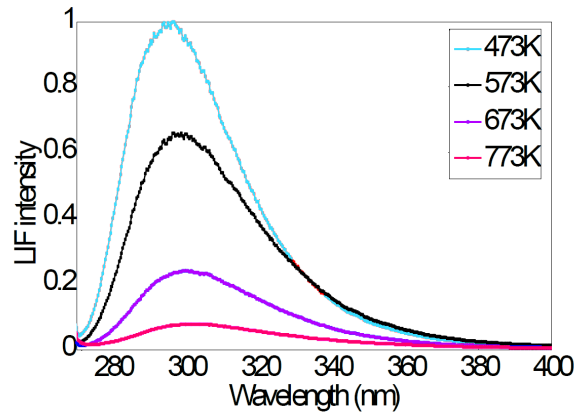


FIG. I.9 – Exemple de résultat de LIF pour la molécule d’anisole C_7H_8O pour différentes températures et une pression d’azote de 8 Bars et une longueur d’onde d’excitation $\lambda = 266 \text{ nm}$, le signal est normalisé par rapport à la valeur maximum pour $T = 473 \text{ K}$ [15].

2.1.6 Mesure par la méthode de Kurlbaum (disparition de raies)

Ce principe est à la base des méthodes d’émission et de transmission qui seront explicitées dans le paragraphe suivant sur les méthodes passives. C’est la première méthode utilisée pour déterminer la température [16]. On l’a classée dans les méthodes actives, car elle a besoin d’une source radiative externe mais se rapproche des méthodes passives.

On éclaire avec la source un milieu gazeux dont on connaît la position des raies d’absorption ou d’émission. Le phénomène physique mis en jeu repose sur le fait que lorsque nous sommes à l’équilibre thermodynamique les facteurs monochromatiques d’absorption et d’émission d’un gaz sont égaux.

La source est focalisée sur le milieu à étudier par une lentille. On recueille ce rayonnement transmis par une autre lentille qui le focalise sur la fente d’entrée d’un spectromètre.

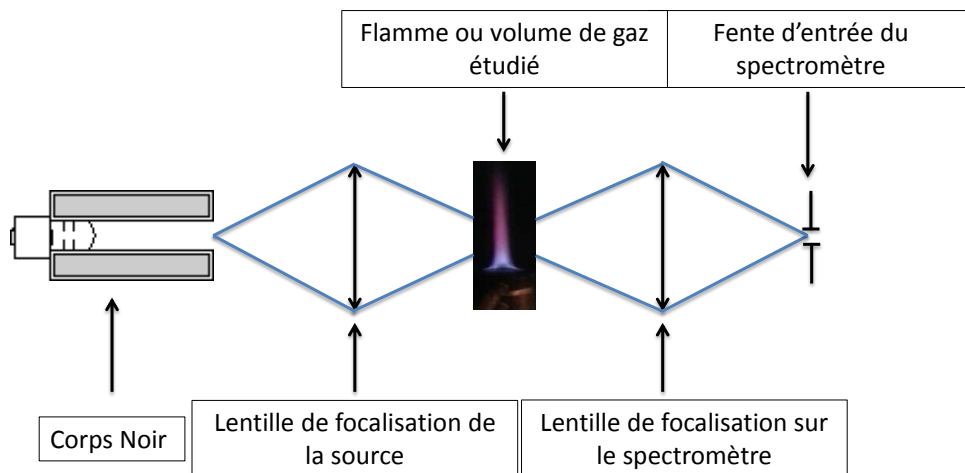


FIG. I.10 – Schéma de principe du montage optique de Kurlbaum

L’énergie émise L_m par la source est transmise par le gaz qui lui même émet du rayonnement. Celle-ci est une fonction de la longueur d’onde et de la température. L’intensité reçue par le spectromètre s’écrit :

$$L_m = \tau_g \cdot \epsilon_{\lambda, T_s} \cdot L_{\lambda, T_s}^0 + (1 - \tau_g) \cdot L_{\lambda, T_g}^0 \quad (\text{I.18})$$

Avec :

- τ_g le facteur de transmission monochromatique du gaz.
- ϵ_{λ, T_s} est le facteur d'émission spectral de la source qui pour un corps noir idéale est de 1.
- L_{λ, T_s}^0 et L_{λ, T_g}^0 sont la luminance du corps noir respectivement à la température de la source T_s et du gaz T_g .

On peut réécrire l'intensité reçue par :

$$L_m = \tau_g \cdot L_{\lambda, T_s}^0 + (1 - \tau_g) \cdot L_{\lambda, T_g}^0 = L_{\lambda, T_g}^0 + \tau_g \cdot (L_{\lambda, T_s}^0 - L_{\lambda, T_g}^0) \quad (\text{I.19})$$

Lorsque la température de la source est identique à celle du gaz, la luminance spectrale mesurée correspond à la luminance d'un corps noir rayonnant à la température du gaz. Les raies d'émission et d'absorption ne sont plus visibles.

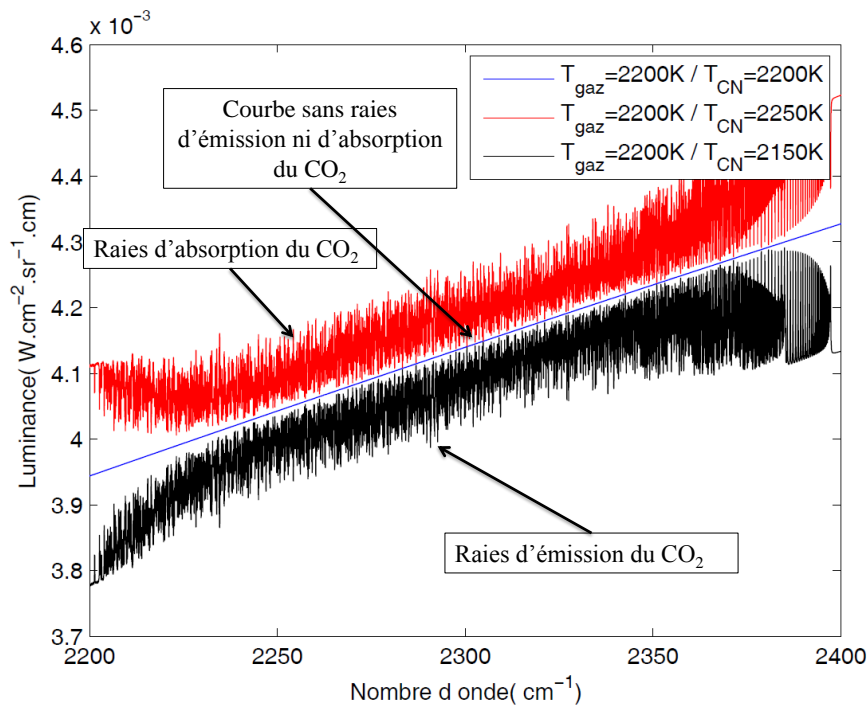


FIG. I.11 – Simulation de la méthode de Kurlbaum pour la disparition des raies du CO_2 à 2200 K

Cette méthode est très simple de mise en oeuvre, mais le milieu étudié doit être homogène en température. De plus la stabilisation de la source est nécessaire ce qui ne permet pas de faire des acquisitions sur des phénomènes rapides.

Il faut tenir compte également des gaz présents sur le chemin optique afin d'éviter toute absorption atmosphérique, c'est pourquoi cette technique était très utilisée avec du sodium comme marqueur qui présente un doublet caractéristique d'émission situé à $\lambda = 0,589 \mu m$ et $\lambda = 0,596 \mu m$.

2.1.7 Mesure par LIDAR (Light Detection and Ranging)

Le mot LIDAR désigne une méthode de mesure analogue au RADAR (RADIo Detection And Ranging) mais adaptée aux longueurs d'onde optiques. Cette méthode peut être aussi appelée "radar laser" afin de mettre en avant le rôle fondamental du laser. Avec l'évolution des lasers notamment les lasers picosecondes accordables en fréquence, on peut développer différents techniques Lidar. L'onde émise par le laser va interagir avec les particules et les molécules du milieu sur une ligne de visée. En analysant et en connaissant les propriétés radiatives et de diffusion des espèces présentes, on peut remonter à leur concentration. Cette technique est très proche des méthodes de mesure par diffusion Rayleigh et Raman [17].

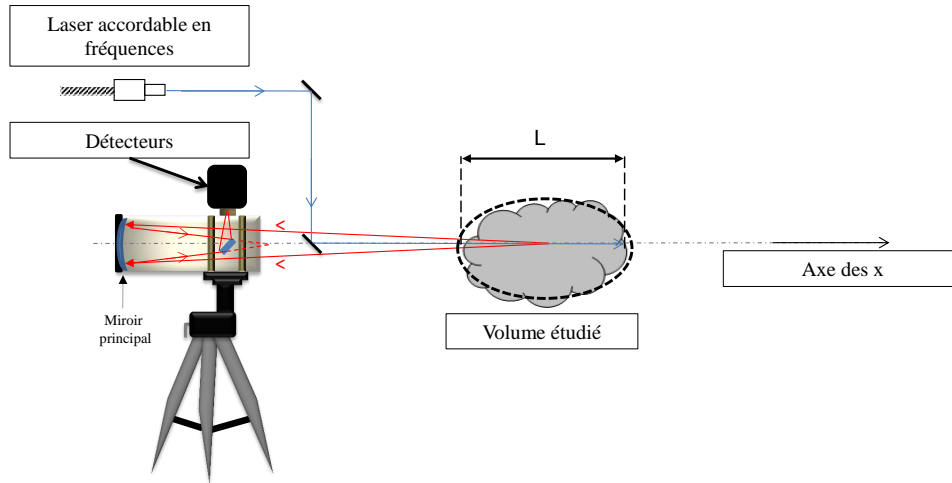


FIG. I.12 – Schéma d'un lidar coaxial appliqué pour une détection à courte distance des gaz en présence

L'équation du signal rétrodiffusé dans le cas d'une diffusion Rayleigh peut s'écrire sous la forme :

$$S_L(x) = A * S_0 * \Omega * \tau^2(\lambda, x = a \rightarrow b) * \int_x^{x+e} \beta(\lambda, x') dx' \quad (\text{I.20})$$

Avec :

- $S_L(x)$ le signal Lidar rétrodiffusé et S_0 le signal incident,
- A la fonction d'appareillage du système,
- Ω l'angle solide de visualisation,
- e la résolution spatiale le long de la ligne de visée x ,
- $\beta(x) = \sum_i [\beta_i(\lambda, x)]$ le coefficient de diffusion du mélange gazeux contenant l'espèce i ,
- $\beta_i(\lambda, x) = N(x)\sigma_i(\lambda)$ le coefficient de diffusion de l'espèce i ou N est la densité moléculaire en x et σ la section efficace de diffusion Rayleigh qui s'écrit [18] :

$$\sigma_i(\lambda) = \frac{8\pi^3(n_i - 1)^2}{\lambda^4 N_L^2} \frac{3}{3 - 4\alpha_i} \quad (\text{I.21})$$

Avec λ la longueur d'onde en m, n_i l'indice de réfraction du milieu considéré, N_L le nombre de Loschmidt (densité moléculaire du milieu dans les conditions normales de température et de pression) et α_i le rapport de dépolarisation prenant en compte l'anisotropie des particules.

Remarque : à noter que ce facteur est négligeable dans le visible et a fortiori dans l'infrarouge. $\tau(\lambda, 0 \rightarrow x) = \exp[-\int_0^x \sum_i K_i(x') dx']$ est le facteur de transmission du milieu étudié entre $x = 0$ et $x = a$, on retrouve ce terme au carré, car en rétrodiffusion le signal fait un aller-retour dans le

milieu.

Les trois principaux phénomènes de diffusion mis en jeu dans un lidar sont présentés dans le tableau I.3 :

Processus	Caractéristiques	Section efficace de diffusion σ [cm^2/sr]
Diffusion élastique -Mie -Rayleigh	λ réception = λ émission Atomes, Molécules, Poussières, Aérosols	10^{-10} 10^{-26}
Fluorescence	λ réception \neq λ émission Molécules et Atomes	10^{-24}
Diffusion Raman	λ réception = λ émission Molécules	10^{-29}

TAB. I.3 – Principaux phénomènes de diffusion dans un Lidar

les principaux modes de fonctionnement d'un lidar sont :

- Le lidar rétrodiffusion élastique : dans ce cas, le facteur prépondérant est le coefficient de rétrodiffusion qui apporte des informations sur la densité des molécules du milieu étudié. En utilisant une source laser par exemple de type Yag, on peut mesurer les molécules au sein d'une flamme si la combustion ne contient pas de suies qui noieraient le signal. Comme expliqué dans la méthode de mesure par diffusion Rayleigh en connaissant la densité, on peut remonter au profil de température. C'est le **lidar Rayleigh**. On peut aussi étudier ce phénomène de rétrodiffusion en travaillant sur la diffusion Raman des molécules, qui elle donne accès à la concentration en connaissant le décalage spectral entre émission et réception.
- Le lidar Dial, dans ce type de lidar on s'intéresse au coefficient de transmission à travers le milieu étudié. Ce coefficient varie avec la longueur d'onde et avec la molécule. Pour utiliser cette technique du DIAL, il est préférable de posséder un laser accordable en fréquence assez puissant. En effet, on doit sélectionner une longueur d'onde qui sera absorbée par la molécule (λ_a) et une autre qui sera non absorbé (λ_0). C'est le rapport des deux signaux qui fournit une information quantitative sur la concentration des molécules éclairées par le faisceau laser.
- Dans le cas de l'étude des vents dans l'atmosphère, un lidar Doppler cohérent est souvent utilisé. Un laser CO_2 émettant à $10,6 \mu\text{m}$ est souvent utilisé car il présente une stabilité en fréquence et une cohérence temporelle. Le signal détecté est composé de signaux de rétrodiffusion mélangé à une fraction du laser émis. Cette technique de mesure est sensible au déplacement en fréquence par effet doppler lié aux mouvements des particules diffusantes.

2.2 Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non intrusives actives

Système de mesure	Principe physique	Avantages	Inconvénients et difficultés
Diffusion Rayleigh	Diffusion élastique incohérente	Appareillage simple Embarquable	Signal Faible Diffusion parasite Coût
Raman spontanée	Diffusion inélastique incohérente	Concentration des espèces Appareillage simple	Signal faible Interférence avec la fluorescence Coût
Raman DRASC	Diffusion non-linéaire	Signal intense Résolution spatiale	Interférences Appareillage complexe Coût
LIF	Diffusion inélastique incohérente	Signal intense Résolution spatiale Imagerie	Risque de saturation Terme de quenching Coût
Kurlbaum	Disparition des raies	Signal intense Appareillage simple	Acquisition lente Température de la source supérieure à celle du milieu Mesure de T globale
Lidar	Emission spontanée Diffusion élastique Absorption	Information sur la concentration Rapidité des mesures Résolution spatiale et temporelle	Incertitude sur les sections efficaces Energie du laser Coût

TAB. I.4 – Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non intrusives actives

2.3 Les méthodes passives

A l'inverse des méthodes actives, les méthodes passives ne nécessitent pas l'utilisation d'une source externe. Les méthodes sont basées sur des mesures optiques directes du milieu. Les gammes de température sont beaucoup moins restreintes. La détermination des températures est plus difficile car la luminance mesurée correspond à l'intégration des luminances le long de la ligne de visée. Pour avoir la température locale il faut trouver une méthode d'inversion. Cette méthode de mesure utilise les lois du rayonnement que l'on explicitera en détail dans le chapitre II.

2.3.1 La pyrométrie

Cette technique dérive de la mesure des températures des solides. On collecte le rayonnement thermique émis par un gaz que l'on considère à l'équilibre thermodynamique. Le flux collecté correspond à la luminance de la flamme [19]. On peut remonter à la température de la flamme en utilisant la luminance du corps noir (C.N). On peut écrire :

$$L_{\sigma} = \varepsilon_{\sigma} L_{\sigma,T}^0 \quad (\text{I.22})$$

Avec :

- σ le nombre d'onde,
- ε_{σ} l'émissivité monochromatique apparente du gaz,
- L_{σ} la luminance du gaz au nombre d'onde σ ,
- $L_{\sigma,T}^0$ [$W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm$] la luminance spectrale du corps noir au nombre d'onde σ [cm^{-1}] et à la température T [K].

La luminance spectrale du corps noir dans le vide au nombre d'onde σ et à la température T est donnée par la formule de Planck :

$$L_{\sigma,T}^0 = \frac{c_1 \sigma^3}{\exp(\frac{c_2 \sigma}{T}) - 1} \quad (\text{I.23})$$

Avec :

- $c_1 = 2hc_0^2 = 1,1910 \cdot 10^{-12}$ [$W.cm^{-2}.sr^{-1}$]
- $c_2 = \frac{hc_0}{k_B} = 1,4388$ [$K.cm$]
- $h = 6,6260693(11) \cdot 10^{-34}$ [$J.s$] la constante de Planck
- $k_B = 1,3806505(24) \cdot 10^{-23}$ [$J.K^{-1}$] la constante de Boltzmann
- $c_0 = 2,99792458 \cdot 10^8$ [$m.s^{-1}$] la célérité de la lumière dans le vide

Quand la mesure est monochromatique, on considère l'émissivité comme étant la moyenne de la distribution des émissivités. Cela nécessite l'utilisation d'abaques qui les recensent en fonction de la pression et de la température. Pour améliorer la mesure de température qui reste approximative dans ce cas, on peut utiliser un pyromètre à deux longueurs d'onde. En travaillant sur le rapport des signaux collectés, on peut faire abstraction de l'émissivité moyennée. Cette technique à deux longueurs d'onde est très utilisée dans l'industrie car elle permet de très bonnes estimations de température sur des flammes qui contiennent des particules.

2.3.2 Méthode de mesure par spectroscopie

Le rayonnement spectral émis par une flamme est fonction de sa température, de sa concentration, de sa pression ainsi que son épaisseur. Comme en pyrométrie, la mesure de la luminance

de la flamme implique que l'on considère un équilibre thermodynamique de celle-ci. Cette luminance dans le cas d'un spectre en émission peut être décrite par l'équation du transfert radiatif (E.T.R) qui prend en compte les termes sources de rayonnement ainsi que leur auto-absorption par couches de gaz successives (L'E.T.R sera présentée au chapitre suivant). La luminance mesurée sur la ligne de visée dépend des coefficients d'absorption monochromatique, de la distribution en température et de la concentration des espèces émissives. En utilisant un programme d'inversion de l'E.T.R, on peut remonter aux profils de températures et de concentrations par minimisation itérative entre la mesure et le résultat d'un modèle théorique. Le modèle théorique, qui repose sur des données spectrales doit être adapté aux conditions des mesures en température et pression. Puisque nous avons développé une méthode de ce type, une partie importante du manuscrit sera développée sur la validation de bases de données telles que HITRAN et HITEMP qui sont erronées à hautes pressions.

2.3.3 Spectroscopie d'émission

La méthode par spectroscopie d'émission est relativement simple. Pour l'étude d'un phénomène très court, il suffit de focaliser le rayonnement émis par la flamme sur les fentes d'un spectromètre réseau. On recueille le signal à l'aide d'une caméra CCD ou d'une barrette de détecteurs adaptée en gamme spectrale. Le spectromètre doit être suffisamment résolu (inférieur à $0,5 \text{ cm}^{-1}$) afin de restituer un maximum d'informations. C'est ce que présente les travaux de Johanna Vally [4] sur la tête de bande du CO_2 en sortie d'un turboréacteur Rolls-Royce. Ses travaux ont permis de montrer qu'il nous faut une résolution minimale de $0,5 \text{ cm}^{-1}$ pour pouvoir inverser. Les mesures en émission ont montré une bonne corrélation avec des mesures intrusives faites sur le même moteur. Le rapport d'intensité des raies spectrales doit présenter une bonne sensibilité à la température. Par exemple, la molécule de CO_2 présente un effet thermométrique remarquable au niveau de sa tête de bande située entre 2400 et 2380 cm^{-1} qui est adapté à ce type de mesure.

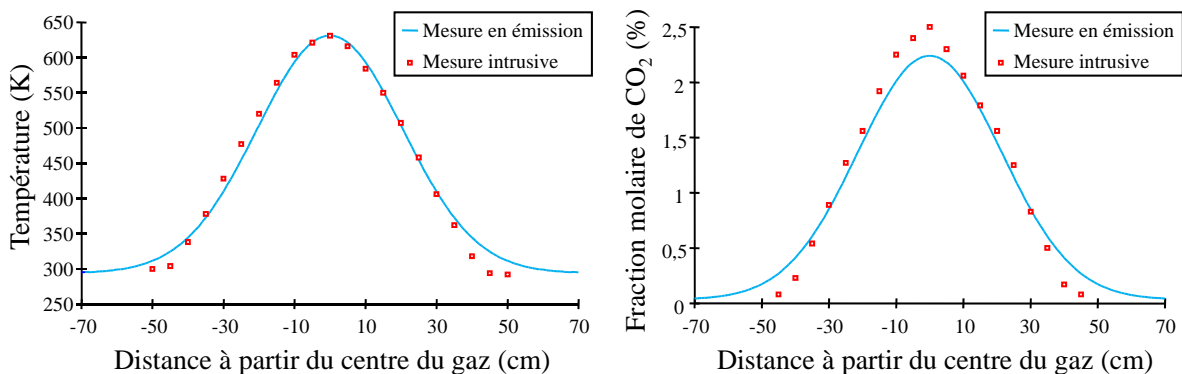


FIG. I.13 – Comparaison des profils de température (figure de gauche) et de la fraction molaire de gaz carbonique (figure de droite) mesurés par spectroscopie d'émission et par des mesures intrusives en sortie de turboréacteur Rolls-Royce [4]

Pour l'étude d'un phénomène stable, on peut utiliser un spectromètre à transformée de Fourier qui couvre un très large domaine spectral et non généralement une fenêtre comme les systèmes à réseau. Avec cet appareillage en analysant le spectre en longueur d'onde on peut choisir la molécule à étudier s'il n'y a pas de recouvrement de raies, cependant il nécessite un balayage. Dans notre étude sur les spectres de H_2O pour la validation de la base de données à hautes températures et pressions, on se servira d'un spectromètre à réseau car on étudiera des phénomènes

temporels très courts et non cycliques. La mesure en temps réel multispectrale est donc impossible.

2.3.4 Spectroscopie d'absorption

Cette méthode est basée sur la méthode de Kurlbaum. On peut déterminer la transmission d'un gaz directement sans passer par la luminance. Une source éclaire le volume de gaz à étudier. On recueille le rayonnement émis par la source à travers le gaz et le rayonnement de la source quand il n'y a pas de gaz. Le rapport du signal transmis par celui sans le gaz, nous donne la transmission de celui-ci à condition que la source soit modulée. La mesure en absorption est beaucoup plus sensible que celle en émission mais elle n'apporte pas d'informations sur la distribution de température et de concentrations dans le milieu.

L'utilisation des diodes lasers accordables [20] est idéale pour cette technique. Une source laser balaye une gamme spectrale très réduite avec une très grande résolution et permet d'obtenir en quelques minutes un spectre avec un seul détecteur.

Pour satisfaire ce processus, il faut choisir correctement la gamme spectrale de la molécule étudiée afin d'éviter le phénomène de recouvrements de raies. Pour deux raies (σ_1 et σ_2), en négligeant l'élargissement Doppler par rapport à celui collisionnel, on peut en travaillant sur le rapport d'intensité de ses raies, déterminer la température par la formule [21] :

$$T = \frac{T_0}{1 - \frac{k_B T_0}{hc(E_{i_1} - E_{i_2})} \ln \left(\frac{\ln(\tau_{\sigma_1}) S_{\sigma_2}^N(T_0) \gamma_{L_1}}{\ln(\tau_{\sigma_2}) S_{\sigma_1}^N(T_0) \gamma_{L_2}} \right)} \quad \text{avec} \quad \gamma_L = \gamma_{L_0} \frac{P}{P_0} \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (\text{I.24})$$

Avec :

- E_i le niveau d'énergie bas de la transition [cm^{-1}],
- S_{σ}^N l'intensité d'absorption [$cm^{-1} \cdot (molcules \cdot cm^{-2})$],
- γ_L la demi-largeur à mi-hauteur de la raie [cm^{-1}].

Cette relation n'est valable que si :

$$\frac{|\sigma_1 - \sigma_2|}{\sigma_1} \ll 1 \quad (\text{I.25})$$

On peut trouver ce paramètre γ_L dans les bases de données spectroscopiques. Une fois la température connue on peut déterminer la concentration à partir de la valeur du coefficient d'absorption monochromatique correspondant à l'épaisseur de la couche de gaz grâce à la formule :

$$K_{\sigma}(\sigma_j, T, C_i, P_{Tot}) = -\frac{\ln(\tau_{\sigma_j})}{d} \quad (\text{I.26})$$

De plus on a :

$$K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot}) = \sum_j S_{\sigma_j}^N(T) f_j^i(\sigma - \sigma_j, T, C_i, P_{Tot}) C_i \quad (\text{I.27})$$

En utilisant une base de données telle que HITRAN ou HITEMP (décrit dans le chapitre III) et en procédant par inversion, on peut déterminer la concentration de l'espèce i considérée grâce à son spectre d'absorption.

Le rapport d'intensité des raies spectrales doit présenter une bonne sensibilité à la température. Par exemple, la molécule de CO_2 [22] présente un effet thermométrique remarquable au niveau de sa tête de bande située entre 2400 et 2380 cm^{-1} qui est adapté à ce type de mesure.

2.3.5 Couplage entre une spectroscopie d'absorption et d'émission

Dans le cas de phénomènes stables, on peut coupler une mesure en émission avec une mesure en absorption. Une méthode a été développée par Bates, Morrison and al [23]. En supposant le volume de gaz étudié d'épaisseur d homogène en température et concentration, on mesure sa luminance sur la ligne de visée $L_{\sigma}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T)$. En comparant cette mesure à celle d'un corps noir $L_{\sigma T}^0$ en prenant en compte le coefficient monochromatique $K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})$ du gaz on peut déterminer sa température. Ce coefficient correspond aux propriétés radiatives du volume total de gaz le long de la ligne de visée. On peut écrire d'après la loi de Kirchhoff :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow x = d) + K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot}) = 1 \quad (I.28)$$

D'ou :

$$L_{\sigma}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T) = [1 - \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow x = d)] L_{\sigma T}^0 \quad (I.29)$$

En posant :

$$L_{\sigma,m}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T) = \frac{L_{\sigma}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T)}{1 - \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow x = d)} \quad (I.30)$$

On peut réécrire la formule (I.26) par :

$$L_{\sigma,m}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T) = L_{\sigma T}^0 \quad (I.31)$$

$L_{\sigma,m}(0 \rightarrow x = d, \sigma, T)$ est déterminé expérimentalement par deux mesures successives le long de la ligne de visée, une mesure en émission directe, et une mesure en absorption en plaçant la source externe en 0. En déterminant la température du corps noir dont la luminance se rapproche le plus de celle mesurée, on en déduit la température du gaz puis sa concentration de la même manière que dans la méthode par spectroscopie d'absorption.

Cette méthode est très simple de mise oeuvre si l'on dispose d'un système stationnaire, c'est à dire qui ne dépend pas du temps pour effectuer les deux mesures. Par contre, pour ce qui est de la mesure en absorption elle n'est pas forcément adaptée en milieu industriel car elle demande beaucoup de modification géométrique afin de placer la source externe à l'endroit désiré de la mesure. La température déterminée par cette méthode représente une température moyenne le long de la ligne de visée.

2.4 Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non-intrusives passives

Système de mesure	Principe physique	Avantages	Inconvénients et difficultés
Pyrométrie	Emission naturelle de rayonnement	Mise en œuvre simple	Température approximée Distribution des émissivités
Spectroscopie d'émission	Emission naturelle de rayonnement	Mise en œuvre simple sur une ligne de visée Détermination de la température et concentration	Résolution spatiale Inversion
Spectroscopie d'absorption	Transmission d'un volume de gaz	Signal intense Pas besoin de delta T entre le gaz et le milieu	Source externe Résolution spatiale Inversion
Couplage émission/absorption	Emission naturelle de rayonnement Transmission d'un volume de gaz	Informations complémentaires grâce au couplage	Difficile de réaliser les deux mesures en même temps

TAB. I.5 – Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non-intrusives passives

Conclusion : choix de la méthode de mesure

Dans ce chapitre, nous avons explicité les différentes méthodes intrusives ou non pour mesurer la température des produits de combustion ou température de flamme. Les avantages et inconvénients de chaque méthode ont été présentés dans les tableaux I.2, I.4 et I.5.

Les méthodes intrusives sont assez limitées en température (généralement $\leq 1700\text{ K}$) et présentent l'inconvénient de mesurer une température qui n'est pas dite "vraie". C'est pourquoi on s'orientera naturellement vers les mesures non-intrusives qui sont plus adaptées au milieu industriel et ne nécessitent pas de modifications structurelles du système.

Dans notre étude deux méthodes de mesure vont être présentées. Une méthode de mesure "sans contact passive" : **la spectroscopie d'émission** qui validera ou non les paramètres spectroscopiques des bases de données HITRAN ou HITEMP.

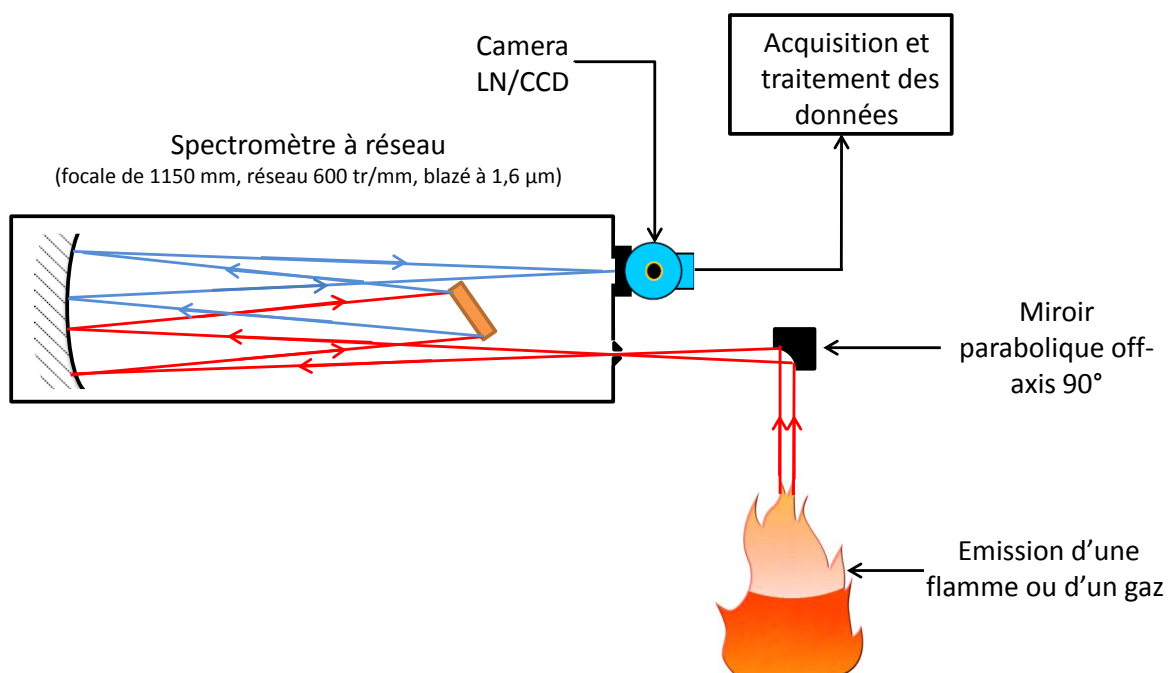


FIG. I.14 – Schéma de principe des mesures spectrales en émission

On effectuera des mesures de luminance sur le spectre de H_2O sur une ligne de visée d'une cellule à déflagration en fonction de ses paramètres intrinsèques de remplissage tel que la pression, la température et la concentration finale de combustion. Cette luminance sera intégrée sur toute l'épaisseur de gaz de la cellule, les résultats seront comparés avec les spectres modélisés dans le but de valider les paramètres spectroscopiques. Le laboratoire LEME possède une solide expérience en la matière avec en particulier les travaux de thèse de J.Vally [4], P.Chelin [14] et D.Fournet [24].

Les résultats des spectres de H_2O serviront dans nos travaux à l'inversion des données spectroscopiques à hautes températures et hautes pressions pour en retrouver leur profil. Nous nous sommes orientés vers la molécule de H_2O car elle émet fortement ce qui est une condition de la détection en spectroscopie d'émission. Elle est aussi présente dans tous les produits de combustion. Ces données spectroscopiques sur H_2O sont particulièrement importantes pour le développement de nouveaux moteurs à hydrogène par exemple.

Précédemment au laboratoire LEME, les spectres d'émission issus de la tête de bande du CO_2 étaient inversés pour déterminer leurs profils de concentration et de température. On apportait donc une quantité limitée d'informations qui ne permettait pas d'identifier des profils complexes (pas plus de 7 paramètres distincts en température et concentration). Nous utiliserons une méthode innovante où l'on couplera une mesure en émission directe de l'écoulement avec une mesure Lidar rétrodiffusée afin d'augmenter la résolution spatiale.

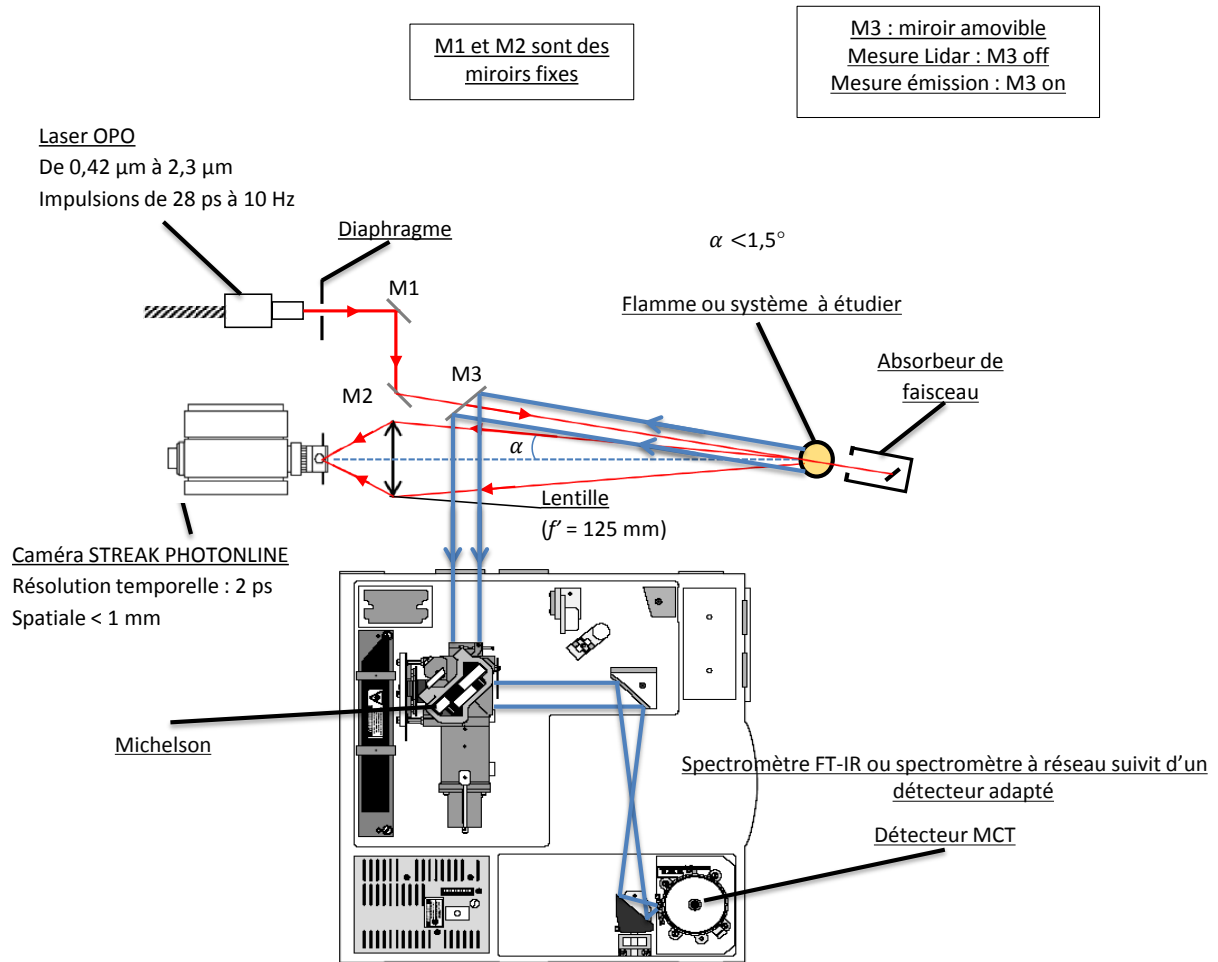


FIG. I.15 – Schéma de principe de la mesure conjuguée (Emission et lidar rétrodiffusé)

La mesure Lidar rétrodiffusée va apporter une résolution spatiale que nous ne pouvions obtenir avec l'émission directe ce qui nous permettra d'étudier des profils beaucoup plus complexes. Un brevet a été déposé par le LEME en mai 2009 [5]. Ces mesures conjuguées permettront à terme d'obtenir instantanément les profils de température et de concentration des gaz de combustion le long d'une ligne de visée par inversion.

Rappels théoriques sur le rayonnement thermique et la combustion

Ce chapitre a pour objectif d'introduire les principes élémentaires du rayonnement thermique d'une flamme de combustion. Nous introduirons aussi des notions sur la spectroscopie moléculaires nécessaires à la compréhension du spectre de la vapeur d'eau.

Après quelques définitions sur le rayonnement thermique, nous expliciterons en détail l'équation de transfert radiatif (E.T.R) dans un milieu semi-transparent, nous permettant de décrire le rayonnement mesuré en bout d'une colonne de gaz.

Enfin, nous présenterons des généralités sur la combustion et sur les différents types de flamme.

1 Le rayonnement thermique

Le rayonnement thermique est l'un des trois modes fondamentaux de transfert de chaleur avec la conduction et la convection. Lorsqu'une énergie thermique est échangée d'un corps vers un autre, indépendamment de son état liquide, solide ou gazeux, cette énergie provient de l'agitation thermique des molécules ou des constituants fondamentaux (atomes, électrons libres...). Le degré d'agitation dépend de leur liberté de mouvement possible.

Dans le cas d'un échange par conduction, deux milieux sont en contact et la chaleur se propage par interaction directe entre particules voisines. Si nous sommes en présence de deux gaz, ce transfert d'énergie se fera par collisions entre molécules. Dans le cas d'une convection, l'un des deux milieux se déplace par rapport à l'autre, le transfert de chaleur s'effectue par contact mais la présence d'un écoulement améliore le taux de transfert thermique.

Le rayonnement est lui un mode de transfert d'énergie sans support matériel par ondes électromagnétiques ou photons. La propagation de cette énergie peut s'effectuer à distance dans le vide ainsi que des milieux transparents ou semi-transparentes. Nous établirons l'équation du transfert radiatif dans ce type de milieu.

1.1 Nature et définition du rayonnement thermique

Tous les corps ou milieux dans un état d'équilibre thermodynamique local émettent et absorbent continuellement du rayonnement thermique. Les molécules, atomes ou électrons libres qui constituent le milieu peuvent perdre une partie de leur énergie par émission spontanée.

A l'inverse, un corps peut absorber un rayonnement lorsqu'il reçoit celui-ci à sa surface. La partie du rayonnement absorbée se retrouve dans l'énergie cinétique des constituants. Pour décrire la nature physique du rayonnement, on s'appuie sur la théorie de Maxwell (1864) qui considère que l'énergie rayonnée par la matière se propage sous forme d'ondes électromagnétiques. Cette théorie qui couvre un domaine spectral compris entre $0,1 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$ prend bien en compte les phénomènes de réflexion, réfraction et de transmission, mais n'est pas suffisante pour décrire les processus d'absorption et d'émission de la matière sur cette plage. La théorie de Maxwell prévoit que pour les courtes longueurs d'onde, l'énergie augmenterait indéfiniment, ce qui est incohérent avec les expériences réalisées.

Avec les travaux de Planck (1900) et sa théorie des quotas d'énergie, il a pu être montré que les échanges d'énergie entre le rayonnement électromagnétique et la matière se font par quantité discrètes (les photons). Cette quantité est proportionnelle à la fréquence du rayonnement électromagnétique. C'est l'aspect corpusculaire du rayonnement. Pour décrire correctement le rayonnement thermique, il faut tenir compte de ces deux processus, c'est pourquoi on parle de dualité onde corpuscule.

Les ondes électromagnétiques peuvent être décomposées en un spectre d'ondes élémentaires périodiques et monochromatiques tel que :

- la fréquence ν en $[s^{-1}]$
- la longueur d'onde λ usuellement mesurée en $[\mu\text{m}]$
- le nombre d'onde σ usuellement mesurée en $[cm^{-1}]$

On peut relier ces grandeurs entre elles par la formule :

$$\nu = \frac{c}{\lambda} = c\sigma \quad (\text{II.1})$$

Avec c la vitesse de l'onde dans le milieu de propagation d'indice de réfraction $n_r = c_0/c$ ou $c_0 = 2,998.10^8 \text{ m/s}$ la vitesse de la lumière dans le vide.

Chaque onde ou photon transporte une quantité d'énergie que l'on peut décrire par la formule :

$$E = h\nu \quad [J] \quad (\text{II.2})$$

Avec h la constante de Planck $h = 6,626 \cdot 10^{-34}$ en $[J.s]$.

Cette énergie reste invariante au cours de sa propagation et constitue la caractéristique du rayonnement. Les ondes électromagnétiques ne couvrent qu'une partie du rayonnement (FIG II.1).

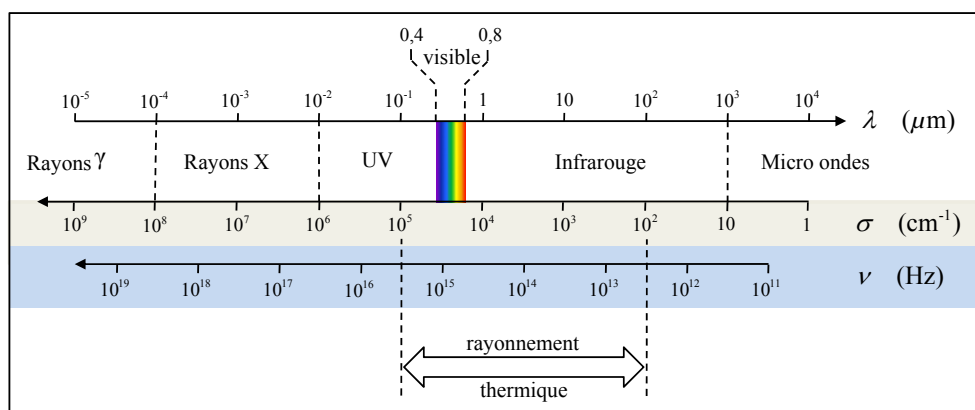


FIG. II.1 – Domaines du spectre électromagnétique.

Il faudra aussi distinguer des phénomènes comme la luminescence qui se trouve dans le même domaine spectral que le rayonnement thermique (ultraviolet, visible et infrarouge).

Dans la suite du manuscrit, on utilisera de préférence le nombre d'onde σ en $[\text{cm}^{-1}]$ que l'on peut exprimer d'après la longueur d'onde en micron par :

$$\sigma_{\text{cm}^{-1}} = \frac{10\,000}{\lambda_{\mu\text{m}}} \quad (\text{II.3})$$

On exprimera nos distances en cm et nos surfaces en cm^2 .

1.2 Rayonnement des corps opaques

Le transport d'énergie thermique entre deux corps ou milieux dépend de nombreux facteurs tels que leur température, leur concentration, leur forme, la structure de leur surface... On sait que tout corps émet un rayonnement, quand celui-ci est capté par un autre corps ou milieu, une partie du rayonnement est réfléchi ρ , une autre absorbée α , et une autre partie peut être transmise à travers la matière τ .

Pour un corps opaque, il n'y a pas de transmission possible à travers la matière, c'est une caractéristique due à son épaisseur. Sur des corps opaques, lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement thermique on peut assimiler α , ρ et l'émission à des phénomènes de surface.

Les grandeurs radiométriques nécessaires à la compréhension de ses réactions de surface seront définies en considérant qu'entre deux corps en échange nous sommes dans un milieu qui est le vide.

1.2.1 Rayonnement d'une source élémentaire dans l'espace

On considère une source de centre O et de petite surface dS qui rayonne. La source est suffisamment petite pour être considérée plane, et homogène en température et structure. Elle émet un flux d'énergie $d\phi^e$ [en Watts] dans toutes les directions. On peut représenter ce flux d'énergie par un espace hémisphérique qui l'entoure.

Le flux énergétique $d\phi^e$ est total, c'est à dire qu'il est intégré sur l'ensemble du domaine spectral de la source. On crée une grandeur radiométrique qui est l'émittance M , qui permet de comparer les sources entre elles. M est le rapport entre le flux émis $d\phi^e$ par élément de surface dans toutes les directions et l'aire dS :

$$M = \frac{d\phi^e}{dS} \text{ [W.cm}^{-2}\text{]} \quad (\text{II.4})$$

Le flux d'énergie émis $d\phi^e$ est fonction de la direction, il dépend de l'angle d'émission. Afin d'exprimer cette variation directionnelle, on utilise un système de coordonnées sphériques dans un espace hémisphérique (Figure II.2). On note θ l'angle polaire mesuré entre la normale \hat{n} et l'élément de surface dS , et φ est l'angle azimutal qui repère la direction de visée.

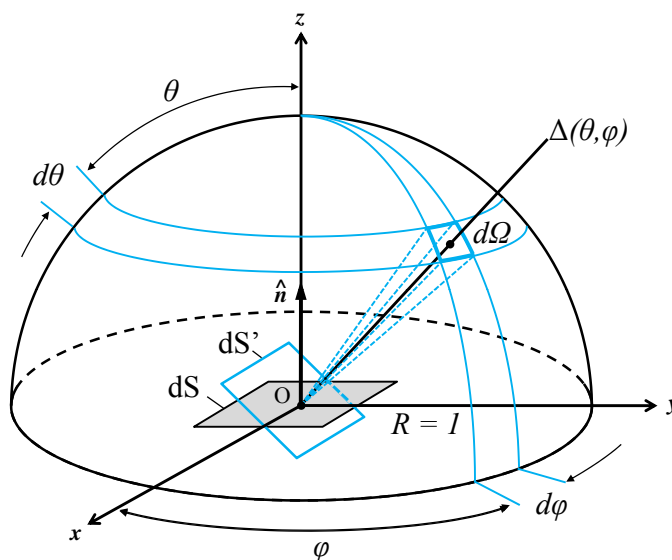


FIG. II.2 – Direction d'émission et angle solide pour l'hémisphère de rayon unité.

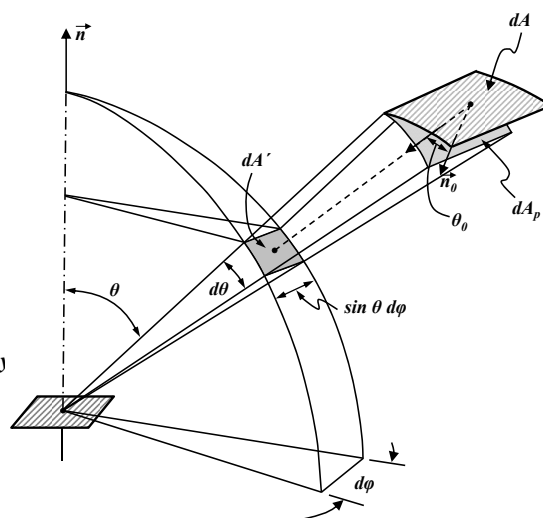


FIG. II.3 – Définition de l'angle solide.

On peut définir la luminance énergétique d'un corps comme le flux énergétique émis $d\phi^e(\theta, \varphi)$ d'une surface élémentaire dS' et contenu dans l'angle solide élémentaire $d\Omega$ dans la direction repérée par l'angle polaire.

dS' est la surface projetée perpendiculairement à la direction de visée d'où $dS' = dS \cos\theta$.

$$L(\theta, \varphi) = \frac{d\phi^e(\theta, \varphi)}{dS \cos\theta d\Omega} \text{ [W.cm}^{-2}\text{.sr}^{-1}\text{]} \quad (\text{II.5})$$

L'angle solide élémentaire est défini comme l'aire $d\Omega$ de la surface interceptée par la sphère de centre O et de rayon unité d'où $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$.

La luminance permet de comparer la puissance rayonnée par des sources dans une direction, ou d'une même source dans des directions différentes.

1.2.2 Grandeurs radiométriques spectrales

La distribution spectrale du rayonnement thermique n'étant pas uniforme, il est nécessaire de définir des grandeurs spectrales pour chaque grandeur totale. Pour les distinguer des précédentes, les grandeurs spectrales sont affectées d'un indice correspondant à l'unité spectrale choisie. La grandeur monochromatique G_σ dérivant de la grandeur totale G pour le nombre d'onde σ dans l'intervalle élémentaire $d\sigma$ est donnée par la relation suivante :

$$G_\sigma(\sigma) = \frac{dG(\sigma)}{d\sigma} \quad (\text{II.6})$$

Ainsi on note respectivement $M_\sigma(\sigma)$ et $L_\sigma(\sigma)$ l'émittance et la luminance spectrale :

$$M_\sigma(\sigma) = \frac{d\phi^e(\sigma)}{dS d\sigma} = \frac{d\phi_\sigma^e(\sigma)}{dS} \quad [W.cm^{-2}.cm] \quad (\text{II.7})$$

$$L_\sigma(\theta, \varphi, \sigma) = \frac{d\phi^e(\theta, \varphi, \sigma)}{dS \cos\theta d\Omega d\sigma} = \frac{d\phi_\sigma^e(\theta, \varphi, \sigma)}{dS \cos\theta d\Omega} \quad [W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm] \quad (\text{II.8})$$

La grandeur totale est reliée à la grandeur spectrale par l'intégration de cette dernière sur l'ensemble du spectre :

$$G = \int_0^\infty G_\sigma(\sigma) d\sigma \quad (\text{II.9})$$

1.2.3 Définition du Corps Noir

Pour caractériser le rayonnement émis par les corps opaques suivant leur structure de surface, il est nécessaire d'utiliser un corps de référence : **le corps noir**.

Par définition, on appelle corps noir, un corps qui absorbe totalement tout le rayonnement qu'il reçoit, quelles que soient la longueur d'onde et l'incidence. Il n'y a donc aucune énergie transmise, ni réfléchi. On l'appelle aussi corps noir car à des températures inférieures à 1000 K il apparaît noir à l'œil.

En plaçant un corps noir homogène en température T_{CN} dans une "enceinte noire" elle-même homogène en température T_E , on peut déduire une caractéristique essentielle du corps noir. Le système étant isolé du milieu extérieur, en appliquant le second principe de la thermodynamique, la conservation de l'énergie implique que le corps noir et l'enceinte noire vont tendre vers une température d'équilibre après un certain temps. Quand l'équilibre est atteint chaque élément de surface de l'enceinte et du corps noir rayonne autant d'énergie qu'il en absorbe. Le corps noir étant un absorbeur parfait, il émet également le maximum d'énergie pour une température donnée.

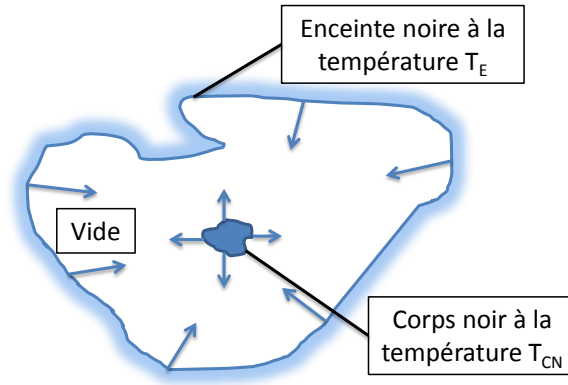


FIG. II.4 – Schéma du rayonnement entre le corps noir et l'enceinte noire.

Sa caractéristique principale est qu'il rayonne plus que n'importe quel corps à la même température, ce qui entraîne qu'un corps réel rayonnera moins d'énergie pour atteindre le même équilibre thermique. Peu importe la position du corps noir dans l'enceinte noire, il émet le même rayonnement, il est donc à la même température d'équilibre (FIG II.4).

Cela traduit le caractère isotrope du rayonnement. En réalité, un corps noir n'existe pas, on peut en laboratoire réaliser un système s'en rapprochant en utilisant une enceinte de parois opaques et isothermes. En perçant un orifice à une extrémité de la cavité tel que sa dimension soit très petite devant la taille de la cavité (si $\frac{S_{\text{Orifice}}}{S_{\text{Cavite}}} > \frac{1}{10} \Rightarrow \epsilon > 0,98$, ϵ est défini au paragraphe 1.2.5), on crée un absorbeur quasi parfait.

Dans la suite du manuscrit, les grandeurs radiométriques relatives au corps noir porteront l'exposant ⁰.

1.2.4 Luminance du Corps Noir

Le caractère isotrope du rayonnement nous permet d'écrire que la luminance totale et spectrale d'un corps noir ne dépendent pas de la direction d'émission. À partir de la théorie des quanta d'énergie introduite par Planck, on peut définir une fonction de la distribution spectrale du rayonnement : **la loi de Planck**. En utilisant la statistique de Bose-Einstein qui rend compte des états des photons et en supposant que l'équilibre thermodynamique est atteint entre la cavité et les parois, on peut déterminer la luminance monochromatique du corps noir par élément de surface dans un angle solide en fonction de la température.

On exprime la loi de Planck dans le vide par :

$$L_{\sigma}^{\circ}(\sigma, T) = L_{\sigma T}^{\circ} = \frac{c_1 \sigma^3}{\exp\left(\frac{c_2 \sigma}{T}\right) - 1} \quad [W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm] \quad (\text{II.10})$$

où les constantes de rayonnement c_1 et c_2 sont définies par :

$$c_1 = 2hc_0^2 = 1,1910.10^{-12} \quad [W.cm^2.sr^{-1}]$$

$$c_2 = hc_0/k_B = 1,4388 \quad [K.cm]$$

avec $k_B = 1,3806.10^{-23} \quad [J.K^{-1}]$ la constante de Boltzmann.

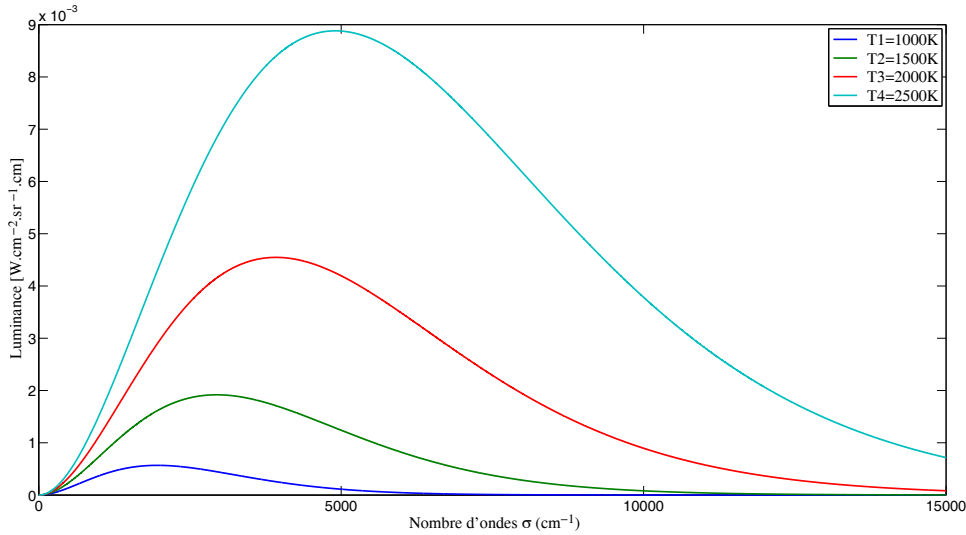


FIG. II.5 – Luminance spectrale pour 4 températures différentes.

La figure II.5 montre l'évolution de la luminance spectrale pour différentes températures en fonction du nombre d'onde. Plus la température augmente, plus la luminance croît. On remarque que le maximum d'énergie se décale vers les hauts nombres d'onde donc les plus hautes fréquences avec la température .

Grâce à la loi de déplacement de Wien, on peut repérer ce point particulier de la répartition d'énergie rayonnée par le corps noir en dérivant la loi de Planck par rapport à la longueur d'onde, on trouve :

$$\lambda_{max}T = \frac{hc}{5k} \approx 2897,7685 \text{ } [\mu\text{m}.K] \quad (\text{II.11})$$

$$\lambda_{max} = \frac{2898}{T} \text{ } [\mu\text{m}] \quad (\text{II.12})$$

1.2.5 Rayonnement des corps réels

Un corps réel rayonne moins d'énergie que le corps noir à la même température. Afin de les caractériser on introduit une efficacité d'émission. Cette efficacité d'émission est aussi appelée facteur d'émission ou efficacité monochromatique. On peut définir ce facteur suivant un rayonnement émis total ou spectral ou directionnel que l'on notera par $\varepsilon(T)$, $\varepsilon_{\sigma}(\sigma, T)$, et $\varepsilon_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T)$. On définit ici le facteur d'émission directionnel par :

$$\varepsilon_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T) = \frac{L_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T)}{L_{\sigma T}^{\circ}} \quad (\text{II.13})$$

Avec $L_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T)$ la luminance spectrale directionnelle du corps étudié, et $L_{\sigma T}^{\circ}$ la luminance spectrale du corps noir à la même température. Par définition, l'émissivité du corps noir est égale à 1 ce qui entraîne que pour tout corps réel $\varepsilon < 1$.

1.2.6 Réception d'un rayonnement par un corps réel

Lorsqu'un corps réel reçoit un rayonnement total incident ($d\phi^i$), une partie de celui-ci est réfléchi ($d\phi^r$), une partie est absorbée sous forme de chaleur ($d\phi^a$) et une partie est transmise ($d\phi^T$).

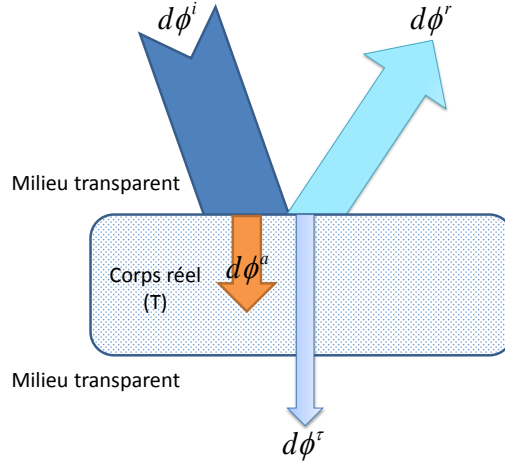


FIG. II.6 – Réception du rayonnement thermique par un corps réel à la température T .

Ainsi les facteurs de réflexion (réflectivité) et d'absorption (absorptivité) sont définis par les fractions des flux réfléchis et absorbés.

$$\begin{aligned}
 - \text{facteur de réflexion totale} \quad \rho(T) &= \frac{d\phi^r}{d\phi^i} \\
 - \text{facteur d'absorption totale} \quad \alpha(T) &= \frac{d\phi^a}{d\phi^i} \\
 - \text{facteur de transmission totale} \quad \tau(T) &= \frac{d\phi^\tau}{d\phi^i}
 \end{aligned}$$

À l'équilibre thermodynamique, la conservation de l'énergie implique

$$\rho(T) + \alpha(T) + \tau(T) = 1 \quad (\text{II.14})$$

Ces facteurs sont exprimés ici de manière totale, mais ils peuvent varier en fonction du nombre d'onde et de la température, on peut réécrire :

$$\rho_\sigma(\sigma, T) + \alpha_\sigma(\sigma, T) + \tau_\sigma(\sigma, T) = 1 \quad (\text{II.15})$$

Dans le cas de corps opaques réels, il n'y a aucun rayonnement transmis $\tau_\sigma = 0$, on peut donc réécrire les relations II.14 et II.15 par :

$$\rho(T) + \alpha(T) = 1 \quad (\text{II.16})$$

$$\rho_\sigma(\sigma, T) + \alpha_\sigma(\sigma, T) = 1 \quad (\text{II.17})$$

À l'inverse lorsqu'on dit qu'un corps est transparent, on a $\tau = 1$, il n'y a donc pas d'interaction avec le rayonnement. On travaille principalement sur des milieux semi-transparentes pour lesquelles τ varie entre 0 et 1 suivant le nombre d'onde.

On a vu dans le paragraphe précédent que l'émissivité peut dépendre de la direction d'émission, l'absorptivité peut elle aussi dépendre de la direction selon laquelle le rayonnement incident est absorbé. On considère une sphère de rayon R centrée sur un corps opaque de surface dS qui reçoit la luminance spectrale $L_\sigma^i(\theta, \varphi, \sigma)$ traversant l'élément de surface de la sphère dS'' comme sur la Figure II.7(a). En considérant l'intervalle $d\sigma$ centré autour de σ contenu dans l'angle solide $d\Omega''$, le flux d'énergie que reçoit l'élément de surface dS dans la direction (θ, φ) est :

$$d\phi_\sigma^i(\theta, \varphi, \sigma)d\sigma = L_\sigma^i(\theta, \varphi, \sigma)dS''d\Omega''d\sigma = L_\sigma^i(\theta, \varphi, \sigma)dS''\frac{dS\cos\theta}{R^2}d\sigma \quad (\text{II.18})$$

Où $dS \cos \theta / R^2$ est l'angle solide $d\Omega''$ sous-tendu par dS vu de dS'' .

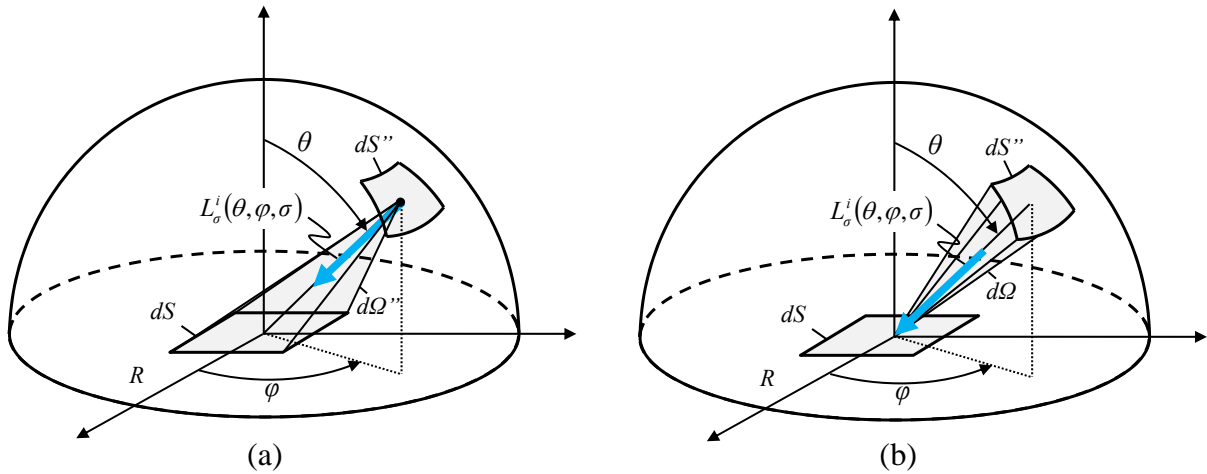


FIG. II.7 – Absorption équivalente d'un rayonnement pour deux angles solides : $d\Omega''$ et $d\Omega$.

Le milieu qui entoure l'élément de surface dS au sein de la sphère est considéré comme non absorbant, c'est-à-dire que la luminance ne varie pas entre dS'' et dS . L'énergie incidente reçue en dS depuis dS'' vue par l'angle solide $d\Omega''$ peut être considérée comme arrivant également de l'angle solide $d\Omega$ (Figure II.7(b)).

$$dS'' \frac{dS \cos \theta}{R^2} = \frac{dS''}{R^2} dS \cos \theta = d\Omega dS \cos \theta \quad (\text{II.19})$$

On peut ainsi écrire l'équation II.18 par :

$$d\phi_{\sigma}^i(\theta, \varphi, \sigma) d\sigma = L_{\sigma}^i(\theta, \varphi, \sigma) dS \cos \theta d\Omega d\sigma \quad (\text{II.20})$$

Le facteur d'absorption directionnel spectral $\alpha_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T)$ est défini comme étant le rapport entre la fraction du flux d'énergie absorbée $d\phi_{\sigma}^a(\theta, \varphi, \sigma, T) d\sigma$ et le flux d'énergie incidente $d\phi_{\sigma}^i(\theta, \varphi, \sigma) d\sigma$:

$$\alpha_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T) = \frac{d\phi_{\sigma}^a(\theta, \varphi, \sigma, T) d\sigma}{L_{\sigma}^i(\theta, \varphi, \sigma) dS \cos \theta d\Omega d\sigma} \quad (\text{II.21})$$

Ce facteur dépend de la nature des matériaux alors que les autres facteurs notamment d'absorption varient en fonction des distributions spatiales et spectrales du rayonnement incident.

Remarque : dans le cas des flammes, on considère qu'il n'y a pas de réflectivité, on a :

$$\alpha(T) + \tau(T) = 1 \quad (\text{II.22})$$

$$\alpha_{\sigma}(\sigma, T) + \tau_{\sigma}(\sigma, T) = 1 \quad (\text{II.23})$$

1.2.7 Relation entre émission et absorption : la loi de Kirchhoff

On peut relier le facteur d'émission directionnelle avec le facteur d'absorption directionnelle par la loi de Kirchhoff. On considère un élément de surface dS qui rayonne dans une enceinte dans la direction (θ, φ) compris dans l'intervalle $d\sigma$ vu par l'angle solide $d\Omega$, on peut écrire le flux émis par :

$$d\phi_{\sigma}^e(\theta, \varphi, \sigma, T) d\sigma = \varepsilon_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T) L_{\sigma T}^{\circ} dS \cos \theta d\Omega d\sigma \quad (\text{II.24})$$

Lorsque l'enceinte est à la même température que l'élément de surface, nous nous trouvons dans un état d'équilibre thermodynamique parfait (E.T.P). Dans ces conditions la puissance émise par l'élément de surface dS doit être égale à la puissance reçue dans la même direction. À l'aide des équations II.21 et II.24 et en posant $L_{\sigma}^i(\theta, \varphi, \sigma) = L_{\sigma T}^{\circ}$ on peut en déduire :

$$\varepsilon_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T) = \alpha_{\sigma}(\theta, \varphi, \sigma, T) \quad (\text{II.25})$$

C'est la loi de Kirchoff définie pour une enceinte isotherme à l'équilibre thermodynamique. Si la température de l'enceinte évolue, la loi n'est plus valable car l'équilibre est rompu mais elle reste valable dans un cas d'un équilibre thermodynamique local (E.T.L).

1.3 Rayonnement dans un milieu transparent

Un milieu transparent est assimilé à un milieu inerte, c'est à dire que le rayonnement se propage sans altération. Dans les paragraphes précédents, nous avons pris le vide comme appartenant à un tel milieu où il n'y a ni émission ni absorption. La luminance se propage donc dans un milieu transparent sans variation dans une direction quelconque.

Si on considère un élément de surface dS à la température T qui émet un rayonnement dans un milieu transparent vers un élément de surface dS_1 situé à la distance R_1 ou vers un élément de surface dS_2 situé à la distance R_2 . Les éléments de surface dS_1 et dS_2 étant identiques, on peut écrire que la puissance rayonnée vers dS_1 par dS dans la direction \vec{n} est :

$$d\phi_{\sigma,n,1}(\sigma)d\sigma = L_{\sigma,n,1}(\sigma, T)dS_1 d\Omega_1 d\sigma = L_{\sigma,n,1}(\sigma, T)dS_1 \frac{dS}{R_1^2} d\sigma$$

Avec :

$$d\Omega = \frac{dS}{R_1^2}$$

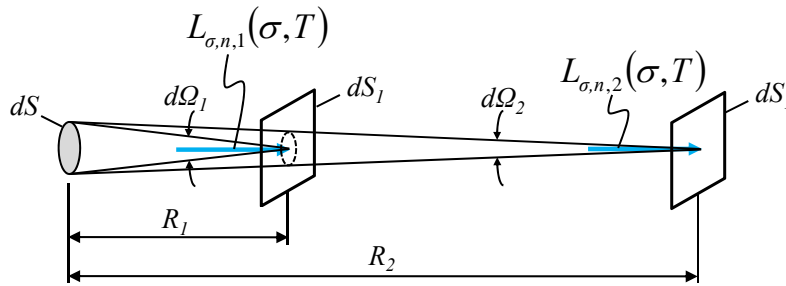


FIG. II.8 – Propagation de la luminance dans un milieu transparent.

De même la puissance rayonnée par dS vers dS_2 dans la direction \vec{n} est :

$$d\phi_{\sigma,n,2}(\sigma)d\sigma = L_{\sigma,n,2}(\sigma, T)dS_1 d\Omega_2 d\sigma = L_{\sigma,n,2}(\sigma, T)dS_1 \frac{dS}{R_2^2} d\sigma$$

On considère maintenant que S est une source sphérique de rayon R qui émet le même rayonnement dans toutes les directions. La puissance reçue pour une sphère de rayon R_1 est :

$$d\phi_{\sigma,S}(\sigma)d\sigma/4\pi R_1^2$$

De même pour un rayon R_2 :

$$d\phi_{\sigma,S}(\sigma)d\sigma/4\pi R_2^2$$

En appliquant cela à la figure II.8 on peut écrire que le rapport d'énergies rayonnées en R_1 et R_2 est :

$$\frac{d\phi_{\sigma,n,1}(\sigma)}{d\phi_{\sigma,n,2}(\sigma)} = \frac{L_{\sigma,n,1}(\sigma, T) R_2^2}{L_{\sigma,n,2}(\sigma, T) R_1^2} \quad (\text{II.26})$$

$$\frac{d\phi_{\sigma,n,1}(\sigma)}{d\phi_{\sigma,n,2}(\sigma)} = \frac{\frac{d\phi_{\sigma,S}(\sigma)}{4\pi R_1^2} dS_1}{\frac{d\phi_{\sigma,S}(\sigma)}{4\pi R_2^2} dS_1} = \frac{R_2^2}{R_1^2} \quad (\text{II.27})$$

À partir des relations II.26 et II.27 on peut réécrire :

$$L_{\sigma,n,1}(\sigma, T) = L_{\sigma,n,2}(\sigma, T) \quad (\text{II.28})$$

Cela montre bien que dans un milieu transparent, la luminance ne varie pas dans une direction de propagation. Dans les paragraphes suivants, nous nous intéresserons au rayonnement dans les milieux semi-transparentes et leur interaction avec celui-ci.

1.4 Rayonnement dans un milieu semi-transparent

Les gaz diatomiques simples (O_2, N_2, \dots) sont pratiquement transparents au rayonnement jusqu'à des températures de l'ordre de quelques milliers de Kelvin. D'autres gaz comme la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone contenu dans l'atmosphère sont transparents dans des domaines spectraux et absorbants pour d'autres. Ce sont des milieux semi-transparentes.

Un gaz semi-transparent est donc un émetteur de rayonnement. Dans un tel milieu, l'absorption et l'émission ne sont plus considérées comme des phénomènes de surface mais de volume. Dans la suite de ce chapitre, on supposera que le milieu ne contient pas de particules et nous ne prendrons donc pas en compte leur émission et absorption ni leur diffusion.

En prenant un petit volume de gaz élémentaire homogène dV traversé par un rayonnement monochromatique défini par $L_\sigma(\sigma, x)$ dans la direction Δ suivant l'axe des x , on peut établir le bilan radiatif au sein du volume de gaz en étudiant les différents phénomènes d'échanges. On appelle aussi le bilan radiatif : l'équation du transfert radiatif (E.T.R).

On effectue une série d'hypothèses sur les milieux semi-transparentes qui nous permettent d'exprimer l'E.T.R. :

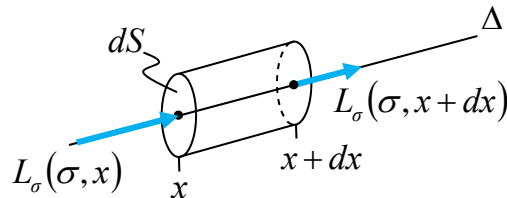


FIG. II.9 – Luminance spectrale incidente à un volume de gaz élémentaire.

- nous posons l'indice de réfraction égale à 1 ce qui implique que la direction de propagation du rayonnement se fera sur une ligne droite à la vitesse $c = c_0$, il n'existera pas de réflexion au niveau de l'interface air/gaz,

- on considère l'équilibre thermodynamique local atteint (E.T.L), c'est à dire que les collisions sont assez nombreuses pour thermaliser le milieu,
- la propagation du rayonnement est instantanée,
- les propriétés thermodynamiques sont instationnaires par rapport au temps de la mesure.

1.4.1 Absorption du rayonnement en milieu semi-transparent

Sur la figure II.9, la luminance spectrale incidente $L_{\sigma}(\sigma, x)$ en x va traverser un volume élémentaire $dV = dSdx$, on observe une perte d'énergie par absorption. Cette absorption se produit dans des bandes spectrales dont la position et la largeur (suivant σ) dépendent de la nature du gaz. Pour un composé gazeux, l'absorption dépend également de sa température (T), de sa concentration (C_i), de la pression totale (P_{Tot}) ainsi que de son épaisseur (dx). Ce phénomène est retranscrit dans le bilan radiatif par l'apparition du coefficient d'absorption monochromatique noté $K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})$ exprimé en cm^{-1} . On note cette perte d'énergie par :

$$dL_{\sigma}^a(\sigma, x) = K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma}(\sigma, x)dx. \quad (II.29)$$

Si le milieu est homogène et isotherme, $K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})$ est constant dans l'espace, aussi l'absorption du rayonnement sur une épaisseur (d) est-elle définie par :

$$L_{\sigma}^a(\sigma, dx) = L_{\sigma}(\sigma, x) \exp(-K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})d). \quad (II.30)$$

Le facteur de transmission de cette tranche de gaz d'épaisseur (d) est égale à :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) = \exp(-K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})d) \quad (II.31)$$

Et son facteur absorption :

$$\alpha_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) = 1 - \exp(-K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})d) \quad (II.32)$$

1.4.2 Gain du rayonnement en milieu semi-transparent

Lorsque l'équilibre thermodynamique local est atteint, l'absorption du rayonnement par le milieu est compensée par son émission. Selon la loi de Kirchhoff, le coefficient d'absorption monochromatique est égal au coefficient d'émission pour le volume élémentaire de gaz dV de concentration (C_i), de température (T) et de pression totale (P_{Tot}) de celui-ci. Le rayonnement émis par un composé gazeux est donc défini en fonction du coefficient d'absorption monochromatique $K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})$ et de la luminance spectrale du corps noir à la température (T) $L_{\sigma T}^0 dx$ en $[W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm]$ par la formule :

$$dL_{\sigma}^e(\sigma, x) = K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma T}^0 dx \quad (II.33)$$

1.4.3 Équation du transfert radiatif (E.T.R)

En considérant le volume de gaz élémentaire de la figure II.9 comme non diffusant, il est possible de faire le bilan énergétique des effets d'absorption et d'émission qui constitue l'E.T.R. L'E.T.R caractérise l'évolution locale de la luminance spectrale dans la direction considérée, par unité de volume :

$$\begin{aligned} \frac{dL_{\sigma}(\sigma, x)}{dx} &= \frac{1}{dx} (-dL_{\sigma}^a(\sigma, x) + dL_{\sigma}^e(\sigma, x)) \\ &= -K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma}(\sigma, x) + K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma T}^{\circ} \end{aligned} \quad (\text{II.34})$$

En prenant un volume de gaz quelconque non uniforme, on peut le décomposer en éléments de volume élémentaires homogènes en température et concentration. En intégrant l'équation II.34 en chaque point de la discrétisation du volume, on peut déterminer l'évolution de la luminance au sein de ce volume. Par exemple pour un volume de gaz d'épaisseur d délimité entre $x = 0$ et $x = d$ de concentration et de température connue sur l'axe des \vec{x} qui nous permet d'écrire $K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot}) = K_{\sigma}(\sigma, x)$. L'expression de la luminance en sortie du volume est donnée par [14] [25] :

$$\begin{aligned} L_{\sigma}(\sigma, d) &= \exp\left(-\int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x')dx'\right)L_{\sigma}(\sigma, 0) \\ &\quad + \int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x)L_{\sigma T}^{\circ}(T(x))\exp\left(-\int_x^d K_{\sigma}(\sigma, x')dx'\right)dx \end{aligned} \quad (\text{II.35})$$

- $L_{\sigma}(\sigma, d)$ est la luminance à la sortie de la ligne de visée,
- $L_{\sigma}(\sigma, 0)$ est la condition à la limite $x = 0$. Cette condition peut être par exemple la présence d'une paroi de température T_p derrière le gaz auquel cas on peut avoir :
 $L_{\sigma}(\sigma, 0) = \varepsilon_{\sigma}(\Delta, \sigma, T_p)L_{\sigma T_p}^{\circ}$.

On peut simplifier cette équation en introduisant le facteur de transmission monochromatique de x à d $\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)$ qui devient :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d) = \exp\left(-\int_x^d K_{\sigma}(\sigma, x')dx'\right) \quad (\text{II.36})$$

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)L_{\sigma}(\sigma, 0) + \int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x)L_{\sigma T}^{\circ}(T(x))\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)dx \quad (\text{II.37})$$

De cette expression, il apparaît plus clairement la signification des 2 termes de la somme constituant la forme intégrale de l'E.T.R. le long d'une direction :

- le premier terme correspond à la propagation du rayonnement incident en $x = 0$ qui est transmis jusqu'en $x = d$,
- le second traduit la somme des contributions des rayonnements émis par toutes les tranches élémentaires $[x', x' + dx']$ puis transmis de $x = x'$ à $x = d$. Ce terme correspond à l'émission globale de $x = 0$ à $x = d$ compte tenu de l'absorption par le milieu.

Cette E.T.R est notamment utilisée dans le cadre de l'inversion de mesures spectrales permettant de déterminer un profil de température et de concentration des gaz.

On considère maintenant que le volume élémentaire de gaz de la figure II.9 comprends des particules. On définit ce volume comme un milieu semi-transparent étant susceptible d'absorber, d'émettre, de transmettre et de diffuser un rayonnement. On effectue le bilan énergétique de tout ces effets pour écrire l'E.T.R. L'E.T.R caractérise l'évolution locale de la luminance spectrale dans la direction considérée, par unité de volume :

$$\begin{aligned} \frac{dL_{\sigma}(x,\Delta)}{dx} &= \frac{1}{dx} \left(-dL_{\sigma,gaz+particules}^a(\sigma,x) + dL_{\sigma,gaz+particules}^e(\sigma,x) + dL_{\sigma,x}^p(\sigma,x) \right) \\ &= (-K_{\sigma,g} - \sigma_{\sigma})L_{\sigma}(\sigma,x) + (K_{\sigma,g} + K_{\sigma,p})L_{\sigma}^{\circ}(T(x)) + \frac{\sigma_{\sigma}}{4\pi} \int_{\Delta'=4\pi} p_{\sigma}(x,\Delta',\Delta)L_{\sigma}(x,\Delta')d\Delta' \end{aligned} \quad (II.38)$$

Avec $dL_{\sigma,gaz+particules}^a(\sigma,x)$, l'atténuation de la luminance le long d'un trajet élémentaire dx dans la direction Δ figure II.9 qui est exprimée en fonction des coefficients spectraux d'absorption des gaz $K_{\sigma,g}$ et de diffusion de particules σ_{σ} .

$$dL_{\sigma,gaz+particules}^a(\sigma,x) = -K_{\sigma,g}L_{\sigma}(x,\Delta)dx - \sigma_{\sigma}L_{\sigma}(x,\Delta)dx \quad (II.39)$$

A l'équilibre thermodynamique local, l'expression du gain par émission est donnée par la loi de Planck dans le milieu, le coefficient d'émission étant alors égal au coefficient d'absorption, et on peut écrire :

$$dL_{\sigma,gaz+particules}^e(\sigma,x) = (K_{\sigma,gaz} + K_{\sigma,particules})L_{\sigma}^{\circ}(T(x))dx \quad (II.40)$$

Le phénomène de diffusion induit également un gain de luminance dans la direction Δ dû au rayonnement diffusé depuis toutes les autres directions Δ' . Ce seconde effet de la diffusion est décrit et quantifié en introduisant une fonction bidirectionnelle volumique, habituellement appelée fonction de phase $p_{\sigma}(x,\Delta',\Delta)$:

$$dL_{\sigma,x}^p = \frac{\sigma_{\sigma}}{4\pi} dx \int_{4\pi} p_{\sigma}(x,\Delta',\Delta)L_{\sigma}(x,\Delta')d\Delta' \quad (II.41)$$

Nous avons effectué le bilan radiatif le long du trajet dx en ajoutant les contributions de chaque terme ce qui nous a permis d'écrire la forme classique de l'équation de transfert radiatif. Les deux termes de pertes peuvent être regroupés en posant $\beta_{\sigma} = K_{\sigma} + \sigma_{\sigma}$, on a :

$$\frac{dL_{\sigma}(x,\Delta)}{dx} = -\beta_{\sigma}L_{\sigma}(\sigma,\Delta) + (K_{\sigma,g} + K_{\sigma,p})L_{\sigma}^{\circ}(T(x)) + \frac{\sigma_{\sigma}}{4\pi} \int_{\Delta'=4\pi} p_{\sigma}(x,\Delta',\Delta)L_{\sigma}(x,\Delta')d\Delta' \quad (II.42)$$

Remarque : par contre pour la rétrodiffusion dans le proche infrarouge $0,8\mu m < \lambda < 1,2\mu m$, nous supprimerons ce terme en utilisant une méthode LIDAR dial.

1.4.4 Transmission d'une colonne de gaz

Nous allons revenir sur la définition du facteur de transmission qui est un paramètre important dans le cadre de l'étude des gaz. Reprenons le même volume élémentaire que sur la figure II.9 d'épaisseur d , pour établir le bilan radiatif en considérant que le rayonnement incident n'est sensible qu'au phénomène d'absorption. On a :

$$L_{\sigma}(\sigma, x + dx) = L_{\sigma}(\sigma, x) - dL_{\sigma}^a(\sigma, x)$$

soit d'après (II.29),
$$\frac{dL_{\sigma}(\sigma, x)}{L_{\sigma}(\sigma, x)} = -K_{\sigma}(\sigma, x)dx. \quad (\text{II.43})$$

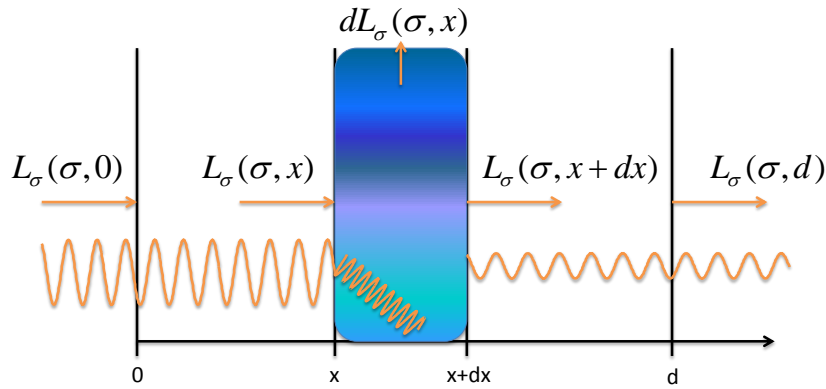


FIG. II.10 – Absorption du rayonnement par un gaz quelconque d'épaisseur d .

En intégrant l'équation II.38 on peut déterminer la valeur de la luminance en d après avoir traversé le volume de gaz quelconque, on a :

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = L_{\sigma}(\sigma, 0) \exp\left(-\int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x)dx\right) \quad (\text{II.44})$$

Et on retrouve la transmission spectrale du milieu due à l'absorption sur la distance d définie au paragraphe Absorption du rayonnement en milieu semi-transparent :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) = \frac{L_{\sigma}(\sigma, d)}{L_{\sigma}(\sigma, 0)} = \exp\left(-\int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x)dx\right) \quad (\text{II.45})$$

Si le milieu est homogène, c'est à dire si $K_{\sigma}(x)$ est indépendant de x , l'expression de la transmission devient :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) = \exp(-K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})d) \quad (\text{II.46})$$

La transmission est une quantité directionnelle qui peut être déterminée expérimentalement en utilisant une source de lumière modulée afin d'exclure de la mesure le rayonnement propre du volume de gaz.

La connaissance du coefficient d'absorption monochromatique est fondamentale pour la modélisation du transfert radiatif au sein d'un volume de gaz.

2 Spectroscopie moléculaire des gaz dans le proche infrarouges

Le rayonnement des gaz se caractérise par des suites discrètes de raies en fonction du nombre d'onde. Afin de relier à ces spectres les propriétés des molécules constituant les gaz, un modèle simple peut être utilisé. Les noyaux des atomes formant la molécule de gaz sont assimilés à des billes de matière reliées entre elles par une liaison chimique se comportant comme un ressort, le tout formant un oscillateur. En outre, le milieu est considéré comme dilué, c'est à dire que les interactions entre les molécules peuvent être négligées ce qui permet de relier la structure du spectre aux propriétés d'une molécule isolée. Un spectre est décrit par la position des raies, leurs intensités ainsi que par leurs profils.

2.1 Origine des spectres infrarouges

Une molécule de gaz peut gagner de l'énergie par absorption d'un photon ou au contraire en perdre par émission. L'émission ou l'absorption du rayonnement sont associées à des transitions entre deux états énergétiques de la molécule séparés par ΔE , l'énergie de transition, qui détermine l'emplacement des raies spectrales observées. Seules certaines transitions sont permises ce qui explique le caractère discret des spectres correspondants.

2.1.1 Les modes d'énergie d'une molécule

Les positions spectrales des raies peuvent être classées d'après la nature de la variation d'énergie moléculaire mise en jeu durant la transition. L'énergie totale d'une molécule peut être décomposée suivant la somme de 4 termes :

$$E \approx E_{Translation} + E_{Electronique} + E_{Vibration} + E_{Rotation}. \quad (\text{II.47})$$

Le premier terme est non quantifié et provient de l'agitation thermique : il ne donne lieu à aucune interaction avec le champ électromagnétique. Les trois autres termes sont quantifiés et sont associés respectivement aux transitions électroniques, aux oscillations effectuées par les noyaux autour de leur position d'équilibre et à la rotation de l'ensemble de la molécule. Leurs valeurs relatives sont telles que :

$$E_{Electronique} \gg E_{Vibration} \gg E_{Rotation} \quad (\text{II.48})$$

Le changement d'orbitale d'un électron résulte de l'absorption ou de l'émission d'un photon de fréquence qui le classe entre l'ultraviolet et le proche infrarouge tandis qu'un saut d'énergie de vibration correspond à des photons de longueur d'onde plus élevée (entre $1,5 \mu\text{m}$ et $20 \mu\text{m}$) tandis que des variations dans les niveaux d'énergie de rotation s'effectuent par interaction avec des photons de plus faible énergie dans l'infrarouge lointain (au-delà de $20 \mu\text{m}$).

Les spectres de vibration ne peuvent exister seuls car une modification de l'état vibrationnel entraîne systématiquement une modification de la rotation de la molécule. Dans notre étude, nous ne nous intéresserons qu'aux spectres de rotation-vibration du CO_2 et H_2O pour lesquels les transitions de rotation-vibration s'effectuent pour un même état électronique : le fondamental. Ainsi, dans notre cas, si l'on se place dans le référentiel de la molécule, son énergie se réduit à :

$$E \approx E_{Vibration} + E_{Rotation} \quad (\text{II.49})$$

Les spectres de rotation-vibration vont donc être liés aux mouvements de vibration relatifs entre les noyaux constituant la molécule. Afin de caractériser ses déplacements, ils sont décomposés en modes fondamentaux.

2.1.2 Les modes fondamentaux de vibration

Une molécule constituée de N atomes possède $3N$ degrés de liberté associés à ses noyaux. Trois correspondent à la translation de l'ensemble de la molécule (3 degrés de liberté du centre de masse suivant les 3 axes cartésiens) et 3 à la rotation. Il reste donc $3N - 6$ vibrations harmoniques (ou fondamentales) i que l'on peut décrire chacune suivant une coordonnée normale Q_i . Dans le cas particulier des molécules linéaires, pour lesquelles une rotation autour de l'axe formé par la liaison ne constitue pas un degré de liberté, le nombre de vibrations fondamentales est de $3N - 5$. Les vibrations harmoniques ne contribuent pas toutes à la formation du spectre infrarouge de la molécule : la présence ou l'absence d'un moment dipolaire¹ $\vec{\mu}$ interne va imposer des restrictions supplémentaires sur la fréquence des photons avec lesquels elle peut interagir. Pour un mode de vibration donné i de coordonnée normale Q_i , il ne peut y avoir d'interaction que si [26] :

$$\frac{\partial \vec{\mu}}{\partial Q_i} \neq \vec{0} \quad (\text{II.50})$$

Les gaz constitués de molécules diatomiques homonucléaires tels que O_2 et N_2 ne possèdent pas de moment dipolaire permanent et le mouvement de vibration fondamental le long de leur axe de symétrie ne peut pas produire de moment dipolaire. Par conséquent, ils ne présentent pas de spectre dans l'infrarouge.

2.1.3 Énergie vibrationnelle

Dans le cas d'une molécule diatomique, les niveaux d'énergie sont donnés en première approximation par la valeur propre de l'Hamiltonien d'un oscillateur harmonique [27] :

$$E_{\text{vibration}} = E_{\vartheta} = hc\omega \left(\vartheta + \frac{1}{2} \right), \quad \vartheta = 0, 1, 2, \dots, \quad (\text{II.51})$$

où ϑ désigne le nombre quantique vibrationnel et la constante ω , exprimée en cm^{-1} , vaut :

$$\omega = \frac{\nu}{c}, \quad \nu = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{\mu_m}} \quad (\text{II.52})$$

où ν est la fréquence de l'oscillateur, k la constante de force caractérisant la liaison et μ_m la masse réduite des deux atomes de masses m_1 et m_2 : $1/\mu_m = 1/m_1 + 1/m_2$. Pour un oscillateur harmonique, la règle de sélection gouvernant les sauts d'énergies possibles durant une transition est telle que $\Delta\vartheta = \pm 1$. Ceci impliquerait la présence d'une seule raie spectrale correspondant à la fréquence de vibration de l'oscillateur harmonique et située à la position σ en nombre d'onde :

$$\sigma = (E_{\vartheta+1} - E_{\vartheta})/hc = \omega(\vartheta + 1 - \vartheta) = \nu/c \quad (\text{II.53})$$

Cette approximation étant insuffisante pour expliquer le phénomène. Il est nécessaire de la corriger en développant l'expression de l'énergie autour du minimum de la courbe de potentiel.

¹Le moment dipolaire associé au dipôle constitué par 2 charges opposées q et $-q$ placées respectivement en deux points A et B est : $\vec{\mu} = q\vec{AB}$.

Cela permet de prendre en compte que lorsque deux noyaux sont éloignés de la molécule, elle se dissocie et quand ils sont très proches les charges positives des deux noyaux se repoussent [?].

$$G_{Vibration} = \frac{E_{Vibration}}{hc} = \omega \left(\vartheta + \frac{1}{2} \right) - \omega x_a \left(\vartheta + \frac{1}{2} \right)^2 + \dots, \quad x_a \ll 1 \quad (\text{II.54})$$

Où la constante d'anharmonicité x_a est très petite devant 1.

Le second terme de l'équation II.49 donne la correction anharmonique principale et a pour effet de rapprocher les niveaux d'énergie lorsque ϑ augmente, puisque x_a est positif.

Dans le cas d'une molécule polyatomique composée de N noyaux ($N > 2$), on peut considérer un ensemble d'oscillateurs harmoniques en première approximation. Pour une molécule polyatomique non linéaire, parmi les $3N$ degrés de liberté associés à ses noyaux, trois correspondent à la translation et trois à la rotation. Il reste donc $3N - 6$ coordonnées de déformation de la molécule ou de vibration. Les vibrations associées aux degrés de liberté de déformation peuvent s'écrire comme une combinaison de $3N - 6$ vibrations harmoniques décrites chacune par une coordonnée normale Q_i .

Comme dans le cas d'une molécule diatomique, le développement à l'ordre zéro de l'énergie vibrationnelle est insuffisant. En développant l'Hamiltonien par rapport aux coordonnées normales, on obtient la formule pour l'énergie vibrationnelle des molécules polyatomiques non linéaires et dont les modes sont non dégénérés ce qui est le cas de la molécule de H_2O [?] :

$$G_{Vibration} = \frac{E_{Vibration}}{hc} = \sum_k \omega_k \left(\vartheta + \frac{1}{2} \right) + \sum_{k \leq k'} x_{k,k'} \left(\vartheta_k + \frac{1}{2} \right) \left(\vartheta_{k'} + \frac{1}{2} \right) + \dots \quad (\text{II.55})$$

Où les constantes d'anharmonicité $x_{k,k'}$ sont très petites par rapport aux constantes ω_k et ϑ_k , qui sont les nombres quantiques associés à l'énergie de chaque oscillateur harmonique.

2.1.4 Énergie rotationnelle

Afin de caractériser l'énergie de rotation d'une molécule, nous allons nous intéresser à la structure rotationnelle des bandes de ro-vibration. En considérant la molécule comme un rotateur rigide, on admet que les noyaux ne quittent pas leur position d'équilibre, c'est à dire qu'il n'y a pas d'effet sur la distance interatomique. On désigne par x, y, z les axes principaux d'inertie de la configuration d'équilibre et par $I_{xx}^e, I_{yy}^e, I_{zz}^e$ les moments d'inertie principaux, on peut alors écrire l'Hamiltonien d'un rotateur rigide à l'ordre zéro [?] :

$$H_{Rot}^0 = \frac{J_x^2}{2I_{xx}^e} + \frac{J_y^2}{2I_{yy}^e} + \frac{J_z^2}{2I_{zz}^e} \quad (\text{II.56})$$

Où J_x, J_y et J_z représentent les composantes des moments angulaires \vec{J} suivant les directions principales.

La molécule d'eau étant du type toupie asymétrique, on a $I_{xx}^e \neq I_{yy}^e \neq I_{zz}^e$, c'est pourquoi on ne peut pas exprimer l'énergie rotationnelle sous forme explicite.

2.2 Positions spectrales des raies de l'eau

2.2.1 Les modes de vibration

La molécule d'eau est composée d'un atome d'oxygène et de deux atomes d'hydrogène, elle est donc du type XY_2 . On peut assimiler cette molécule à un rotateur rigide ou une toupie asymétrique dont l'axe de symétrie de la molécule est l'axe de moyenne d'inertie ; l'axe de grande inertie est perpendiculaire au plan de la molécule.

H_2O possède trois modes de vibrations non dégénérés associés aux nombres d'ondes suivant, dont deux modes de vibration symétrique et un mode de vibration antisymétrique :

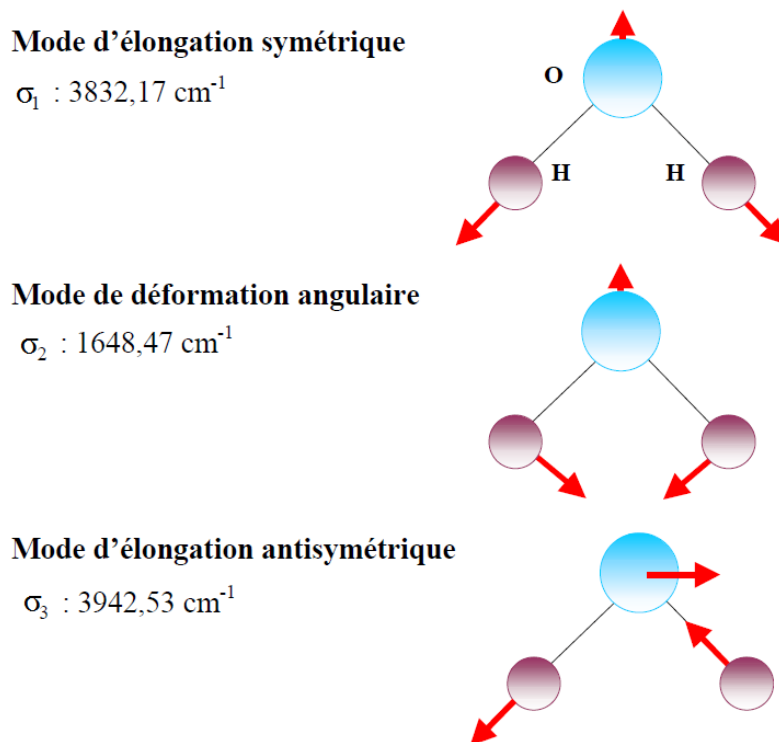


FIG. II.11 – Modes normaux de vibration de l'eau

2.3 Intensité d'absorption des raies

Les intensités d'absorption des raies dépendent de la probabilité de transition entre 2 niveaux d'énergie et du nombre de molécules qui étaient dans l'état initial de la transition considérée. L'expression de l'intensité d'absorption découle de lois qui sont valides uniquement lorsque l'équilibre thermodynamique est atteint. C'est dans ce cadre que nous nous plaçons.

2.3.1 Loi de distribution de Boltzmann

À l'équilibre thermodynamique, la population relative de molécules à la température absolue T occupant 2 niveaux d'énergie E_i et E_f est donnée par la distribution de Boltzmann :

$$\frac{N_f}{N_i} = \exp\left(-\frac{E_f - E_i}{k_B T}\right) \quad (\text{II.57})$$

où N_f et N_i sont les nombres de particules respectivement pourvues des énergies E_f et E_i , $k_B = 1,3806 \cdot 10^{-23} [J.K^{-1}]$ la constante de Boltzmann et T la température en Kelvin. À

une valeur d'énergie E_f peut correspondre plusieurs configurations quantiques (définies par les nombres quantiques) au nombre de g_f , le degré de dégénérescence du niveau d'énergie E_f . En prenant en compte la dégénérescence des niveaux d'énergie, l'expression précédente devient :

$$\frac{N_f}{N_i} = \frac{g_f}{g_i} \exp\left(-\frac{E_f - E_i}{k_B T}\right) \quad (\text{II.58})$$

La proportion de molécules dans le niveau énergétique E_f par rapport au nombre total de molécules présentes N est donc :

$$\frac{N_f}{N} = \frac{g_f \exp\left(-\frac{E_f}{k_B T}\right)}{\sum_i g_i \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right)} = \frac{g_f \exp\left(-\frac{E_f}{k_B T}\right)}{Q_{Tot}(T)} \quad (\text{II.59})$$

où $Q_{Tot}(T)$ est la fonction de partition totale.

2.3.2 Émission et absorption d'un photon par une molécule (Coefficient d'Einstein)

L'absorption : Une molécule initialement dans le niveau i est excitée vers le niveau f par l'absorption d'un photon d'énergie $E_f - E_i$ (Figure II.12). La population totale N_f du niveau f évolue en fonction du temps suivant :

$$\frac{dN_f}{dt} = B_{if} \rho(\nu) N_i \quad (\text{II.60})$$

où B_{if} est le coefficient d'Einstein d'absorption induite exprimé en $[cm^3 \cdot J^{-1} \cdot s^{-2}]$ et $\rho(\nu)$ est la densité spectrale volumique d'énergie en $[J \cdot cm^{-3} \cdot s]$.

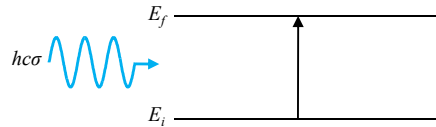


FIG. II.12 – Absorption d'un photon par une molécule

L'émission spontanée : Une molécule dans le niveau énergétique E_f va se désexciter spontanément au bout d'un certain temps vers un niveau d'énergie moins élevé E_i en émettant un photon d'énergie $E_f - E_i$ (Figure II.13). L'évolution de la population totale N_f dans le niveau E_f évolue selon la loi :

$$\frac{dN_f}{dt} = -A_{fi} N_f \quad (\text{II.61})$$

où A_{fi} est le coefficient d'Einstein relatif à l'émission spontanée. C'est une probabilité par unité de temps et s'exprime donc en $[s^{-1}]$.

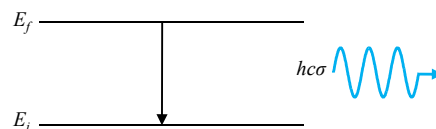


FIG. II.13 – Émission spontanée d'un photon

L'émission stimulée : Dans le cas de l'émission stimulée, il existe une probabilité pour qu'un photon incident sur une molécule dans le niveau d'énergie E_f provoque sa désexcitation vers le niveau d'énergie E_i (Figure 14). Le deuxième photon aura les mêmes caractéristiques que le photon incident : même fréquence, même phase, même polarisation et même direction de propagation. Le taux de désexcitation des molécules dans l'état f par émission induite est donné par :

$$\frac{dN_f}{dt} = -B_{fi}\rho(\nu)N_f \quad (\text{II.62})$$

où B_{fi} est le coefficient d'Einstein d'émission induite en $[cm^3 .J^{-1} .s^{-2}]$.

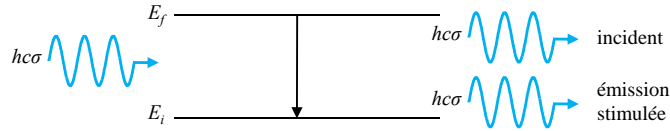


FIG. II.14 – Émission stimulée

Relation entre les coefficients d'Einstein : L'évolution de la population du niveau f en considérant les 3 processus d'interaction s'écrit :

$$\frac{dN_f}{dt} = B_{if}\rho(\nu)N_i - A_{fi}N_f - B_{fi}\rho(\nu)N_f \quad (\text{II.63})$$

Dans le cas du régime stationnaire $dN_f/dt = 0$ et il vient :

$$\frac{N_f}{N_i} = \frac{B_{if}\rho(\nu)}{A_{fi} + B_{fi}\rho(\nu)} \quad (\text{II.64})$$

À l'équilibre les populations suivent la distribution de Boltzmann et II.64 devient :

$$\frac{g_f}{g_i} \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T}\right) = \frac{B_{if}\rho(\nu)}{A_{fi} + B_{fi}\rho(\nu)} \quad (\text{II.65})$$

et la densité spectrale s'exprime sous la forme :

$$\rho(\nu) = \frac{A_{fi}}{B_{fi}} \frac{1}{\left[\frac{g_i B_{if}}{g_f B_{fi}} \exp\left(\frac{h\nu}{k_B T}\right) - 1\right]} \quad (\text{II.66})$$

Cette relation valable à l'équilibre thermique doit s'identifier à la relation établie par Planck :

$$\rho(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3 \left[\exp\left(\frac{h\nu}{k_B T}\right) - 1\right]} \quad (\text{II.67})$$

Après identification des termes entre II.61 et II.62, on obtient les relations entre les coefficients d'Einstein :

$$A_{fi} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} B_{fi} \quad (\text{II.68})$$

$$g_i B_{if} = g_f B_{fi} \quad (\text{II.69})$$

2.3.3 Expression de l'intensité d'absorption

L'intensité d'absorption $S_{\sigma_0}(T)$ correspondant à une ligne spectrale située en σ_0 résultant d'une transition entre deux niveaux d'énergie E_f et E_i exprimés en $[cm^{-1}]$ tels que $E_f - E_i = \sigma_0$ est donnée par [28] :

$$S_{\sigma_0}^N(T) = \frac{1}{N} (N_i B_{if} - N_f B_{fi}) \frac{h\sigma_0}{c} \quad (\text{II.70})$$

et s'exprime en $[cm^{-1} \cdot (molécules \cdot cm^{-2})^{-1}]$. N est le nombre total de molécules par unité de volume et l'intensité d'absorption est définie pour une molécule de ce volume unité (ce qu'indique la notation avec l'exposant N). C 'est le bilan entre l'absorption induite et l'émission stimulée d'un rayonnement incident. Les photons émis par émission spontanée ne sont pas pris en compte dans ce bilan car ils sont éparpillés dans toutes les directions [29].

L'énergie étant exprimée en $[cm^{-1}]$ l'expression de la population N peuplant le niveau d'énergie E_f devient :

$$N_f = \frac{g_f N \exp\left(-\frac{c_2 E_f}{T}\right)}{Q_{Tot}(T)} \quad (\text{II.71})$$

où $c_2 = \frac{hc}{k_b}$ est la constante de rayonnement. En utilisant (II.65) et une expression similaire pour N_i dans (II.66) il vient :

$$S_{\sigma_0}^N(T) = \frac{1}{Q_{Tot}(T)} \left[g_i B_{if} \exp\left(-\frac{c_2 E_i}{T}\right) - g_f B_{fi} \exp\left(-\frac{c_2 E_f}{T}\right) \right] \frac{h\sigma_0}{c} \quad (\text{II.72})$$

Finalement, l'intensité d'absorption d'une transition peut s'exprimer en fonction de A_{fi} en utilisant (II.63) et (II.64) :

$$S_{\sigma_0}^N(T) = \frac{g_f A_{fi}}{Q_{Tot}(T) 8\pi c \sigma_0^2} \exp\left(-\frac{c_2 E_i}{T}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{c_2 \sigma_0}{T}\right) \right] \quad (\text{II.73})$$

2.4 Profils des raies

Les calculs précédents supposaient que les raies d'absorption étaient purement monochromatiques et localisées en nombre d'onde tel que $\sigma_0 = \frac{E_f - E_i}{hc}$. Cependant, les niveaux d'énergies impliqués dans les transitions résultant de l'interaction rayonnement-matière ont une certaine largeur, et par conséquent, des photons de nombre d'onde compris dans une bande étroite $\Delta\sigma$ centrée autour de σ_0 peuvent être émis ou absorbés lors de la transition énergétique considérée. Il en résulte un élargissement des raies spectrales observées. L'élargissement des niveaux d'énergie peut avoir différentes origines. Il est dit homogène s'il est le même pour toutes les molécules du gaz ou inhomogène dans le cas contraire. L'élargissement est décrit par un profil f [cm] normalisé : $\int_{-\infty}^{\infty} f(\sigma - \sigma_0) d\sigma = 1$.

2.4.1 L'élargissement naturel

Cet élargissement est homogène et est lié à la durée de vie des niveaux d'énergie. Le principe d'incertitude d'Heisenberg relie l'énergie et le temps par la relation $\Delta t \Delta E \gtrsim h$. Si l'énergie d'un niveau était parfaitement déterminée cela signifierait que la durée de vie du niveau serait infinie. La durée de vie étant finie, cela implique une incertitude ΔE sur l'énergie.

La forme du profil correspondant est lorentzien (voir paragraphe suivant) et est caractérisé par une largeur à mi-hauteur γ_N [cm^{-1}] : la largeur naturelle de la transition. La largeur γ_N

est indépendante de l'état thermodynamique du gaz et constitue la limite inférieure de la largeur d'une raie spectrale. Typiquement γ_N est de l'ordre de 10^{-4} cm^{-1} [30]. Cet élargissement naturel est souvent très petit par rapport aux autres causes d'élargissement et peut être négligé.

2.4.2 L'élargissement par collisions

Les chocs entre la molécule absorbante d'espèce i considérée et les autres molécules j du milieu perturbent les états d'énergie initial et final. Il en résulte un élargissement de la raie suite à ces collisions. Cet élargissement est homogène et également représenté par une fonction de Lorentz dont l'expression est la suivante pour une raie centrée sur σ_0 [14] :

$$f_L(\sigma - \sigma_0, \gamma_L) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_L}{(\sigma - \sigma_0)^2 + \gamma_L^2} \quad (\text{II.74})$$

Lorsque la pression augmente, les collisions deviennent plus nombreuses et l'élargissement de Lorentz s'amplifie. La demi-largeur à mi-hauteur γ_L en cm^{-1} (HWHM, halfwidth at half maximum) est proportionnelle à la pression totale P_{Tot} et dépend des concentrations respectives des espèces en présence j , de la température T ainsi que de la transition considérée σ_0 : $\gamma_L = \gamma_L(\sigma_0, T, C_j, P_{Tot})$. γ_L peut s'écrire comme la somme de l'élargissement dû aux collisions de la molécule avec les molécules de la même espèce i et de l'élargissement dû aux collisions avec les molécules des autres gaz perturbateurs d'espèce j :

$$\gamma_L = \gamma_L^{i-i} P_i + \sum_{j \neq i} \gamma_L^{i-j} P_j \quad (\text{II.75})$$

- $P_j [\text{atm}^{-1}]^2$ est la pression partielle de l'espèce j liée à la fraction molaire X_j par $P_j = X_j P_{Tot}$,
- $\gamma_L^{i-i} [\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}]$ est l'auto-élargissement,
- $\gamma_L^{i-j} [\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}]$ est l'élargissement dû aux espèces perturbatrices.

2.4.3 L'élargissement Doppler

Les molécules constituant le gaz étudié sont en mouvement dans toutes les directions (agitation thermique) et lorsqu'une molécule absorbe un photon de nombre d'onde σ_0 dans son propre référentiel, un observateur verra la molécule qui se dirige vers lui avec une vitesse v absorber un photon de nombre d'onde $\sigma = \sigma_0(1 + v/c)$ à cause de l'effet Doppler. Il en résultera un élargissement inhomogène des raies. À l'équilibre thermodynamique, la loi de distribution des vitesses est gaussienne ainsi que le profil d'élargissement correspondant f_D [31] :

$$f_D(\sigma - \sigma_0, \gamma_D) = \frac{1}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp\left(-\ln 2 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\gamma_D}\right)^2\right) \quad (\text{II.76})$$

La demi-largeur Doppler à mi-hauteur γ_D en cm^{-1} est reliée à la température T en K, à la masse molaire M_i en g/mol et au nombre d'onde σ_0 de la raie par :

$$\gamma_D = \gamma_D(\sigma_0, T, M_i) = \frac{\sigma_0}{c} \sqrt{\frac{2 \cdot 10^{-3} RT}{M_i} \ln 2} \quad (\text{II.77})$$

où $R = k_B N_A = 8,3145 [\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}]$ est la constante des gaz parfaits. Cet élargissement Doppler est indépendant de la pression. Par contre, l'augmentation de la vitesse des molécules avec la température entraîne un accroissement de l'élargissement.

²1 atm = 1,01325 bar

2.4.4 Profil de Voigt

Le profil d'élargissement par collision est plus étendu spectralement que celui dû à l'effet Doppler comme le montre la figure (II.) qui présente les deux profils pour $\gamma_L = \gamma_D$:

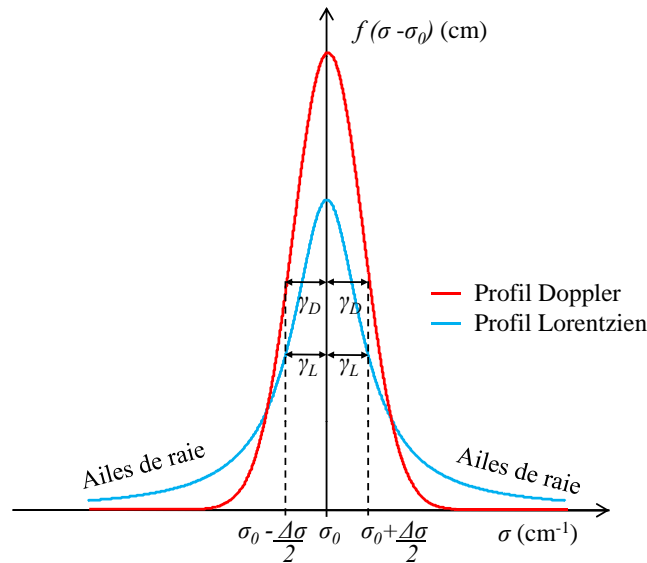


FIG. II.15 – Comparaison des profils Doppler et Lorentzien d'après (II.69) et (II.71) pour $\gamma_D = \gamma_L$.

Selon les conditions de pression et de température, l'un peut être négligé par rapport à l'autre mais ce n'est pas toujours possible. Ces deux élargissements peuvent être considérés comme indépendants et le profil résultant de leurs effets combinés est le profil de Voigt f_V [cm]. C'est le produit de convolution des deux profils :

$$f_V = f_D * f_L = \int_{-\infty}^{+\infty} f_D(\sigma - \sigma') f_L(\sigma') d\sigma' \quad (\text{II.78})$$

Cette intégrale ne possède pas de solution analytique et doit être calculée numériquement.

3 Rappels sur la combustion

La combustion est une science pluridisciplinaire qui met en jeu des domaines comme la chimie, la mécanique des fluides, la thermodynamique, la physique des systèmes dynamiques... Une combustion est une réaction entre un combustible (souvent carboné) et l'oxygène pur, ou de l'oxygène dilué (air) ou une espèce chimique riche en oxygène (ozone, peroxyde d'hydrogène...). Une combustion est une réaction chimique exothermique (elle dégage de la chaleur) susceptible de s'accélérer brutalement et d'être accompagnée d'émission de rayonnement dans le visible, le proche UV et le proche infrarouge. La connaissance et la maîtrise de la combustion sont importantes pour l'amélioration des applications industrielles telles que les moteurs à combustion interne, les turbines à gaz, les chaudières industrielles et domestiques, mais aussi les statoréacteurs et les turboréacteurs. L'optimisation de la combustion est un enjeu important pour répondre aux exigences de performance, de consommation et de pollution qui aiderait à améliorer la connaissance des mécanismes de combustion.

3.1 Les différents types de flamme

Lors d'une combustion différents types de flammes peuvent être formés. Les réactions chimiques se produisent essentiellement au sein de la flamme. On peut qualifier une flamme de pré-mélange quand le combustible et le comburant sont pré-mélangés en amont de la zone de la réaction. On appelle flamme de diffusion lorsque le mélange est fait au sein de la zone de réaction et donc de la flamme.

La flamme de pré-mélange [32] :

Le combustible et le comburant sont pré-mélangés en amont de la zone de réaction (voir figure II.16) ce qui permet de réduire les imbrûlés et la formation d'espèces polluantes. Lorsque le pré-mélange est porté à une température suffisante pour lancer la réaction, celle-ci se propage de proche en proche par transfert de chaleur. Le volume allumé est une réaction exothermique, qui fournit donc de la chaleur aux zones de gaz froids pré-mélangés mais pas encore en réaction ce qui leur permettent de brûler à leur tour.

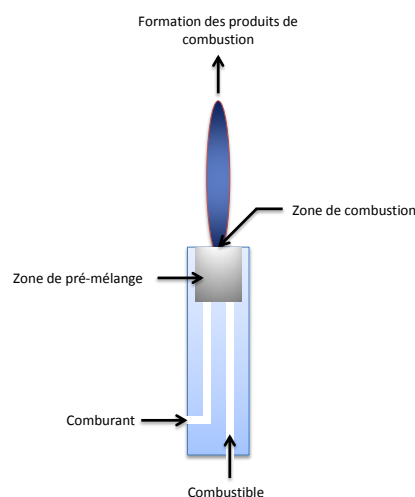


FIG. II.16 – Schéma d'une flamme de pré-mélange type Bec-Bunsen

La flamme de diffusion [32] :

Dans une flamme de diffusion, le comburant et le combustible sont séparés et se mettent en contact par diffusion, c'est l'exemple type d'une bougie. On peut décrire une flamme de diffusion en trois parties. La partie au centre de la flamme qui est composée du gaz combustible, la flamme elle-même où se déroule la réaction et l'extérieur de la flamme qui contient le comburant et les produits de réaction. Dans le cas d'une flamme de diffusion, on parle souvent de combustion incomplète. La réaction de combustion se fait en bord de flamme et les proportions stoechiométriques ne sont pas respectées ce qui entraîne la formation des produits polluants et le rejet de gaz imbrûlés.

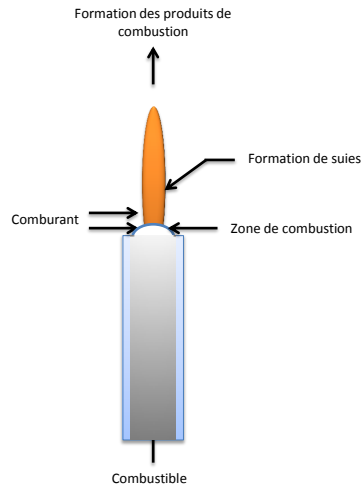


FIG. II.17 – Schéma d'une flamme de diffusion

On peut aussi définir la vitesse de flamme qui désigne la vitesse à laquelle se déplace le front de flamme. On peut décomposer la combustion en deux zones :

- Une zone où les gaz frais vont monter en température par diffusion thermique pour atteindre la température d'inflammation,
- Une zone de réaction chimique où l'énergie chimique va être transformée en chaleur.

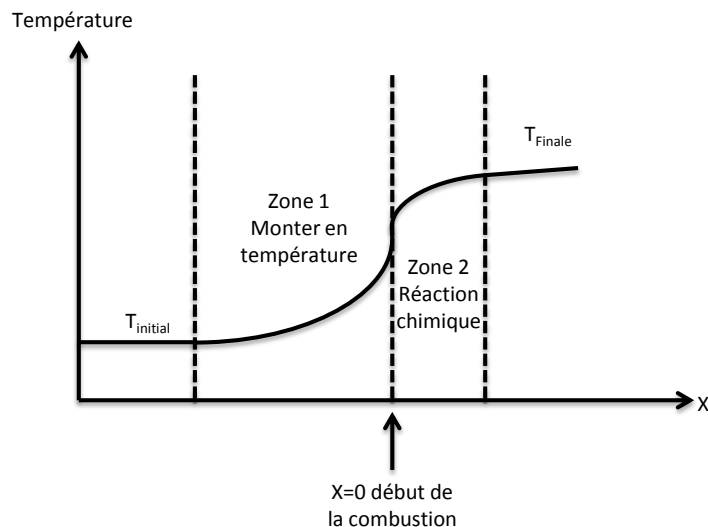
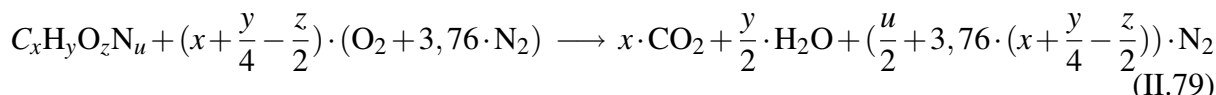


FIG. II.18 – Évolution de la température suivant la zone de combustion

3.2 Équation de combustion d'un composé carboné ou non

La combustion stoechiométrique d'un carburant d'équation $C_xH_yO_zN_u$ a pour équation chimique simplifiée lorsque le comburant est de l'air atmosphérique [1] :



En tenant compte de la composition en volume de l'air sec, c'est à dire 21 % de O_2 et 79 % de N_2 .

Cette équation est valable dans le cas où nous sommes à la stoechiométrie, la combustion peut être riche lorsque le combustible est en excès ou au contraire pauvre lorsque c'est le comburant qui est en excès. On introduit la richesse un nombre sans dimension qui permet de définir si la combustion est riche ou pauvre par la formule :

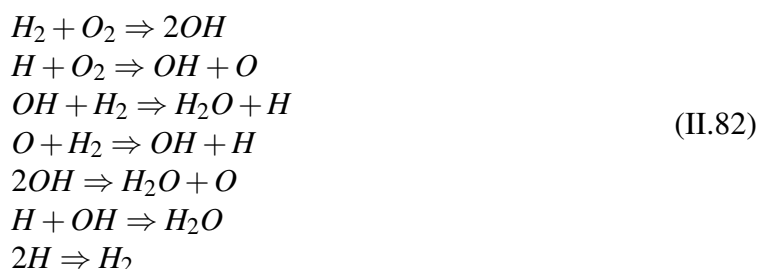
$$\alpha = \frac{\left(\frac{\text{quantité de combustible}}{\text{quantité de comburant}}\right)_{\text{mélange étudié}}}{\left(\frac{\text{quantité de combustible}}{\text{quantité de comburant}}\right)_{\text{mélange stoechiométrique}}} \quad (II.80)$$

Par exemple pour les carburants liquides classiques types essences ou gazole, le rapport entre la quantité de comburant et de combustible est compris entre 14 et 15. À la stoechiométrie α est égale à 1 et α sera supérieure à 1 lorsque le comburant est en excès.

Prenant l'exemple de la réaction stoechiométrique entre l'hydrogène et l'oxygène qui s'écrit :



En plus de l'eau formée, les gaz issus de combustion contiennent des constituants résultant de réactions chimiques incomplètes et des réactions intermédiaires dont le volume représente 0,02 à 1% du volume total voire plus lorsque nous sommes à très hautes températures (> 3000 K). En présentant le mécanisme réactionnel complet de la combustion, on peut prendre en compte leur impact. Par exemple le modèle de Peter PEREZ détaille la réaction hydrogène-oxygène.



3.3 Détermination de la température adiabatique de flamme [1]

En absence de travail W et des effets de l'énergie potentielle et cinétique sur un système, l'énergie libérée par la combustion est transférée de deux façons. Une partie de l'énergie sert à la formation des produits de réaction et une partie de l'énergie est transférée vers l'environnement extérieur (transfert de chaleur). Plus le transfert de chaleur est élevé, plus l'énergie libérée pour former les produits de combustion est élevée et donc la température des produits formés aussi.

La température maximale qui pourrait être atteinte par les produits de combustion dans le cas où le système est adiabatique est appelée température adiabatique de flamme ou température adiabatique de combustion.

La température adiabatique de flamme peut être déterminée en utilisant la conservation de la masse et les principes de conservation d'énergie.

Prenons l'exemple d'une réaction adiabatique isobare, on peut décrire la réaction comme sur la figure II.19.

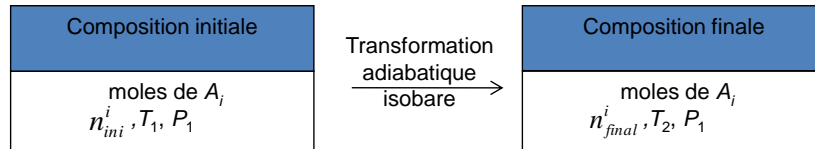


FIG. II.19 – Schématisation de la réaction de combustion

Le premier principe de la thermodynamique et le fait que nous sommes isobare et adiabatique nous permet d'écrire que :

$$\Delta H = H_f - H_i = Q = 0 \quad (\text{II.83})$$

On cherche à déterminer la température T_2 . On peut pour cela décomposer la réaction en passant par un état fictif intermédiaire.

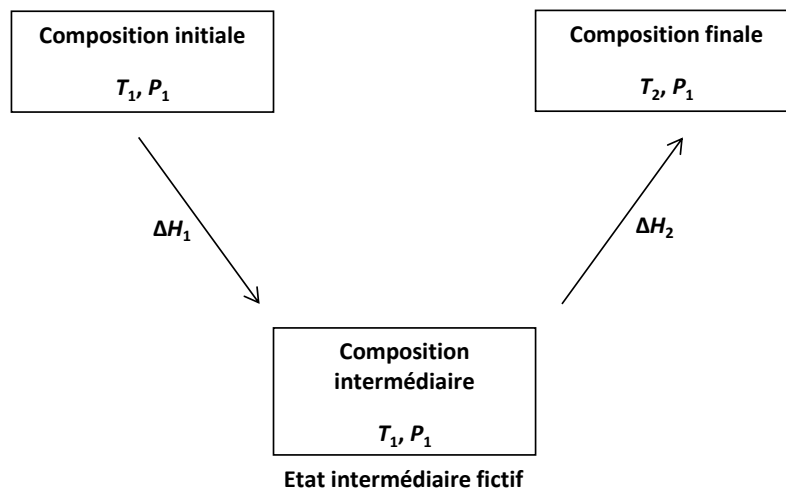


FIG. II.20 – Décomposition de la réaction de combustion

L'enthalpie est une fonction d'état. On peut donc écrire que $\Delta H = \Delta H_1 + \Delta H_2$.

Avec :

$$- \Delta H_1 = \xi \times \Delta_r H_1^0 \text{ et } \xi = \frac{n_{fin}^i - n_{ini}^i}{\nu_i}$$

$$- \Delta H_2 = \int_{T_1}^{T_2} C_p(\text{composition finale}) dT = \int_{T_1}^{T_2} \sum_i n_{final}^i \times C_{p,i}^0(T) dT$$

On a donc $\Delta H_1 + \Delta H_2 = 0$ qui nous fournit une équation où seule la température T_2 est une inconnue. Exemple : oxydation adiabatique par l'air de $SO_2(g)$ en $SO_3(g)$, $T_1 = 700K$, P_0 est une constante.

Equation :	$2SO_{2(g)} +$	$O_{2(g)} =$	$2SO_{3(g)}$	(et N_2 spectatrice dans l'air)
C_p^0	39.9	29.4	50.7	29.1 ($J.K^{-1}.mol^{-1}$)
n_{ini} :	10	10	0	40 (mol)
$\Delta_f H_{298.15K}^0$	-297	0	-396	0 ($kJ.mol^{-1}$)

TAB. II.1 – Réaction chimique de SO_2 avec l'air

On va d'abord calculer l'enthalpie de formation des gaz dans les conditions standard avec la loi de Hess.

$$\Delta_r H_{298.15K}^0 = \sum_i \nu_i \Delta_r H_i^0 = 2\Delta_r H_{SO_3}^0 - 2\Delta_r H_{SO_2}^0 = -198 kJ.mol^{-1} \quad (II.84)$$

En utilisant la première loi de Kirchhoff on peut écrire :

$$\Delta_r H_{700K}^0 = \Delta_r H_{298.15K}^0 + \int_{298}^{700} \sum_i (\nu_i \times C_{p,i}^0) dT = -201 kJ.mol^{-1} \quad (II.85)$$

Pour déterminer la température finale on suppose que $n_{SO_2}^{Final} = 1 mol$ et on peut donc calculer le coefficient ξ qui vaut 4,5 mol. On peut donc désormais calculer la composition finale des gaz pour lesquels on obtient pour SO_2 : 1 mol, O_2 : 5.5 mol, SO_3 : 9 mol et N_2 : 40 mol.

$$\begin{aligned} \Delta H &= \Delta_r H_{700K}^0 + \int_{T_1}^{T_f} \sum_i (n_i^{fin} \times C_{p,A_i}^0) dT = 0 \\ \Leftrightarrow \xi \times \Delta_r H_{700K}^0 + (T_f - T_1) \times (40C_{p,N_2}^0 + 9C_{p,SO_3}^0 + 1C_{p,SO_2}^0 + 5.5C_{p,O_2}^0) &= 0 \end{aligned} \quad (II.86)$$

On retrouve une température adiabatique de flamme qui est de 1200 K.

Dans le cas d'une réaction adiabatique non plus isobare mais isochore, c'est à dire sans changement de volume au cours de la réaction on écrira :

$$\Delta U = Q = 0 \quad (II.87)$$

En raisonnant de la même manière que précédemment on déterminera la température adiabatique de flamme par l'équation :

$$\Delta U = 0 = \xi \times \Delta_r U_{T_1}^0 + \int_{T_1}^{T_2} \sum_i (n_i^{fin} C_{v,i,T}^0) dT \quad (II.88)$$

Ce calcul de température adiabatique de flamme nous permettra de déterminer la température maximale au sein de la cellule à déflagration en connaissant les quantités de matière initiale de chaque constituant. La détermination de cette température maximale de réaction est nécessaire pour la comparaison de nos mesure et de notre modèle. C'est le principe décrit ci-dessus qui sera utilisée dans les logiciels de calcul libre type Gaseq.

Validation expérimentale du spectre de la vapeur d'eau

L'inversion de mesures spectroscopiques pour déterminer les profils de température et de concentration de la vapeur d'eau nécessite un modèle de rayonnement de cette molécule dans la gamme spectrale étudiée ($12000-12500\text{ cm}^{-1}$)

L'origine du spectre infrarouge ainsi que sa caractérisation ont été définies en détail dans le chapitre précédent (intensité de raies et position, largeur spectrale, coefficient d'absorption...).

La vérification de ce modèle est réalisée en comparant les résultats obtenus à nos spectres expérimentaux de la vapeur d'eau en instationnaire. Nous décrivons l'instrumentation et la méthodologie de nos mesures des spectres de la vapeur d'eau.

La comparaison modèle-expérience servira à la validation du modèle nécessaire au programme d'inversion en émission qui sera décrit.

1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédent, il est nécessaire de valider par des expériences le modèle d'émission des spectres de la vapeur à hautes pressions et à hautes températures. Étant issues de bases de données (HITRAN) dont il convient de vérifier la validité dans les gammes de pressions et de températures qui nous intéressent (0 à 200 bar et de 1000 à 3000 K) afin de les appliquer dans les milieux de combustion. Nous présenterons en début de chapitre le modèle de rayonnement de la molécule d'eau nous permettant de comparer nos mesures de spectre de la vapeur d'eau aux données théoriques.

De nombreuses études expérimentales ont porté sur le spectre d'émission de H_2O à très hautes températures (supérieure à 2000 K) grâce à des brûleurs qui créent de la vapeur à pression atmosphérique. Par cette technique les premiers spectres de la vapeur ont pu être obtenus pour une température de 2500 K et 1 bar avec un brûleur H_2/O_2 [33] et 2900 K avec un brûleur gaz naturel/ O_2 . Des problèmes d'étanchéité de cellule ne permettaient pas une montée en pression du système au-delà de 10 bars.

Les recherches ont été axées aussi sur les spectres de transmission du CO_2 notamment dans des cellules car elles présentent une stabilité en température et pression. C'est le cas du travail de Hartmann qui étudie la tête de bande du CO_2 entre 291 et 751 K car elle présente un effet thermométrique remarquable pour des pressions allant jusqu'à 60 bars. Il avait mis au point une cellule qui présentait une stabilité en température inférieure au degré. Cette même cellule a servi pour acquérir des spectres de l'eau mais H_2O n'étant pas présent à l'état gazeux à pression atmosphérique, la cellule a été chauffée à l'aide d'un four pour obtenir de la vapeur d'eau. Dans un souci d'étanchéité les manipulations pour le CO_2 n'ont pu être faites au-delà de 900 K et 70 bars. Très peu de systèmes permettent donc de mesurer des spectres de l'eau à haute températures et pressions. Les premiers spectres ont été obtenus pour la vapeur d'eau de 1 à 40 bars et de 1000 à 3000 K au Laboratoire du LEME avec le travail de Mme. CHELIN [14] et sur le CO_2 jusqu'à 1073 K et quelques bar avec les travaux de Mr. JACQUOT [30] et 800 K et quelques bars avec les travaux de Mr. Conseil [34].

Une cellule de déflagration était utilisée avec différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ et H_2/Air afin d'obtenir ses spectres. Deux raies ont notamment été étudiée à $0,96 \mu m$ (10400 cm^{-1}) et $0,81 \mu m$ (12300 cm^{-1}) car dans ces domaines il n'y a pas de recouvrement de raies avec les autres espèces présentes.

Dans notre étude, nous allons nous servir de la même enceinte de combustion que Mme. CHELIN qui permet d'obtenir des molécules d'eau dans des gammes de températures et pressions assez similaire au milieu de combustion. Nous étudierons le mélange $H_2/O_2/N_2$ en instationnaire sur le domaine spectral $0,82 \mu m$ (domaine d'étude choisie pour la rétrodiffusion DIAL). La validation des spectres d'émission de la vapeur d'eau sont des données importantes nécessaires au fonctionnement du programme d'inversion des mesures en émission qui sera explicité en fin de chapitre.

2 Modélisation des coefficients d'absorption monochromatiques de la vapeur d'eau

Afin de modéliser à l'aide de l'E.T.R. (équation II.37 page 44) le rayonnement issu d'une colonne de gaz, il est indispensable de connaître la valeur des coefficients d'absorption monochromatique dans la gamme spectrale choisie ($12000 - 12500 \text{ cm}^{-1}$) en fonction de la pression totale et des profils de température et de concentration le long de la ligne de visée.

Pour ce faire, il nous faut connaître pour chaque transition de rotation-vibration de la vapeur d'eau l'intensité d'absorption des raies $S_{\sigma_j}^N(T)$, leurs positions σ_j , ainsi que leurs profils respectifs $f_j(\sigma - \sigma_j, T, C_{CO_2}, P_{Tot})$. En outre, le recouvrement des ailes de raies ainsi que l'effet des collisions entre les diverses molécules en présence (H_2O ou autres) doivent être pris en compte.

La majorité des données nécessaires à cette modélisation peuvent être extraites de bases de données spectroscopiques comme celle d'HITRAN que nous allons présenter.

2.1 Présentation de la base de données spectroscopiques HITRAN

HITRAN (High-resolution TRANsmission molecular absorption database) est l'une des banques de données publiques les plus couramment utilisées dans l'étude spectroscopique des gaz atmosphériques. Cette base a été initiée par l'Air Force au Air Force Geophysics Laboratory (AFGL) à la fin des années soixante et elle est depuis régulièrement mise à jour. La dernière version est datée de 2012 [35] et contient en particulier les données correspondantes à 47 molécules dans leur phase gazeuse ainsi qu'un grand nombre de leurs isotopes respectifs pour une large gamme spectrale allant des micro-ondes au visible. Cette banque de données prend la forme d'une liste décrivant pour chaque isotope de chaque molécule référencée un grand nombre de transitions énergétiques accessibles, avec en particulier des informations sur la position spectrale σ_j , l'intensité d'absorption $S_{\sigma_j}^N(T_0)$ et les coefficients d'élargissement γ_L . À chaque transition moléculaire d'un niveau énergétique E_i vers un niveau énergétique supérieur E_f , correspond une ligne de données qui est formatée depuis la version de 2004 suivant 160 caractères comme indiqué dans le Tableau III.1 :

Symbole	Paramètre	Nombre de caractères	Commentaires / unités
M	Numéro de la molécule	2	Suivant l'ordre chronologique d'implémentation dans la base
I	Numéro de l'isotope	1	Suivant l'abondance atmosphérique
σ_0	Position spectrale dans le vide	12	cm ⁻¹
S^N	Intensité d'absorption	10	cm ⁻¹ / (molécules · cm ⁻²) à la température de 296 K
A_{fi}	Coefficient d'Einstein relatif à l'émission spontanée	10	s ⁻¹
γ^{air}	Élargissement dû aux collisions avec les molécules d'air	5	cm ⁻¹ · atm ⁻¹ , HWHM pour le profil de Lorentz à 296 K
γ^{auto}	Auto-élargissement	5	cm ⁻¹ · atm ⁻¹ , HWHM pour le profil de Lorentz à 296 K
E_i	Energie de l'état initial	10	cm ⁻¹
n_{air}	Coefficient de dépendance en température pour γ^{air}	4	Sans dimension
δ	Coefficient de déplacement des raies induit par la pression	8	cm ⁻¹ · atm ⁻¹ , à 296 K
V_f	Nombres quantiques "globaux" du niveau supérieur	15	Voir [18] pour plus de précisions
V_i	Nombres quantiques "globaux" du niveau inférieur	15	Voir [18]
Q_f	Nombres quantiques "locaux" du niveau supérieur	15	Voir [18]
Q_i	Nombres quantiques "locaux" du niveau inférieur	15	Voir [18]
I_{err}	Indice relatif à l'incertitude	6	Indice d'incertitude pour $\sigma_0, S^N, \gamma^{air}, \gamma^{auto}, n_{air}, \delta$
I_{ref}	Indice renvoyant à des références bibliographiques	12	Indice de références pour $\sigma_0, S^N, \gamma^{air}, \gamma^{auto}, n_{air}, \delta$
*	Drapeau	1	* indique la disponibilité de données sur les interférences entre raies
g_f	Degré de dégénérescence du niveau supérieur	7	
g_i	Degré de dégénérescence du niveau inférieur	7	

TAB. III.1 – Liste des paramètres contenus dans HITRAN 2012 pour chaque transition moléculaire citation [35] [36].

HITRAN a été conçue à l'origine pour des applications dont les conditions étaient celles de l'atmosphère terrestre, c'est à dire pour des températures et des pressions allant de la surface de la Terre à la stratosphère. Or, des raies négligeables à la température ambiante et qui n'ont donc pas été incorporées à la banque de données, peuvent devenir significatives à de hautes températures. Ainsi, HITRAN est incomplète pour traiter des phénomènes à très hautes températures. Pour combler ces lacunes, une base analogue de même format a été constituée : HITEMP. La

dernière version est datée de 2010 [37] et contient les transitions pour les molécules H_2O , CO_2 , CO , NO et OH . HITRAN et HITEMP sont disponibles sur un serveur ftp anonyme de téléchargement. Les modalités d'accès sont données sur : <http://www.cfa.harvard.edu/hitrان>. Nous avons choisi d'utiliser HITEMP afin de modéliser les raies de l'eau à haute température.

2.2 Intensité d'absorption des raies

Dans HITEMP l'intensité d'absorption d'une raie σ_j à la température de référence $T_0 = 296 K$ est pondérée par l'abondance naturelle atmosphérique de l'isotope considéré I_a . D'après la formule II.68 l'intensité $S_{\sigma_j}^N(T_0)$ s'écrit donc :

$$S_{\sigma_0}^N(T_0) = \frac{g_f A_{fi} I_a}{Q_{Tot}(T_0) 8\pi c \sigma_j^2} \exp\left(-\frac{c_2 E_i}{T_0}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{c_2 \sigma_j}{T_0}\right)\right] \quad (III.1)$$

La conversion à une autre température T se fait à partir du rapport $S_{\sigma_j}^N(T)/S_{\sigma_j}^N(T_0)$ pour lequel il vient [28] :

$$S_{\sigma_0}^N(T) = S_{\sigma_0}^N(T_0) \frac{Q_{Tot}(T_0)}{Q_{Tot}(T)} \exp\left(-c_2 E_i \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \left[\frac{1 - \exp\left(-\frac{c_2 \sigma_j}{T}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{c_2 \sigma_j}{T_0}\right)}\right] \quad (III.2)$$

où $c_2 = hc/k_b$ est la seconde constante de rayonnement. L'énergie du niveau inférieur de la transition E_i en cm^{-1} ainsi que $S_{\sigma_0}^N(T_0)$ en $cm.molcules^{-1}$ sont contenues dans la banque de données. La fonction de partition à la température de référence $Q_{Tot}(T_0)$ et celle correspondant à la température d'intérêt $Q_{Tot}(T)$ sont données pour $H_2^{16}O$ dans [38] pour des températures comprises entre 10 et 6000 K. Les valeurs sont obtenues à partir du polynôme de l'équation III.3 dont les coefficients sont reportés dans le tableau.

$$\log Q_{Tot} = \sum_{i=0}^6 a_i (\log T)^i \quad (III.3)$$

Coefficient	Valeur
a_0	-14.087 469 157 417 9
a_1	37.924 324 853 988 2
a_2	-42.681 797 873 178 9
a_3	25.330 244 851 791 6
a_4	-8.108 512 629 355 32
a_5	1.331 068 717 205 35
a_6	-0.087 298 105 109 575 7

TAB. III.2 – Coefficient du polynôme III.3

Le logarithme de l'équation III.3 est en base décimale.

2.3 Profils des raies

Le profil général d'une raie correspondant à une transition donnée est le produit de convolution entre un profil Lorentzien et un profil Doppler gaussien. La demi-largeur à mi-hauteur γ_D (HWHM) correspondant à ce dernier est directement déduite de la température T , de la masse molaire M_i de la molécule d'intérêt et du nombre d'onde de la transition σ_j suivant :

$$\gamma_D = \frac{\sigma_0}{c} \sqrt{\frac{2.10^{-3}RT}{M_i} \ln 2} \quad (\text{III.4})$$

où la masse molaire de l'eau est de 18,01 g/mol (en pondérant le poids des différents isotopes par leur abondance relative). La demi-largeur à mi-hauteur γ_L correspondante au profil Lorentzien est plus délicate à déterminer, c'est l'objet du paragraphe suivant.

2.3.1 Paramètres d'élargissement du profil Lorentzien

Comme nous l'avons vu, $\gamma_L [cm^{-1}]$ dépend de la température et la valeur contenue dans HITEMP est celle à $T_0 = 296 K$. Il est donc nécessaire d'effectuer une conversion à la température désirée. Cette conversion est réalisée pour le coefficient d'élargissement dû aux molécules de l'air, $\gamma_{air} [cm^{-1}atm^{-1}]$ à l'aide du coefficient n_{air} également présent dans HITEMP :

$$\gamma_L^{air}(T) = \gamma_L^{air}(T_0) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{air}} \quad (\text{III.5})$$

Ce coefficient de dépendance en température n'est fourni que pour l'air et non pour le coefficient caractérisant l'auto-élargissement γ_L^{auto} . Faute de données, il est usuel d'utiliser celui de l'air [11]. La demi-largeur à mi-hauteur γ_L est donnée pour une transition σ_j par :

$$\begin{aligned} \gamma_L(T) &= \gamma_L^{auto}(T)P_i + \gamma_L^{air}(T)P_{air} \\ &= (\gamma_L^{auto}(T_0)P_i + \gamma_L^{air}(T_0)(P_{Tot} - P_i)) \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{air}} \end{aligned} \quad (\text{III.6})$$

où P_i est la pression partielle de l'espèce considérée i , P_{air} la pression partielle en air (79% N_2 + 21% O_2) et P_{Tot} la pression totale. Les paramètres listés dans HITEMP permettent donc de calculer un profil Lorentzien pour les molécules H_2O dans le cas d'un mélange avec de l'air atmosphérique.

2.3.2 Profil de Voigt

Connaissant le profil Doppler gaussien ainsi que le profil Lorentzien il nous est alors possible de calculer le profil de Voigt. Son calcul étant coûteux en temps, nous utiliserons un algorithme afin de le minimiser. L'algorithme choisi est celui de E.E. Whiting pour lequel la forme du profil de Voigt f_v s'exprime par [39] :

$$\begin{aligned} \frac{f_v}{f_{v_{Max}}} &= \left[\left(1 - \frac{\omega_L}{\omega_V}\right) \exp\left(-2,772\left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\omega_V}\right)^2\right) \right] + \left[\frac{\left(\frac{\omega_L}{\omega_V}\right)}{1 + 4\left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\omega_V}\right)^2} \right] \\ &+ 0,016 \left(1 - \frac{\omega_L}{\omega_V}\right) \left(\frac{\omega_L}{\omega_V}\right) \left[\exp\left(-0,4\left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\omega_V}\right)^{2,25}\right) - \frac{10}{10 + \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\omega_V}\right)^{2,25}} \right] \end{aligned} \quad (\text{III.7})$$

Avec

- $\omega_V = 0,5346 \cdot \omega_L + \sqrt{0,2166 \cdot \omega_L^2 + \omega_D^2}$ est la largeur à mi-hauteur du profil de Voigt avec $\omega_L = 2 \cdot \gamma_L$ et $\omega_D = 2 \cdot \gamma_D$
- $f_{V_{Max}} = \frac{1}{\omega_V \left(1,065 + 0,447 \left(\frac{\omega_L}{\omega_V} \right) + 0,058 \left(\frac{\omega_L}{\omega_V} \right)^2 \right)}$ est la valeur du profil en σ_0 donné par [40].

L'écart relatif entre cet algorithme et le profil de Voigt est d'au plus de 2% [40].

2.3.3 Calcul des coefficients d'absorption monochromatiques

À l'aide de tous les paramètres décrits précédemment, nous pouvons calculer le coefficient d'absorption monochromatique de l'eau dans les domaines où il n'y a pas de recouvrement avec d'autres espèces. Dans ce cas, l'expression de K_σ [cm^{-1}] est :

$$K_\sigma(\sigma, T, C_{H_2O}, P_{Tot}) = \sum_j S_{\sigma_j}^N(T) f_j(\sigma - \sigma_j, T, C_{H_2O}, P_{Tot}) C_{H_2O} \quad (III.8)$$

La sommation est effectuée sur les transitions de position σ_j .

Afin de prendre en compte l'effet cumulatif des ailes de raie, chaque profil de chaque transition σ_j est calculé sur une plage spectrale de $20 cm^{-1}$ avec une résolution de $0,01 cm^{-1}$. Le programme calcule successivement pour chaque transition j de l'eau la valeur du coefficient d'absorption autour de σ_j en fonction du profil souhaité, de la température du milieu et de la pression totale. Les valeurs de K_{sigma} sur $20 cm^{-1}$ centrées autour de la transition sont stockées dans un vecteur temporaire qui est additionné sur la gamme spectrale adéquate au vecteur de sortie contenant l'ensemble des valeurs du domaine spectral d'intérêt. Ceci permet donc de prendre en compte les effets cumulatifs des ailes de raies. Le principe du calcul est présenté sur la Figure III.2 pour deux raies voisines quelconques :

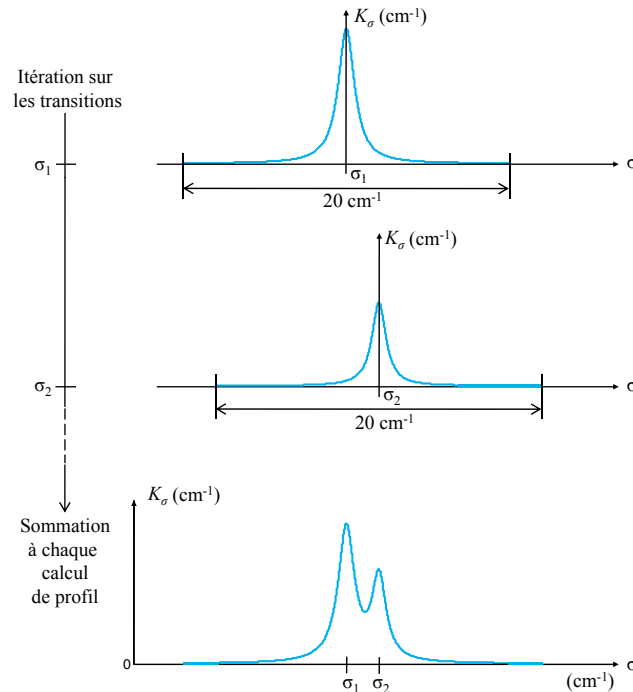


FIG. III.1 – Calculs successifs de deux profils de raies et leur sommation.

Un exemple de résultat entre $12140 cm^{-1}$ et $12160 cm^{-1}$ est présenté sur la Figure III.2 pour un mélange homogène de 26% de vapeur d'eau et de 74% de N_2 , à la température de 2800 K et pour une pression totale de 5,5 bar :

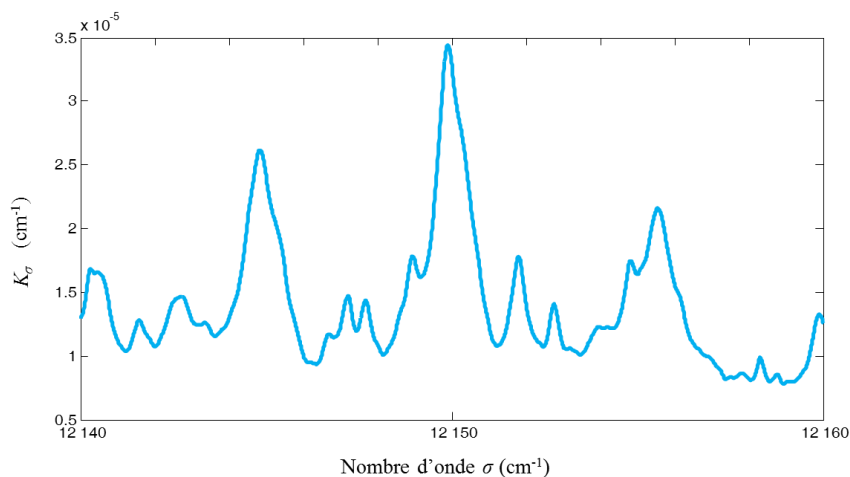


FIG. III.2 – Coefficient d'absorption monochromatique calculé avec HITEMP-10 pour un mélange homogène de 26% de H_2O et de 74% de N_2 à 2800 K et 5,5 bar.

Pour une colonne de gaz homogène et isotherme, la transmission se calcule simplement à partir de K_σ :

$$\tau_\sigma(\sigma, d) = \exp(-K_\sigma(\sigma, T, C_i, P_{Tot}) \cdot d) \quad (\text{III.9})$$

où d est l'épaisseur de gaz. La transmission correspondant à 60 cm du mélange précédent est présentée sur la figure suivante dans la même gamme spectrale :

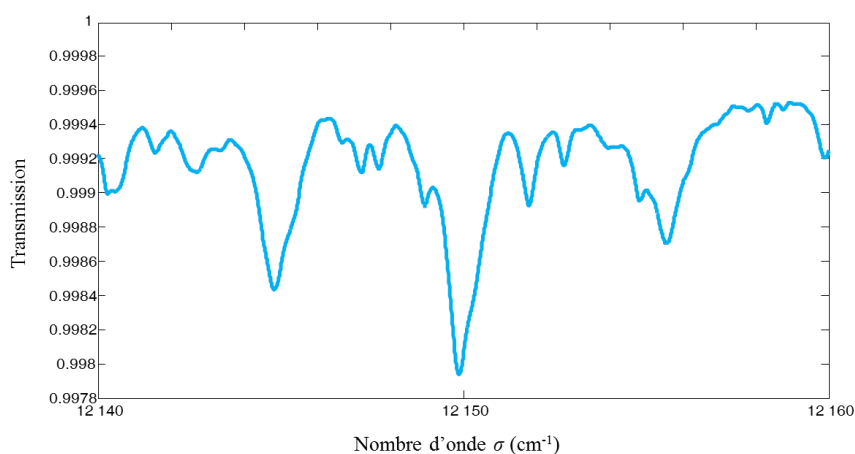


FIG. III.3 – Transmission calculée pour 60 cm de mélange homogène de 26% de H_2O et de 74% de N_2 à 2800 K et 5,5 bar.

3 Dispositif expérimental

Nous avons donc repris la cellule de déflagration conçue pour l'étude de Mme. CHELIN. Cette cellule est une chambre de combustion cylindrique qui propage une flamme d'hydrogène le long du tube. Ce sont les gaz brûlés qui permettent l'étude de la vapeur d'eau à hautes pressions et températures (jusqu'à 3000 K et 200 bar). Notre dispositif expérimental est composé d'un spectromètre à réseau Sopra de focale 1150 mm , d'une caméra Princeton refroidie à l'azote liquide et d'un miroir off-axis pour collecter le signal parallèle issu de la cellule et le faire focaliser sur les fentes d'entrée du spectromètre. Dans cette partie nous décrivons le principe de l'étalonnage radiométrique et spectral afin de recalibrer les pixels en nombre d'ondes ou longueurs d'ondes et transcrire le signal reçu en luminance par mesures de températures sur un corps noir. Enfin nous présenterons la fonction d'appareillage de notre système qui permet de décrire la résolution du dispositif expérimental.

3.1 Description générale

Notre système expérimental est schématisé sur la figure III.1. Le rayonnement émis par la cellule sort parallèlement par le hublot de sortie et est focalisé sur la fente d'entrée du spectromètre à réseau à l'aide d'un miroir off-axis de focale $15,24\text{ cm}$.

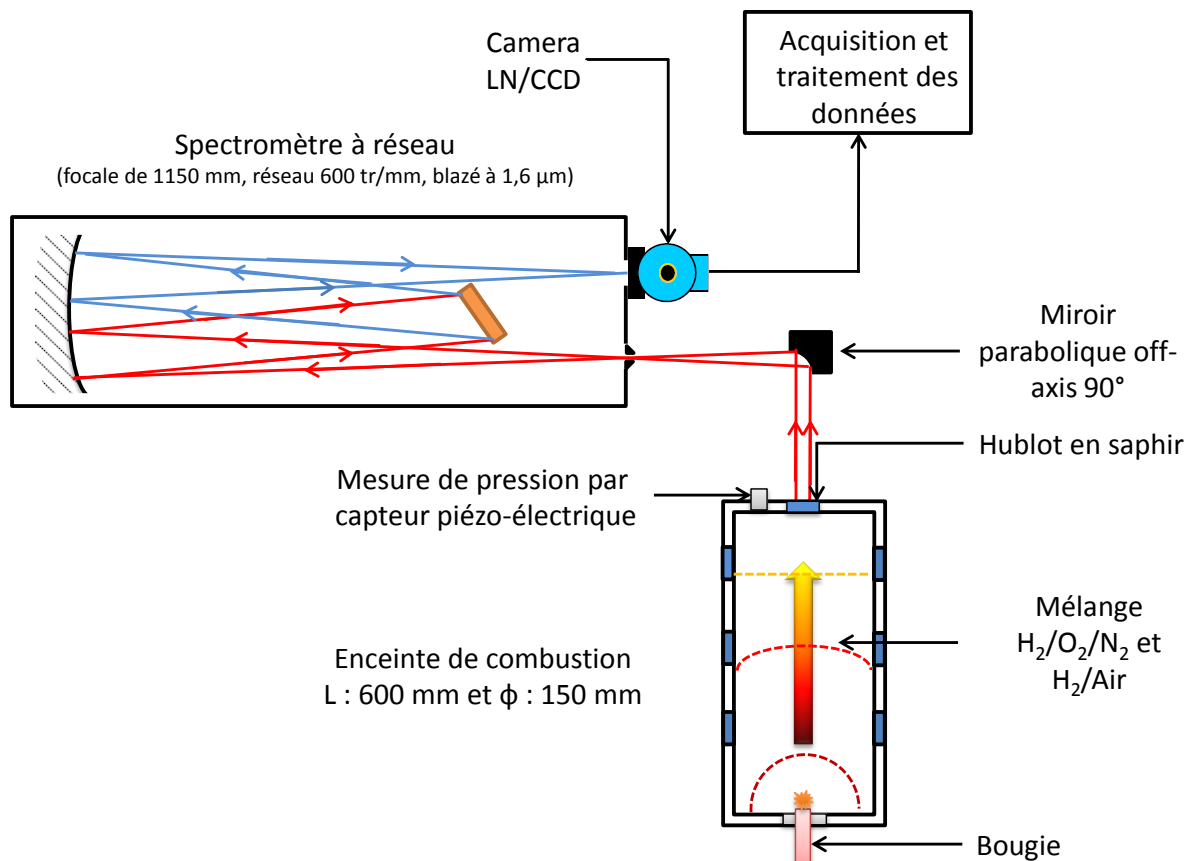


FIG. III.4 – Schéma de principe des mesures spectrales en instationnaire sur H_2O

Le signal est donc focalisé sur la fente d'entrée du monochromateur, le miroir collimateur au fond du spectromètre renvoie le signal sur le réseau qui va diffracter les rayons puis les focaliser

sur la fente de sortie par ce même miroir. La caméra CCD est placée à l'endroit de la fente de sortie et ses pixels vont donc jouer le rôle de fente de sortie. On peut suivre le chemin optique sur le schéma figure III.4.

3.2 Enceinte de combustion

L'enceinte de combustion est constituée d'un tube cylindrique de longueur 600 mm et de diamètre extérieur 200 mm et intérieur de 150 mm, et de deux brides d'épaisseur 25 mm [41]. La structure du tube est réalisée en acier inoxydable de type Z3CN18 – 10 de même que les brides provenant d'une ébauche mécanique qui assure un état de surface le plus lisse possible ($Ra = 0.8 \mu m$). Cette cellule est conçue pour résister à des pressions supérieures à 200 bars. Un joint bleu de marque LOCTITE permet de réaliser l'étanchéité entre les brides et le corps de la cellule. Quatre orifices d'entrée ou sortie ont été ajoutés sur le haut du corps de la cellule :

- un orifice sert à relier la cellule à la pompe à vide primaire,
- un second est relié à l'alimentation de la planche de mélange gazeux par l'intermédiaire de tube souple de diamètre 6 mm,
- un troisième permet le contrôle de la pression de remplissage des mélanges gazeux grâce à un transmetteur de pression statique,
- un dernier orifice permet de relâcher le mélange gazeux en cas de mauvais remplissage ou en fin de déflagration vers l'extérieur de la pièce afin de ramener l'enceinte a pression atmosphérique.

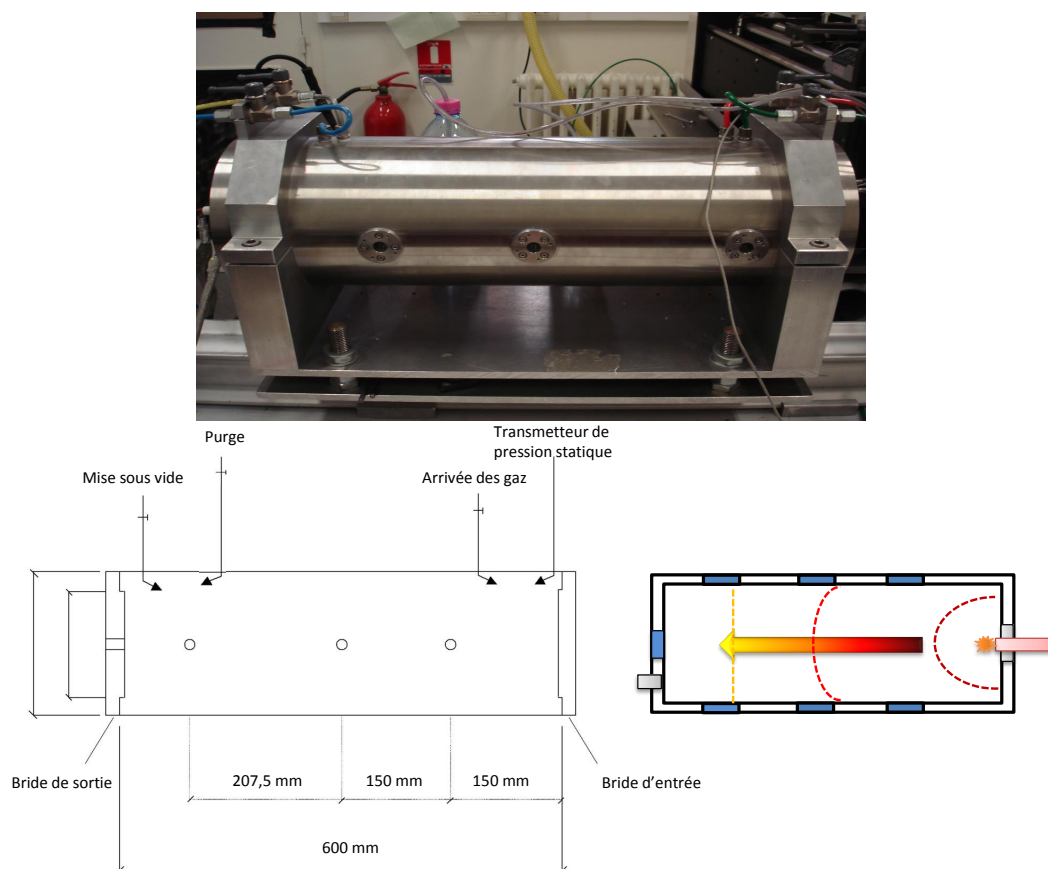


FIG. III.5 – Photographie et schéma de l'enceinte de combustion

Dispositif d'inflammation :

On utilise une bougie de type automobile pour créer une étincelle qui va déclencher la combustion dans la cellule. Le support de la bougie a été conçu en matière isolante par la société LE MARREC afin de ne pas propager de champ électromagnétique dans la cellule. Cette bougie est placée dans la bride d'entrée et dans l'axe de la cellule (figure III.3).

La composition des mélanges est réalisée à l'aide de deux transmetteurs de pression absolue suivant la pression en fin de combustion désirée. Le mélange initial est créé grâce au remplissage en pression partielle des gaz mis en jeu. Cette méthode est plus précise que le remplissage par régulateurs de débit.

On utilise deux capteurs différents, un transmetteur de pression absolue type Kristal *RAG25A2BC1H* calibré pour la gamme 0 – 2 bars avec une précision de ± 0.005 bar et un deuxième transmetteur de pression absolue type Kistler *RAG25A10BV1H* avec une précision de ± 0.005 bar pour la gamme 0 – 10 bar. Les gaz utilisés sont stockés dans des bouteilles de 147 à 200 bars fournies par la société Air Liquide.

3.3 Accès optique : les hublots

Pour étudier la vapeur d'eau sur différentes gammes spectrales, nous avons plusieurs chemins optiques possibles sur notre enceinte de combustion. Pour préserver l'étanchéité de la cellule nous avons choisi d'utiliser des hublots en saphir de diamètre 20 mm et d'épaisseur 5 mm. Le saphir (Al_2O_3) offre un taux de transmission élevé du visible jusqu'au moyen IR (0.18 μm à 5.5 μm) et une très bonne résistance due à la répétition des tirs.

Les hublots ont été dimensionnés d'une épaisseur de 5 mm pour assurer une résistance jusqu'à une pression de 200 bars. Un hublot est monté dans le centre de la bride de sortie et permet la transmission des rayons parallèles issu de l'enceinte sur 14 mm de diamètre vers le système optique de collimation (miroir Off axis de focale 15,24 cm).

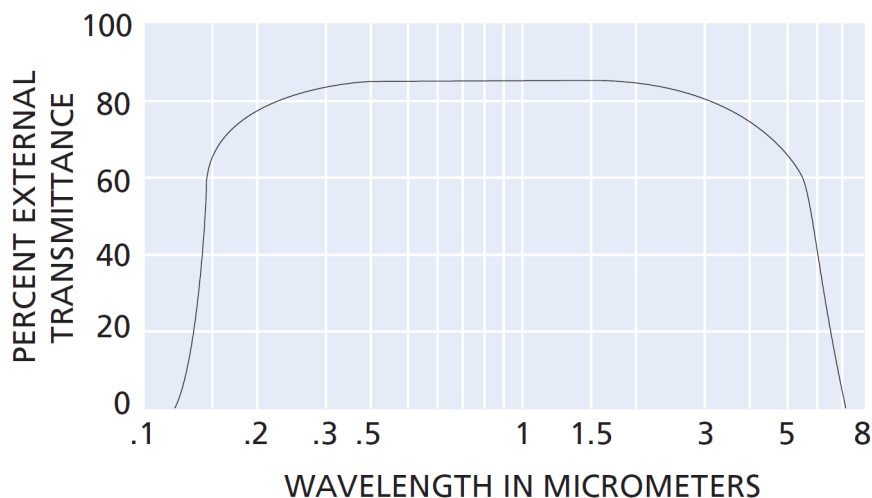


FIG. III.6 – Courbe de transmission d'une fenêtre de saphir d'épaisseur 1 mm (Source : Melles Griot).

3.4 Capteurs de pression

La cellule est équipée de deux types de capteurs de pression : un transmetteur de pression pour le contrôle et la mesure de la pression partielle des gaz de remplissage du mélange et un capteur piézo-électrique pour la visualisation et la mesure de la pression dynamique au cours de la déflagration.

Transmetteur de pression :

Pour les plus faibles pressions partielles de remplissage introduites dans la cellule nous avons utilisé un transmetteur de pression absolue type Kristal *RAG25ABC1H* calibré pour la gamme 0 – 2 *bar* avec une précision de $\pm 0,005$ *bar*. En ce qui concerne le remplissage avec une plus grande charge de gaz, nous avons utilisé un deuxième transmetteur de pression absolue type Kistler *RAG25A10BV1H* calibré pour la gamme 0 – 10 *bar* avec une précision de $\pm 0,005$ *bar*.

Capteur piézo-électrique :

Le capteur utilisé est un capteur avec transmission de charge de type Kistler 6061B, en direction d'un amplificateur de charge de type Kistler 5011B. Ce capteur est en quartz et est refroidi par une circulation d'eau fermée à l'aide d'une pompe. Il permet des mesures de pression dynamique allant de 0 à 250 *bars* avec un temps de montée théorique de 11 μ .

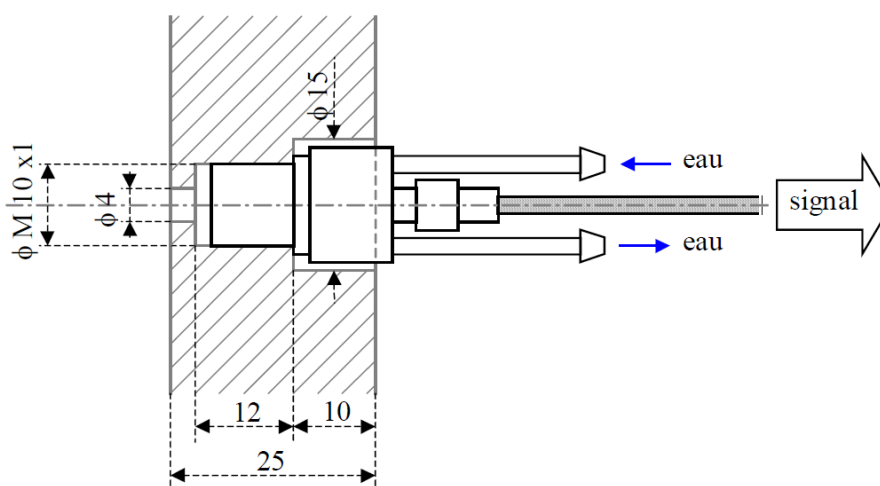


FIG. III.7 – Montage du capteur piézo-électrique dans la bride de sortie de la cellule.

L'amplificateur de charge 5011B commandé par microprocesseur transforme la charge électrique émise par le capteur piézo-électrique en une tension proportionnelle. Nous enregistrons le signal de sortie de l'amplificateur directement pour avoir accès à la pression dynamique. Voici les principales caractéristiques techniques du capteur dynamique :

	Kistler 6061B
plage de mesure	0 – 250 bar
temps de montée théorique	11 μ s
sensibilité	- 26,3 pC/bar
fréquence de résonance	\approx 90 kHz
linéarité (% pleine échelle)	\pm 0,5

FIG. III.8 – Caractéristiques techniques du capteur piézo-électrique Kistler.

3.5 Système d'acquisition de données

L'acquisition des données provenant du capteur piézo-électrique implanté à l'opposé du dispositif d'inflammation ainsi que le retour caméra s'effectue au moyen d'une carte d'acquisition de chez National Instruments PCI 6221. Cette carte peut recevoir mais aussi générer des signaux. C'est par ce dispositif que nous déclenchons le fonctionnement de la caméra. Chaque voie possède un convertisseur analogique/digital codé sur 16 bits qui assure un échantillonnage simultané sur toutes les voies de la carte. La camera fonctionne avec un temps d'intégration de 3,5 ms et un temps de lecture de 2,5 ms entre deux images nous avons donc 6 ms. Nous avons choisi un échantillonnage à 1000 Hz pour suivre avec précision des montées en pression qui durent en général de l'ordre de 50 ms. Nous enregistrons nos données sur une fenêtre temporelle évidemment plus grande afin de savoir exactement quand le phénomène de déflagration a commencé et s'est achevé.

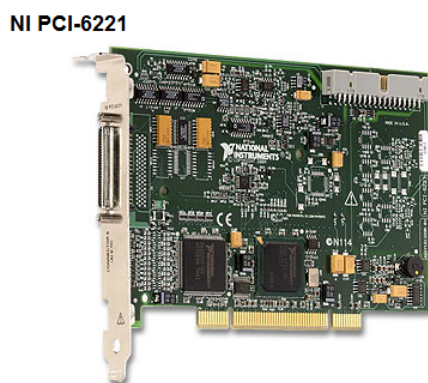


FIG. III.9 – Carte National Instruments 6221 pour l'acquisition de données.

3.6 Élément dispersif : spectromètre à réseau

Pour observer un phénomène tel que la déflagration qui atteint des vitesses de flamme dites subsoniques il faut disposer d'un matériel de détection rapide pour enregistrer les spectres de la vapeur d'eau au cours de celui-ci. Comme cité précédemment, la montée en pression de la déflagration dure une cinquantaine de millisecondes sur une longueur de 60 cm pour un mélange hydrogène-oxygène-azote.

Le rayonnement issu de la déflagration est analysé à l'aide d'un spectromètre à réseau couplé

à une caméra matricielle CCD refroidie par azote liquide qui sera détaillée dans un autre paragraphe. On obtient une fréquence d'acquisition des spectres qui est de 125 spectres/sec. Nous ferons dans un premier temps une description générale des spectromètres à réseau et de leurs propriétés avant de nous intéresser aux caractéristiques du spectromètre SOPRA utilisé.

3.6.1 Rappels théoriques sur les spectromètres à réseau

Un spectromètre à réseau permet d'extraire d'un rayonnement polychromatique émis par une source de radiation comprise dans un intervalle spectral et centré sur une longueur d'onde variable (ajustable par rotation du réseau). Le pouvoir de résolution ou résolvançe d'un spectromètre a pour expression :

$$R = \frac{\nu}{\delta\nu} = \frac{\sigma}{\delta\sigma} = \frac{\lambda}{\delta\lambda} \quad (\text{III.10})$$

Dans cette expression sans dimension ν , σ , λ sont respectivement la fréquence, le nombre d'onde, et la longueur d'onde ; $\delta\nu$, $\delta\sigma$, et $\delta\lambda$ mesurent l'écart qui sépare deux rayonnements monochromatiques que l'on peut résoudre. C'est ainsi que deux rayonnements monochromatiques d'égales intensités seront distingués si leur écart en nombre d'onde est supérieur ou égal à $\delta\sigma$, sinon ils seront confondus.

L'intensité transmise en fonction de σ (ou ν , ou λ) par un spectromètre éclairé par une source monochromatique définit la fonction d'appareil $f(\sigma)$, la largeur à mi-hauteur de cette fonction est peu différente de l'écart $\delta\sigma$ que nous venons de définir par l'expression [III.10]. La fonction d'appareil sera déterminée au paragraphe 3.11.

L'élément analyseur de ce type de spectromètre est un réseau à la surface duquel des milliers de sillons parallèles ont été gravés avec un espacement de l'ordre du micron, appelé pas du réseau. Nous considérons dans notre cas un réseau plan associé à un miroir collimateur. Le réseau reçoit de chacun des points de la source un faisceau élémentaire dont la direction dépend du point source. Pour chacun des faisceaux élémentaires, le réseau va créer alors un déphasage entre les différents points de sa surface qui se comporteront comme des sources secondaires. C'est le phénomène d'interférence entre les ondes diffractées par ces différentes sources secondaires qui permet d'analyser le rayonnement incident.

Lorsqu'un faisceau de rayons parallèles frappe le réseau plan sous un angle d'incidence i , il est diffracté sous l'angle r de façon que la différence de marche entre les rayons issus de deux sillons successifs soit un multiple de la longueur d'onde. On observe un maximum de lumière quand les angles entre les faisceaux incident et diffracté (Figure III.11) obéissent à la loi :

$$a(\sin i + \sin r) = k\lambda = \frac{k}{\sigma} \quad (\text{III.11})$$

Avec a le pas du réseau et k un nombre entier qui représente l'ordre d'interférence du réseau. Dans le classement des différents monochromateurs, A. Valentin [42] définit le spectromètre à réseau comme faisant partie des spectromètres du premier type, puisque la variation de différence de marche est du premier ordre en fonction de l'inclinaison des rayons.

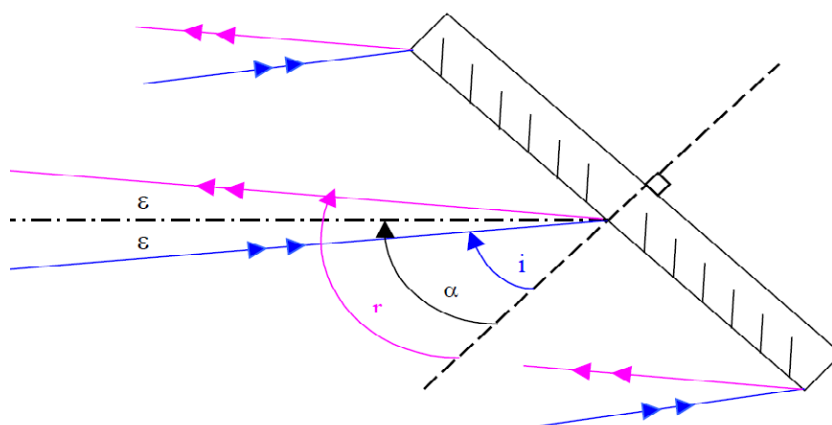


FIG. III.10 – Principe de fonctionnement d'un réseau plan par réflexion.

Dans la configuration présentée ici l'angle de diffraction r vaut $i + 2\varepsilon$ ou ε est appelé l'angle d'Ebert. La caractéristique essentielle d'un spectromètre à réseau est sa dispersion angulaire que l'on obtient en dérivant l'équation [III.2] par r et en fixant i comme étant constant.

$$\frac{\delta r}{\delta \lambda} = \frac{k}{a \cos r} \quad (\text{III.12})$$

La dispersion représente la séparation angulaire δr obtenue pour deux rayonnements séparés de $\delta \lambda$. Elle varie d'une extrémité du spectre à l'autre, ce qui conduira à une variation de la forme de la fonction d'appareil pour une largeur angulaire de fente donnée [43]. Mais dans notre cas où les angles i et r ne varient que légèrement sur la longueur du détecteur, cette variation sera faible et nous ferons alors l'hypothèse que la fonction d'appareil est constante sur le domaine spectral d'étude. Dans le paragraphe concernant la détermination de la fonction d'appareil (paragraphe 3.IV), nous montrerons que les mesures expérimentales confirment cette hypothèse.

La dispersion linéaire se définit comme l'inverse du produit de la dispersion angulaire par la longueur focale F du système. La dispersion linéaire obtenue dans le plan perpendiculaire au rayon diffracté à la longueur d'onde λ s'écrit :

$$\frac{\delta \lambda}{\delta x} = \frac{a \cos r}{kF} \quad (\text{III.13})$$

Le pouvoir de résolution théorique, valeur limite de résolution qui ne saurait être dépassée et ne peut être approchée sans une perte considérable de luminosité à une expression simple dans le cas d'un spectromètre à réseau. Si L est la largeur éclairée du réseau, le pouvoir de résolution théorique est alors donné par :

$$R_0 = k \frac{L}{a} = kN \quad (\text{III.14})$$

Avec N : le nombre de traits éclairés sur le réseau.

En reportant l'équation [III.11] on peut réécrire cette équation par :

$$R_0 = \frac{L(\sin i + \sin r)}{\lambda} \quad (\text{III.15})$$

On s'aperçoit alors que les réseaux performants sont les grands réseaux et ceux pouvant travailler sous de grands angles. Une autre caractéristique importante du spectromètre est sa luminosité. Le flux qu'un spectromètre est capable de transmettre au détecteur pour une source de

luminance donnée est lié à l'étendue géométrique du faisceau admise par l'instrument de mesure. L'étendue de faisceau d'un spectromètre à réseau est donnée par le produit de la surface S de la section droite du réseau par l'angle solide Ω de la fente.

3.6.2 Caractéristiques de notre spectromètre à réseau : SOPRA UHRS F1150

L'élément dispersif tout comme le détecteur utilisé dans notre étude ont été choisis spécifiquement dans le but d'analyser en mode dynamique les spectres hautes résolutions de H_2O issus d'une combustion à base d'hydrogène réalisée dans notre enceinte cylindrique.

Le spectromètre à réseau est de fabrication SOPRA, modèle UHRS F1150 de longueur focale 1150 mm, figure III.12. Sa disposition optique est de type Ebert-Fastie. Le nom de Fastie est associé à la disposition optique d'Ebert car en 1952 il réalisa le premier spectromètre pour lequel un même miroir sphérique assure la collimation et la focalisation du faisceau incident et diffracté comme dans le spectrographe d'Ebert [42]. C'est ainsi que le flux parallèle issu de la zone de combustion à analyser est collimaté par le système d'entrée du spectromètre SOPRA constitué d'une fente fine courbe, de largeur réglable allant de 0 à 3500 μm avec une précision de $\pm 1 \mu\text{m}$, placée au foyer objet du seul miroir sphérique. Ce type de montage à miroir présente l'avantage de supprimer toute aberration chromatique.

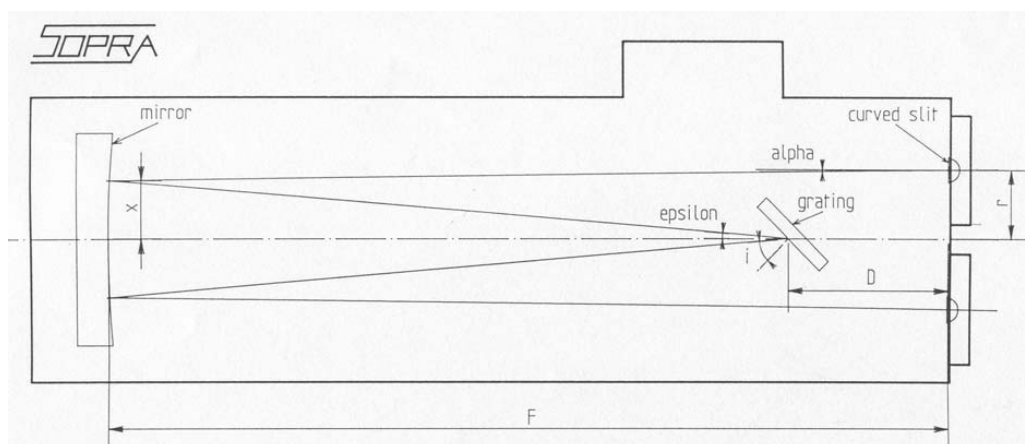


FIG. III.11 – Montage Ebert-Fastie du SOPRA UHRS F1150.

Nous pouvons admettre, dans une première approximation, que pour une radiation monochromatique, tous les rayons diffractés sont parallèles à un même plan que nous avons caractérisé par l'angle d'émergence r commun à tous les rayons. En toute rigueur cet angle d'émergence est celui des rayons qui sont dans le plan de section principale, c'est-à-dire les rayons issus du centre de la fente. Les rayons issus des moitiés supérieure et inférieure de la fente qui ne se trouvent plus dans le plan de section principale n'ont pas exactement la même direction d'émergence, ce qui conduira au phénomène de courbure de l'image de la fente. C'est pourquoi afin de s'affranchir de ce problème de courbure d'image de fente, nous avons éclairé la fente d'entrée uniquement en son centre en focalisant le faisceau parallèle issu de l'enceinte par un miroir OFF axis de focale 15,24 cm.

Nous réglons pour nos mesures la fente d'entrée à 20 μm de large et les rayons diffractés sont collectés par la matrice CCD multicanale placée dans le plan focal de sortie du spectromètre, à la place d'origine de la fente de sortie SOPRA. La matrice est composée de 1340 pixels horizontaux \times 400 pixels verticaux, ces derniers jouant le rôle de fentes de sortie. Chaque pixel est un carré de 20 μm d'arête. Ainsi, le meilleur compromis entre luminosité et résolution est

obtenu avec une image de la fente d'entrée qui a même largeur que la fente de sortie. Nous n'utiliserons pour les mesures que 100 lignes sur la matrice CCD de la camera ainsi que du binning sur ses lignes afin d'améliorer le signal rapport sur bruit significativement. Le binning consiste à regrouper des pixels dans la direction verticale du capteur du détecteur. Les charges reçues par les capteurs sont cumulées dans le CCD. On peut par cette technique augmenter la sensibilité au détriment de la résolution. Dans notre étude, nous utilisons la pleine matrice de détecteur, nous ne dégradons donc pas la résolution mais améliorons le temps de lecture et la sensibilité de l'image. Avec ce spectromètre nous pouvons mesurer de l'ultraviolet jusqu'au moyen infrarouge, de 0,18 à 3,2 μm en utilisant les quatre premiers ordres d'un réseau plan Richardson Grating Laboratory de 110 mm \times 135 mm possédant 600 traits par millimètre et blazé à 1,6 μm .

La symétrie du montage d'Ebert permet de simplifier les formules théoriques du spectromètre à réseau. En effet en posant : $r = i + 2\varepsilon$ (Figure III.11), la relation [III.11] qui donne la valeur de l'angle d'incidence sur le réseau en fonction de la longueur d'onde se simplifie par :

$$a \times 2\sin(i) \times \cos(\varepsilon) = k\lambda \cdot 10^{-6} = kN\lambda \cdot 10^{-6} \quad (\text{III.16})$$

Avec λ la longueur d'onde exprimée en nm, ε l'angle Ebert et qui vaut 4,29° pour le modèle SOPRA UHRS F1150, et N le nombre de traits du réseau ici 600 traits/mm. La relation [III.4]

nous donne la dispersion linéaire exprimée nm/mm dans le plan focal et se simplifie par :

$$\frac{\delta\lambda}{\delta x} = \frac{\lambda}{2F \tan(i)} \quad (\text{III.17})$$

Avec λ la longueur d'onde exprimée en nm, F la distance focale du spectromètre ici 1150 mm.

Dans notre système nous allons nous intéresser à la longueur d'onde de 820 nm, en regardant la dispersion linéaire de cette raie de l'eau. Dans notre cas, la mesure de cette raie se fait à l'ordre 2. Nous utiliserons un filtre pour cette longueur d'onde car il existe un recouvrement des ordres qui apporte un signal parasite à la mesure comme le montre la figure III.13.

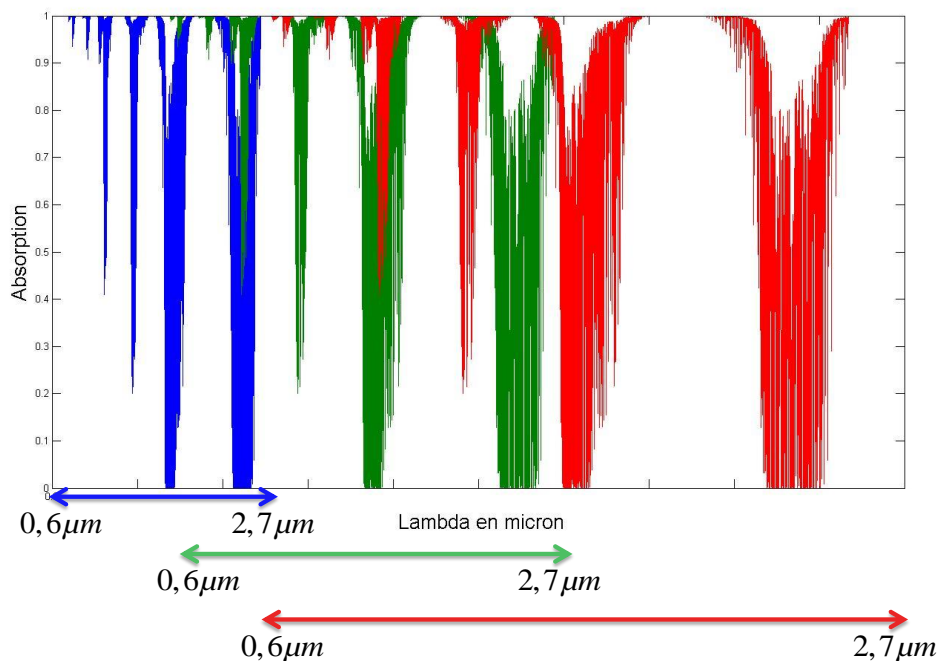


FIG. III.12 – Recouvrement des différents ordres 1(bleu), ordre 2(vert), ordre 3(rouge) de notre spectromètre SOPRA.

Pour s'affranchir du signal parasite, nous utiliserons un filtre passe bande centré à $0,85 \mu m$ dont la courbe de transmission est tracée ci-dessous.

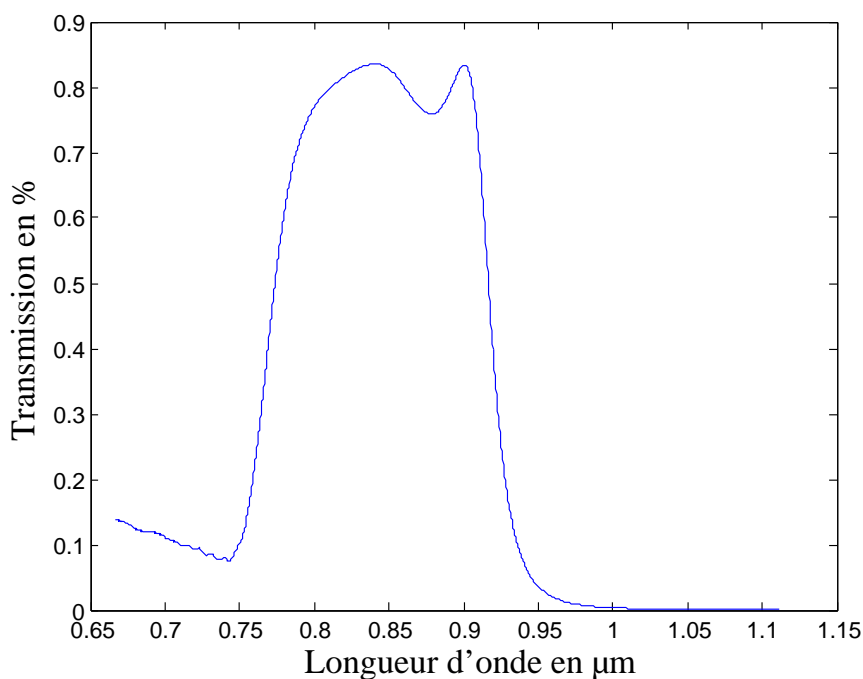


FIG. III.13 – Courbe de transmission du filtre passe bande.

Dans le domaine centré à 820 nm (12195 cm^{-1}), la dispersion linéaire est de l'ordre de $0,651 \text{ nm/mm}$ avec un angle d'incidence de $25,671^\circ$. Le pouvoir de résolution du spectromètre

SOPRA est donné par la relation :

$$R = 0,9R_0 \quad (\text{III.18})$$

Avec R_0 le pouvoir de résolution théorique, 0,9 représente le facteur de qualité du spectromètre lorsque celui-ci est complètement éclairé. Dans notre cas le réseau est éclairé à moitié, le facteur de qualité n'est plus de 0,9 mais de 0,45 avec un pouvoir de résolution effectif qui est $R = 36550$.

Dans le domaine centré à 820 nm (12195 cm^{-1}), la résolution $\delta\lambda = \frac{\lambda}{R}$ vaut $0,022 \text{ nm}$ et $\delta\sigma = \frac{\sigma}{R}$ vaut alors $0,333 \text{ cm}^{-1}$. Nous montrerons par la fonction d'appareillage que nous sommes à la limite maximale de résolution de notre système.

Le spectromètre Ebert-Fastie permet d'approcher les limites théoriques de la diffraction avec un montage dont l'encombrement reste raisonnable et un système optique particulièrement simple. Outre les performances optiques du spectromètre SOPRA, notre choix s'est porté sur ce système qui possède un balayage linéaire en longueur d'onde grâce à un système de bras de sinus (Figure III.15).

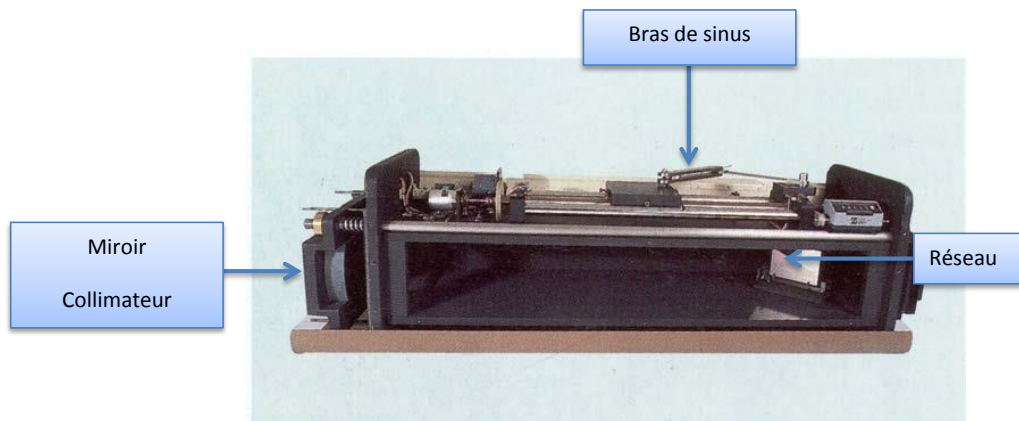


FIG. III.14 – Spectromètre SOPRA UHRS F1150 vu de côté.

Le réseau est fixé sur une monture mobile en rotation autour d'un axe O parallèle aux traits du réseau. Cette monture est mue par un bras de levier de demi-longueur 208 mm, articulé à un bras de même longueur solidaire d'un écrou mobile le long d'une vis sans fin. La longueur d'onde est alors fonction linéaire du déplacement du chariot d'entraînement [44]. Par ailleurs pour ce spectromètre de grande focale, la stabilité thermique qui permet de meilleures performances spectrales est assurée par les barres de support du spectromètre fabriquées en invar par la société SOPRA, dont le coefficient de dilatation thermique est de $0,2 \cdot 10^{-6}/K$ à température ambiante. Pour comparaison, l'aluminium possède un coefficient de $22 \cdot 10^{-6}/K$.

3.7 Détection

Comme indiqué précédemment, nous avons également défini le type de détecteur pour notre étude de mesure de l'intensité et de la forme des raies de H_2O à pression et température élevées.

3.7.1 Caractéristiques générales de la camera

Pour l'acquisition des spectres, nous utilisons une caméra de Princeton Instruments type Spec-10 :400B. Cette caméra est composée d'une matrice CCD de la marque EEV (EEV

CCD36) possédant 1340 pixels horizontaux \times 400 pixels verticaux, dédiées à la spectroscopie. Chaque pixel est un carré de longueur $20 \mu\text{m}$. Elle possède une dynamique de 16 bits, ce qui permet dans le cas de nos mesures de détecter des flux très faibles avec un codage du signal sur 65 536 niveaux. La caméra est reliée à un contrôleur ST-133 d'acquisition et de gestion du détecteur, lui-même relié à un PC de contrôle utilisant le logiciel WinSpec.

Nous avons placé la matrice CCD multicanale dans le plan focal de sortie du spectromètre, à la place de la fente de sortie d'origine. L'alignement de la caméra par rapport au plan focal s'effectue à l'aide de deux platines de translation et d'un élévateur mécanique, en optimisant la mesure d'un doublet d'une lampe à vapeur de sodium situé à 589 nm . La photographie suivante (Figure III.12) représente le couplage spectromètre / caméra et illustre les dimensions du détecteur.

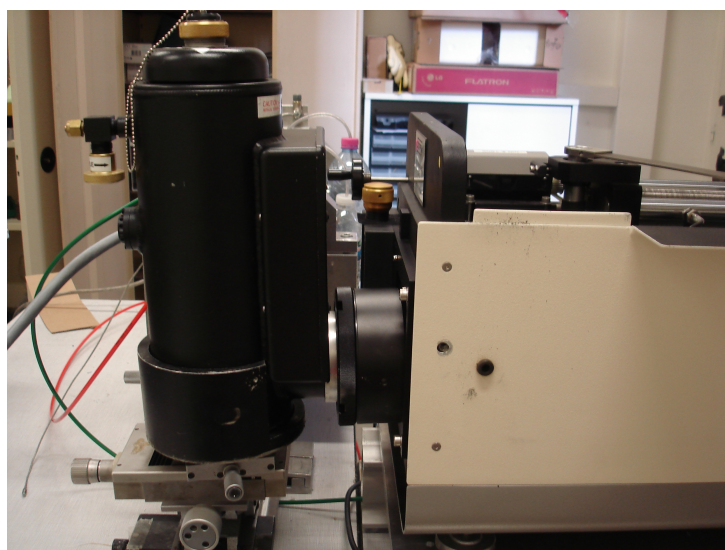


FIG. III.15 – Couplage camera-spectromètre.

Le CCD est monté dans un cryostat refroidi à l'azote liquide permettant de maintenir le détecteur à une température cryogénique de -120°C avec une stabilité de $\pm 0,05^\circ\text{C}$. Le cryostat assure une autonomie supérieure à 24 heures, ce qui permet de réduire fortement le bruit thermique propre au détecteur pendant toute la durée des essais. Nous avons préféré porter le détecteur à une température cible de -110°C pour que la réponse du détecteur soit tout le temps identique. Nous nous sommes rendu compte qu'en la mettant à la température la plus basse possible il y avait de légères variations de la réponse de la caméra, et donc des spectres, compte tenu de l'étalonnage. Un obturateur mécanique de 40 mm de large, interne à la caméra est placé devant le CCD. Il permet l'acquisition d'images ou de spectres sans aucune autre exposition du CCD jusqu'à une fréquence de 10 Hz . Il faut cependant tenir compte du délai d'ouverture de l'obturateur qui est de 12 à 13 ms . Compte tenu de la vitesse d'acquisition de spectres que nous souhaitons obtenir pendant la combustion d'une durée moyenne de 50 ms sur 600 mm , nous n'avons pas utilisé l'obturateur mécanique.

3.7.2 Efficacité quantique de la camera Ln/CCD

La matrice de détecteur Silicium possède une plage spectrale allant de l'ultra-violet vers 200 nm jusqu'au proche infrarouge à 1100 nm . Il faut tenir compte de l'efficacité quantique de la camera suivant la longueur d'onde étudiée, le domaine de réponse nous a été fourni par la société Princeton Instruments. La caméra a une matrice CCD d'une largeur de 26,8 mm

qui donne accès à une vingtaine de nanomètres soit environ 300 cm^{-1} . Pour le domaine centré sur 820 nm (12195 cm^{-1}), le domaine spectral couvert est compris entre 812 et 828 nm ($12077 - 12315 \text{ cm}^{-1}$) avec une efficacité quantique de l'ordre de 70%.

Lorsque le domaine spectral est centré sur la raie à 820 nm , l'efficacité quantique est légèrement inférieure que pour la raie à 550 nm qui est son maximum de rendement quantique. Ce phénomène est compensé par le fait que les molécules sont plus actives dans l'infrarouge et présentent des raies avec de plus grandes intensités.

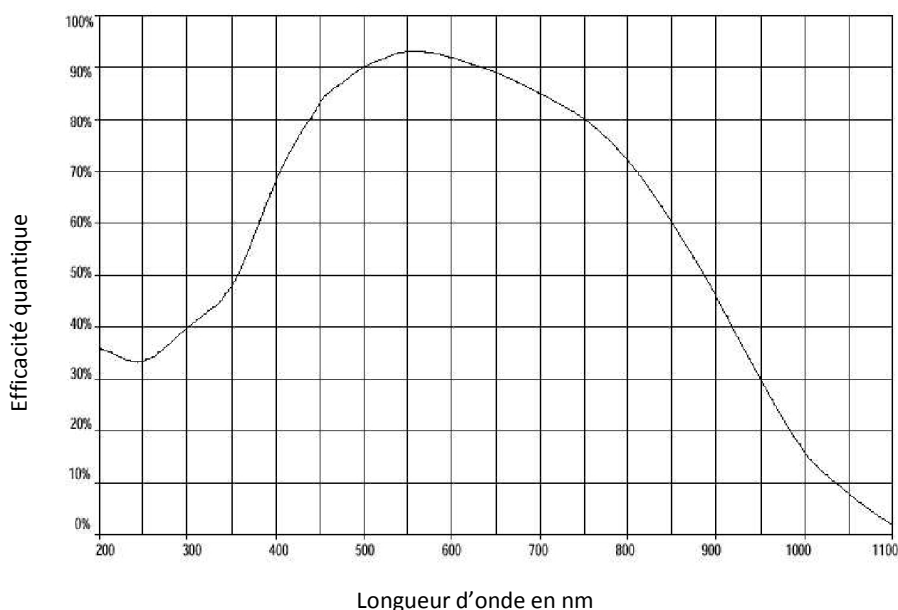


FIG. III.16 – Efficacité quantique de la camera LN/CCD 400.

3.7.3 Temps d'intégration du signal et fréquence d'acquisition

Nous avons dû trouver un compromis entre le temps d'intégration du capteur CCD et la fréquence d'acquisition que nous voulions qui est pilotée par le temps de lecture et de nettoyage du capteur. Le spectromètre apporte une haute résolution des spectres de la vapeur d'eau, mais le signal reçu par la caméra est très faible. Pour augmenter la fréquence d'acquisition des spectres et dans le même temps améliorer le rapport signal sur bruit nous avons utilisé le principe du binning vertical dans le logiciel WinSpec. Le binning somme l'intensité de plusieurs pixels en les regroupant. Nous avons choisi alors de positionner la caméra afin que seulement les 100 premières lignes de la matrice de lecture soient éclairées en sortie de spectromètre. Nous effectuons un binning total sur ces 100 lignes.

Pour le mélange hydrogène-oxygène-azote, nous avons enregistré les spectres de la vapeur d'eau avec un temps d'exposition de $3,5 \text{ ms}$ et une vitesse de lecture de la matrice de $2,5 \text{ ms}$ soit 166 spectres par seconde et ceci quel que soit le domaine spectral d'étude. Pour chaque essai, nous avons simultanément enregistré le signal de pression dynamique ainsi que le signal de sortie du contrôleur (appelé scan out) qui permet de visualiser les périodes où le CCD est exposé et les périodes où le CCD est en phase de lecture et nettoyage. Ces informations nous permettront d'identifier avec précision la pression de chaque spectre de raies enregistré.

3.8 Principe de l'étalonnage des mesures

3.8.1 Lampe étalon

Puisque nous enregistrons les spectres de la vapeur d'eau sur un domaine spectral peu étendu pour une position fixe du réseau, il nous a paru nécessaire de conserver la précision des mesures en utilisant une lampe étalon par calibration spectrale. Nous avons choisi d'étudier tout particulièrement pour nos travaux les bandes de ro-vibration peu intenses de H_2O situées entre $0,7 \mu m$ et $1 \mu m$. C'est pourquoi le choix s'est porté sur une lampe néon type UVP Pen-Ray 6032 qui possède un spectre discret de raies assez intenses entre $0,7 \mu m$ et $1 \mu m$ (Figure III.18).

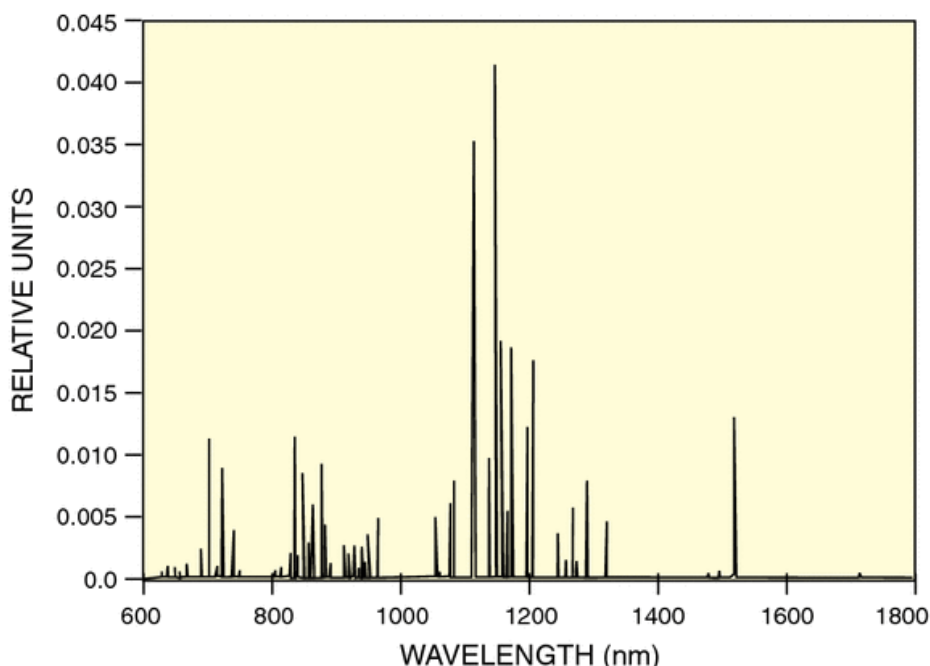
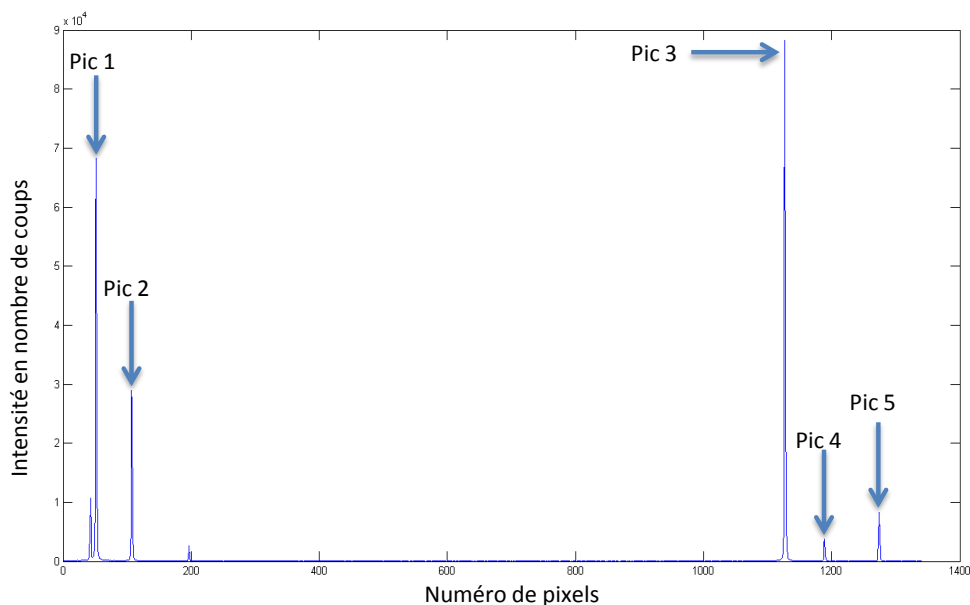


FIG. III.17 – Raies caractéristiques de la lampe Néon 6032 de chez Newport.

Afin de connaître avec précision la position des raies de notre lampe étalon, nous nous sommes référés à la banque de données des spectres atomiques du Physics Laboratory au National Institute of Standards and Technology (NIST) [45] qui nous donne un catalogue complet des niveaux d'énergie et de la position des raies du néon de l'ultraviolet jusqu'à infrarouge lointain.

Ces données proviennent en majorité des mesures réalisées par Byron A. Palmer à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier sur une lampe à décharge remplie de Néon [ref 3.13 Chelin]. De plus, afin d'éliminer le rayonnement parasite issu des ordres supérieurs des raies des Néon, c'est-à-dire suivant la raie étudiée l'ordre 2 ou 3, nous avons utilisé en sortie de lampe le filtre passe bande présenté dans le paragraphe 3.8 de ce chapitre avec sa courbe de transmission. Le fait d'utiliser ce filtre ne change en rien ni la forme ni la position des raies mais simplement leur niveau d'intensité.

La figure III.19 présente le spectre du Néon enregistré avec le filtre passe bande dans le domaine centré à 12195 cm^{-1} .

FIG. III.18 – Spectre de la lampe Néon centré autour de 12195 cm^{-1} .

Dans le tableau III.3 nous répertorions la position des 5 raies étalons enregistrées dans la région centrée à 12195 cm^{-1} .

	Base de données NIST Nombre d'onde dans le vide (cm^{-1})	Base de données NIST Longueur d'onde dans le vide (nm)
Pic 1	12094,3101	826,8350
Pic 2	12104,1199	826,1664
Pic 3	12287,3942	814,7341
Pic 4	12298,3942	813,114
Pic 5	12314,0853	812,0781

TAB. III.3 – Position des raies étalons du Néon centré autour de 12195 cm^{-1} .

3.8.2 Calibration spectrale

La mesure de la longueur d'onde est généralement basée à partir de l'interpolation entre les raies étalons. En condition de manipulation, la caméra CCD reçoit une intensité en Y et des numéros de pixels en x. En repérant la position de toutes les raies, le problème va être de reconstituer un spectre $Y(x)$ dans l'échelle des nombres d'ondes $Y(\sigma)$ à partir du spectre enregistré sur la matrice CCD avec une précision suffisante pour conserver tous les paramètres spectraux et raies sans perdre de l'information. On peut écrire la relation suivante entre la position en pixels x et le nombre d'ondes σ .

$$\sigma_k = f_k(x) \quad (\text{III.19})$$

Avec k l'ordre de diffraction du réseau.

Avant chaque enregistrement de spectres nous devons refaire cette calibration spectrale puisque

le couplage numéro de pixels/longueur d'ondes peut varier spatialement de quelques micromètres (soit un décalage de quelques centièmes de cm^{-1}) dus au remplissage du dewar ou au démontage de la bride d'entrée par exemple. Avant chaque enregistrement des raies de H_2O , nous devons procéder à l'enregistrement des raies étalons de la lampe Néon. Nous allons utiliser un développement polynomial de la forme :

$$\sigma_k = \sum_{i=0}^n A_{ik} x^i \quad (III.20)$$

Les coefficients A_i sont déterminés pour chaque enregistrement à partir des couples $[\sigma(Ne), x(Ne)]$ correspondant à chacune des raies étalons de la lampe Néon. Pour déterminer les coefficients A par un calcul des moindres carrés, il faut que ceux-ci soient inférieurs au nombre de couples étalons. Par cette méthode on minimise l'écart entre le nombre d'onde $\sigma(Ne)$ et la valeur obtenue par le calcul :

$$\sigma = \sum_{i=0}^n A_i x(Ne)^i \quad (III.21)$$

J'ai identifié 5 raies dans la zone centrée à 12195 cm^{-1} , j'ai limité le développement du polynôme au deuxième degré car le développement de ce polynôme au degré trois n'apporte pas de précision supplémentaire significative sur la position des raies. On peut alors déduire la position des raies inconnues σ_j par rapport aux pixels x_j par la relation :

$$\sigma_j = \sigma_0 + A_1 x_j + A_2 x_j^2 \quad (III.22)$$

Le spectre de la lampe Néon (figure III.20) dans le domaine centrée a 12195 cm^{-1} est représenté après étalonnage sur la figure III.18.

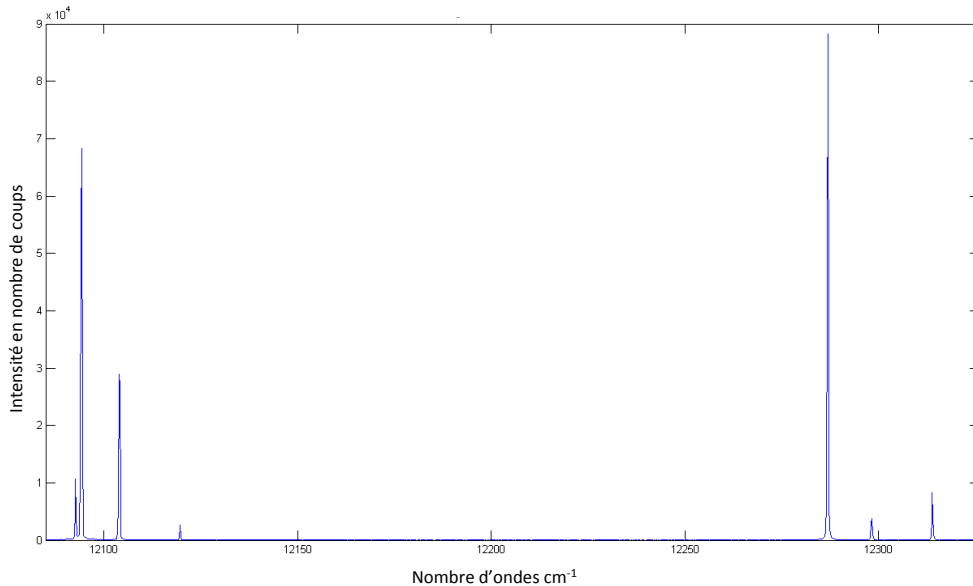


FIG. III.19 – Spectre de la lampe Néon étalonné centré autour de 12195 cm^{-1} .

La formule reliant la longueur d'ondes aux pixels s'écrit ici :

$$\sigma_j = 12085,202262666 + 0,174726965616173x_j + 3,71649889882586e - 6x_j^2 \quad (III.23)$$

3.8.3 Calibration radiométrique

Lorsque l'on effectue une mesure, la grandeur de sortie recueillie par le détecteur varie selon les conditions d'utilisation de l'appareillage, et plus particulièrement de la surface visée, de l'angle solide d'observation, du gain du détecteur, de la bande passante des optiques utilisées...

Pour pouvoir convertir le signal de sortie en unité exploitable, il faut alors tracer la courbe traduisant la correspondance entre la grandeur de sortie S^0 et la température T ou la luminance d'une source de référence connue. Pour nos calibrations, nous avons utilisé un corps noir tubulaire de type PYROX pouvant atteindre 1900 K lui-même étalonné grâce à un pyromètre étalon du LNE. Le corps noir doit être placé afin de recouvrir le champ de vue du faisceau de visée. On peut ainsi faire la correspondance entre la grandeur de sortie ou signal mesuré exprimé en unité arbitraire, et la luminance théorique du corps noir $L_{\sigma}^0(T)$ en $[W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm]$.

$$L_{\sigma}^0(T) = A(\sigma)S^0 + U_0 \quad (\text{III.24})$$

Avec

$$L_{\sigma}^0(T) = \frac{c_1 \sigma^3}{\exp(\frac{c_2}{T} \sigma) - 1} \quad (\text{III.25})$$

- $c_1 = 2hc^2 = 1,191042722.10^{-12}[W.cm^2.sr^{-1}]$.
- $c_2 = \frac{hc}{k} = 1,4387752[K.cm]$ et σ est exprimée en cm^{-1} .

Il faut noter que $A(\sigma)$ est indépendant de la fonction d'appareil du spectromètre qui fera l'objet du paragraphe suivant. La fonction d'appareil est un paramètre intrinsèque au monochromateur et $A(\sigma)$ que l'on peut appeler constante d'appareil est fonction de la configuration du banc expérimental. La constante U_0 traduit un décalage éventuel d'origine, mais en fait permet aussi de mieux approcher les résultats expérimentaux car l'hypothèse selon laquelle chaque élément de la caméra matricielle est monochromatique n'est pas tout à fait réaliste ; la largeur de bande spectrale de chaque pixel n'est en fait pas négligeable [46].

Pour un nombre d'onde donné, la courbe $A(\sigma) = f(T)$ dépend de la linéarité du détecteur en fonction de l'énergie reçue. Nous avons mesuré le signal pour des températures comprises entre 1873 K et la température limite où le système ne reçoit plus de signal afin de ne pouvoir obtenir des luminances négatives. Le faisceau issu du corps noir de référence traverse la cellule de combustion dont la bride d'entrée a été ôtée, et suit ainsi le même parcours optique que celui du rayonnement de la flamme. Les spectres du corps noir sont obtenus sur une moyenne de 500 spectres acquis avec le même temps d'exposition et la même cadence d'échantillonnage que les spectres de la vapeur d'eau.

La figure III.18 présente les spectres corps noir mesurés dans le domaine centré à 12195 cm^{-1} auxquels on a ôté le fond moyen également obtenu sur une séquence de 500 enregistrements.

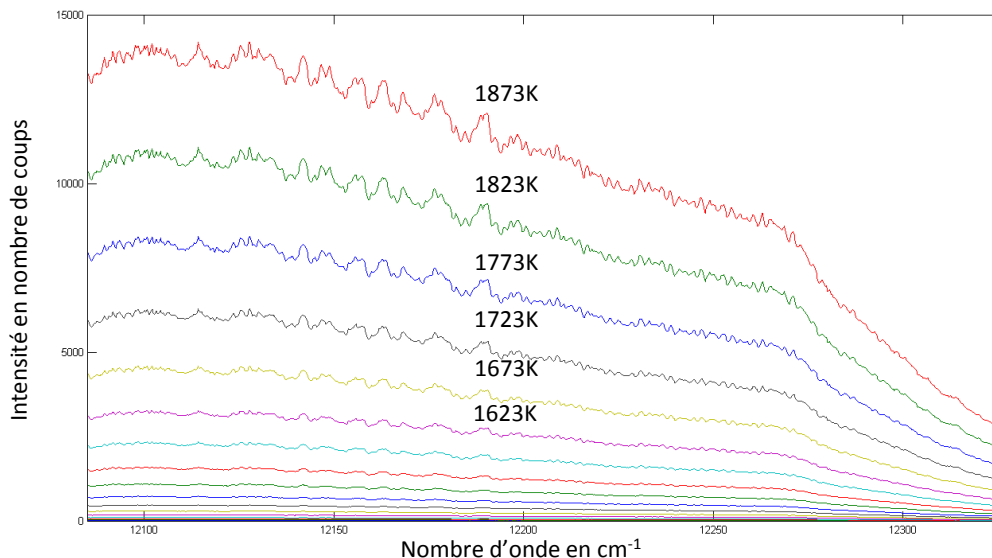


FIG. III.20 – Spectres mesurés issus du corps noir de référence pour un temps d'intégration de 3,5 ms.

Dans ce domaine, nous retrouvons une linéarité de notre détecteur (Figure III 20).

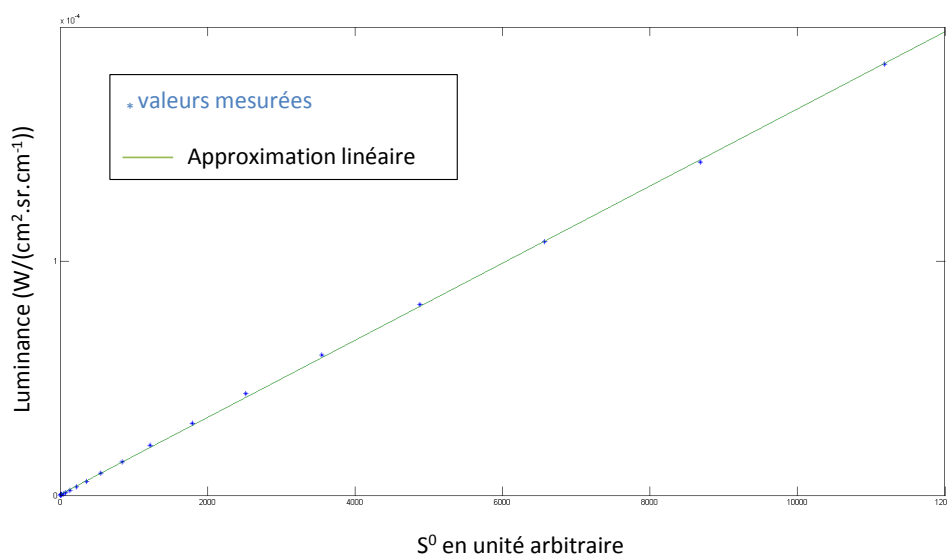


FIG. III.21 – Réponse de la camera pour $\sigma = 12200,34 \text{ cm}^{-1}$.

3.9 Détermination de la fonction d'appareillage

3.9.1 Définition

La connaissance précise de la fonction d'appareil est nécessaire puisqu'elle traduit la réponse d'un spectromètre éclairée par une radiation monochromatique. La forme d'une raie de la vapeur d'eau n'est pas donnée directement par le spectromètre à réseau. La forme de raies enregistrées est une convolution entre la fonction d'appareillage et la forme "vraie" des raies ou forme "à résolution infinie". Afin d'extraire les caractéristiques spectroscopiques de la vapeur d'eau (positions des raies, intensité, largeur à mi-hauteur), nous devons définir avec précision la

fonction d'appareillage. Cette fonction sera fondamentale pour la comparaison de nos données expérimentales avec la modélisation

La fonction d'appareillage est également appelée réponse impulsionnelle spectrale définissant les propriétés du monochromateur. Elle est caractérisée par le produit de convolution entre la figure de diffraction du réseau et la transmission des fentes. Notre système est réglé de telle sorte que les fentes d'entrée et de sortie son image l'une de l'autre. Nous avons retiré la fente de sortie pour y placer la camera qui possède 400 pixels verticaux et 1340 horizontaux d'arête $20 \mu m$. En réglant la fente d'entrée sur $20 \mu m$ nous sommes dans la configuration décrite ci-dessus. Nous considérons que la fonction d'appareillage ne varie pas assez sensiblement sur l'étude d'un domaine. C'est-à-dire que la variation des angles d'incidence et de diffraction est si faible sur un domaine centré que nous pouvons la considérer constante sur ce domaine. Mais lorsque que nous changeons de domaine d'étude celle-ci doit être déterminée à nouveau.

Comme pour la calibration spectrale, nous utilisons une lampe à Néon pour définir la fonction d'appareillage en enregistrant les raies étalons du Néon dans le domaine étudié. Cette lampe étalon possède des raies très fines (données constructeur), on fera l'hypothèse que la largeur de ces raies est négligeable par rapport à la largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareillage.

3.9.2 Détermination de la fonction d'appareillage

Pour la caractériser parfaitement, on s'intéresse dans ces mesures de raies étalons à la forme de l'enveloppe des raies ainsi que leur largeur à mi-hauteur. Pour notre gamme d'étude centrée à 12195 cm^{-1} nous avons sélectionné 5 pics sur les sept. Dans cette partie on présentera la réponse des raies du domaine. Pour chaque raie étudiée, on normalise et décale en nombre d'onde les raies étalons pour qu'elles soient toutes centrées les unes sur les autres et nous comparons leurs formes et finesses.

Cette fonction d'appareillage a été dans un premier temps modélisée par une fonction Gaussienne qui donne l'avantage de bien définir le haut des raies mais n'apporte pas la contribution sur le pied des raies. Ensuite ces raies ont été modélisées par une fonction Lorentzienne qui garde bien la forme des pics mais qui surestime la forme des pieds des raies. Nous avons donc choisi de combiner une fonction Gaussienne et Lorentzienne pour déterminer avec précision notre fonction d'appareillage qui est de la forme :

$$f(x) = C_D \exp\left(-\ln 2 \frac{x^2}{\gamma_D^2}\right) + C_L \frac{\gamma_L^2}{\gamma_L^2 + x^2} \quad (\text{III.26})$$

- γ_D la demi-largeur de la composante Gaussienne en cm^{-1} .
- γ_L la demi-largeur à mi-hauteur de la composante Lorentzienne en cm^{-1} .
- C_D et C_L des constantes non corrélées, représentant le poids respectif de chaque composante.
- pour chaque raie centrée en σ_0 on aura $x = \sigma - \sigma_0$.

Afin de déterminer les 4 paramètres de la fonction d'appareillage $f(x)$, un programme d'optimisation faisant appel à la méthode Gauss-Newton qui minimise la valeur des coefficients recherchés que nous avons initialisés par :

- $C_D = 0,65$.
- $C_L = 0,65$.
- $\gamma_D = 0,25 \text{ cm}^{-1}$.
- $\gamma_L = 0,2 \text{ cm}^{-1}$.

Le programme de dépouillement retourne les coefficients qui recollent le mieux aux raies normalisées dans le domaine centré à 12195 cm^{-1} ainsi que la figure modélisée par rapport aux raies (Figure III 21). Les coefficients sont :

- $C_D = 3,6890744$.
- $C_L = 0,1596465$.
- $\gamma_D = 0,1681665 \text{ cm}^{-1}$.
- $\gamma_L = 0,5986444 \text{ cm}^{-1}$.

À l'aide du programme d'optimisation, nous avons modélisé la forme de la fonction d'appareil dans le domaine centré à 12195 cm^{-1} . Nous n'utiliserons cependant pas le résultat tel quel dans le produit de convolution avec le spectre à "résolution infinie" puisque l'une des propriétés mathématiques de la fonction d'appareil est la normalisation de son intégrale. Les valeurs à utiliser seront donc définies par la fonction $f(x)$ telle que :

$$\tilde{f}(x) = \frac{f(x)}{\int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx} \quad (\text{III.27})$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx = C_D \times \gamma_D \sqrt{\frac{\pi}{\ln(2)}} + C_L \times \gamma_L \pi \quad (\text{III.28})$$

La fonction d'appareillage vérifiera ainsi :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{f}(x)dx = 1 \quad (\text{III.29})$$

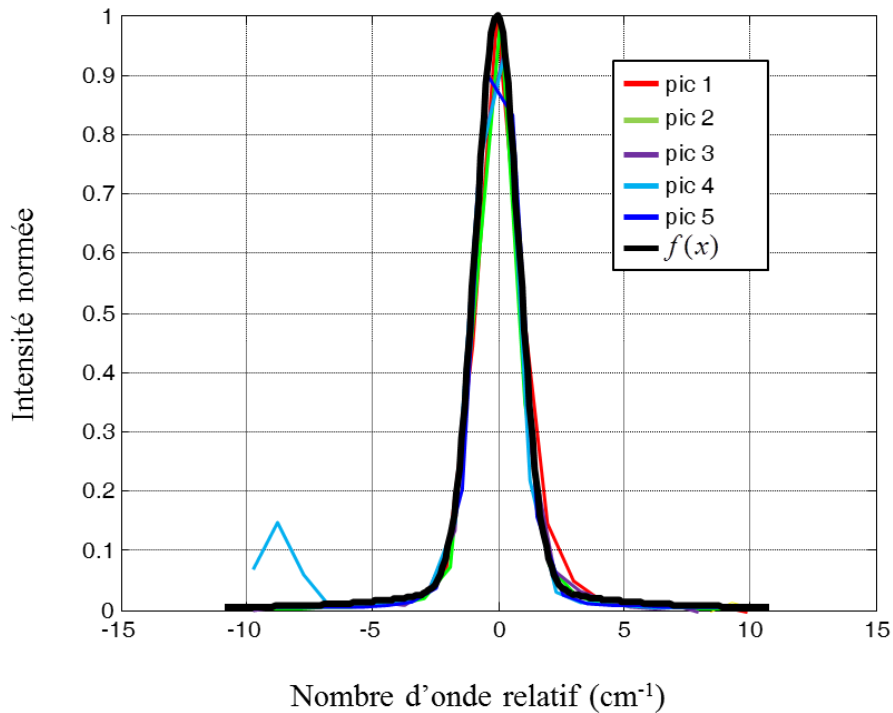


FIG. III.22 – Modélisation de la fonction d'appareillage centrée à 12195 cm^{-1} .

4 Présentation des mesures

Les mesures du spectre de la vapeur d'eau ont été réalisées jusqu'à 20 *bar* et 3000 *K*. La cellule à déflagration a été conçue pour résister à des pressions (≈ 200 *bar*) et des températures plus élevées sans altération des matériaux. Nous avons décidé de nous limiter à ces pressions et températures car elles englobent idéalement le fonctionnement des moteurs et statoréacteurs.

4.1 Méthodologie de traitement

L'acquisition brute du spectre de la vapeur d'eau ne permet pas une exploitation directe des paramètres spectroscopiques. En effet avant chaque tir, il faut au préalable replacer la lampe étalon au néon pour vérifier que le système n'a pas bougé suite au démontage ou nettoyage entre deux tirs. Cela permet aussi de ne pas compromettre l'étalonnage radiométrique au corps noir car une variation de quelques pixels entraînerait un décalage en longueur d'onde qui se répercuterait sur le spectre en luminance.

Ces vérifications étant faites, il faut tenir compte du bruit du système. Pour cela, lorsque la cellule est chargée du mélange $H_2/O_2/N_2$, on enregistre le signal du mélange avant le début de la déflagration. Ceci permet de vérifier qu'aucun système ne perturbe la mesure et nous sert de mesure de fond. Après la déflagration, on retranche le fond mesuré au signal acquis que l'on détermine grâce à la visualisation du retour caméra.

Le signal obtenu en unité arbitraire peut être ainsi converti en luminance par l'étalonnage ce qui nous permet de la comparer au modèle de rayonnement.

Lors de la déflagration, les spectres d'émission de la vapeur d'eau sont enregistrés par la caméra au cours du temps. La Figure III.24 est une représentation en 3 dimensions de l'ensemble des spectres enregistrés lors d'une déflagration dans le domaine $12080 - 12310 \text{ cm}^{-1}$, pour le mélange initial suivant $40\%N_2 / 40\%H_2 / 20\%O_2$:

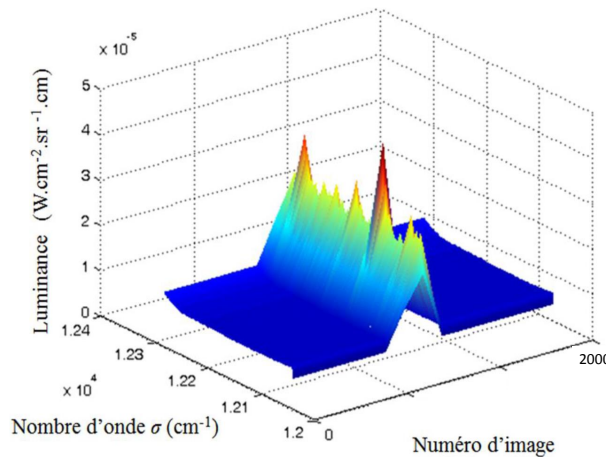


FIG. III.23 – Représentation 3D de l'ensemble des spectres acquis dans le domaine spectral $12080 - 12310 \text{ cm}^{-1}$ au cours d'une déflagration.

Le spectre d'intérêt qui est conservé est celui correspondant à la fin de la combustion lorsque la pression atteint une valeur maximale. Un système d'acquisition constitué d'une carte " National Instruments " nous a permis de faire correspondre la mesure de la pression avec le retour caméra qui donne une information sur la prise d'image. La Figure III.25, montre la superposition entre la courbe de pression en vert et le retour caméra constitué par un ensemble de

créneaux compris entre 0 et 5 Volts. À chaque palier de 5 Volt correspond une acquisition caméra (3,5 ms). Le spectre conservé est celui qui conjugue pression maximale et stabilité dans le temps de l'acquisition (partie encadrée sur la Figure III.25).

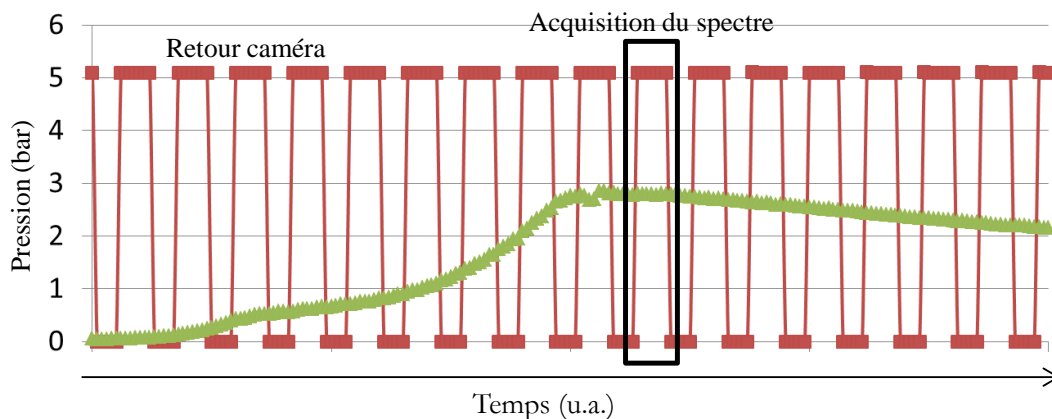


FIG. III.24 – Mesure de la pression (courbe verte) et retour caméra (créneaux).

4.2 Répétabilité des mesures

Afin de vérifier la répétabilité des mesures, nous avons réalisé plusieurs tirs pour différents mélanges réactionnels à des températures adiabatiques de flamme et des journées différentes. Nous comparons les résultats obtenus sur la figure III.26 et III.27.

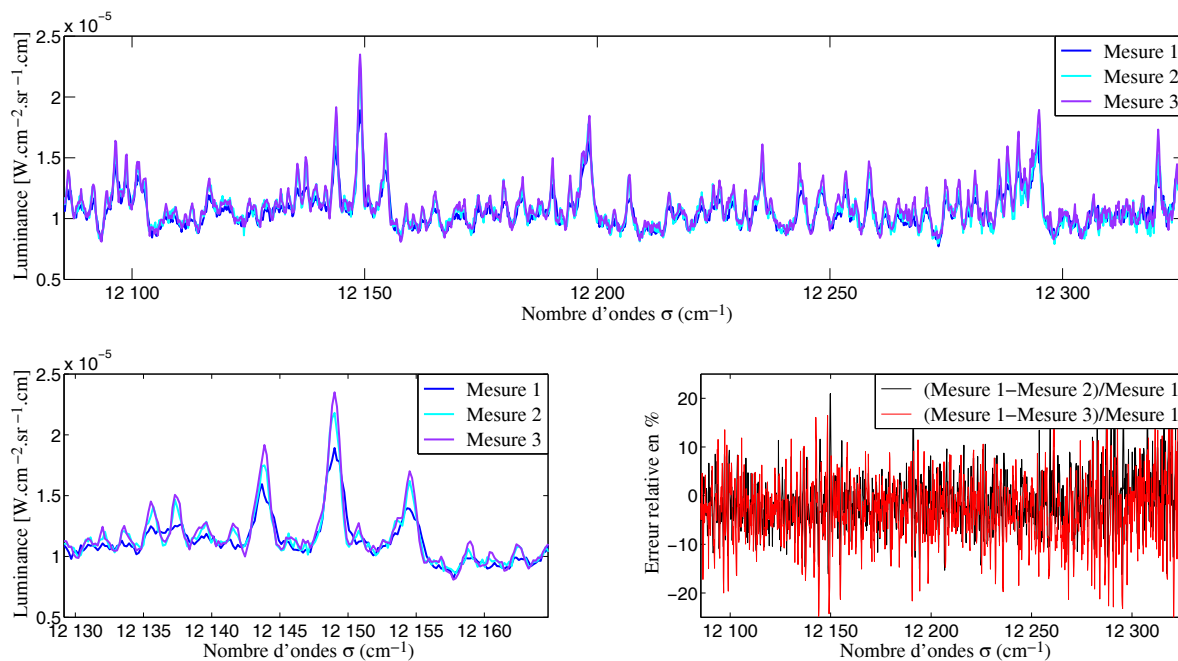


FIG. III.25 – Étude de la répétabilité des mesures pour un mélange chargé à 68% N_2 / 21% H_2 / 11% O_2 atteignant une température adiabatique de flamme de 2300 K et une pression de 15 bar pour une formation de 23% de vapeur d'eau.

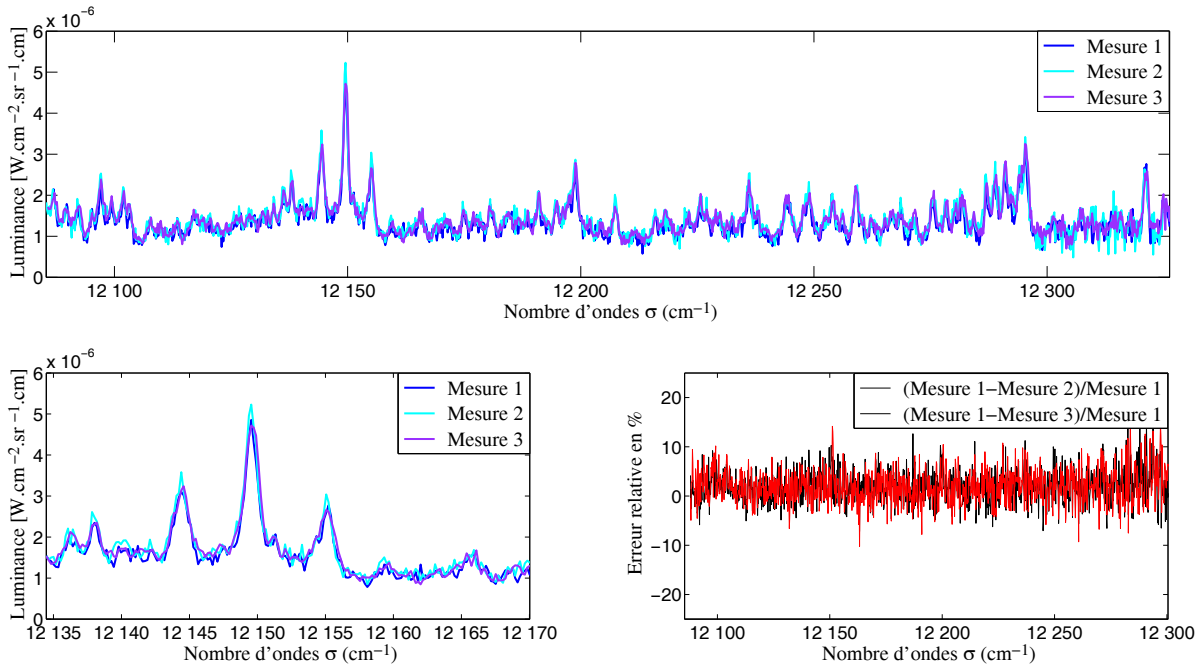


FIG. III.26 – Étude de la répétabilité des mesures pour un mélange chargé à 50% N_2 / 33% H_2 / 17% O_2 atteignant une température adiabatique de flamme de 2900 K et une pression de 9,6 bar pour une formation de 39,5% de vapeur d'eau.

L'accord entre les trois mesures est satisfaisant et confirme la répétabilité de la mesure : le mélange de gaz est reproductible d'une mesure à une autre ainsi que son mode opératoire.

4.3 Présentation de quelques mesures : effet de la pression totale, effet de la température

Ce paragraphe présente les résultats de spectres d'émission de la vapeur d'eau en fonction des paramètres intrinsèques de la combustion (Pression en fin de combustion, Température adiabatique de flamme, pourcentage de vapeur d'eau formée).

Effet de la pression :

La figure III.28 présente l'évolution du spectre d'émission de la vapeur d'eau en fonction de la pression pour un mélange donné (57% N_2 / 29% H_2 / 14% O_2). Lorsque la pression en fin de combustion augmente, les raies s'élargissent. Plus la pression est importante et plus les raies s'élargissent pour tendre vers un maximum en luminance régi par la loi du corps noir.

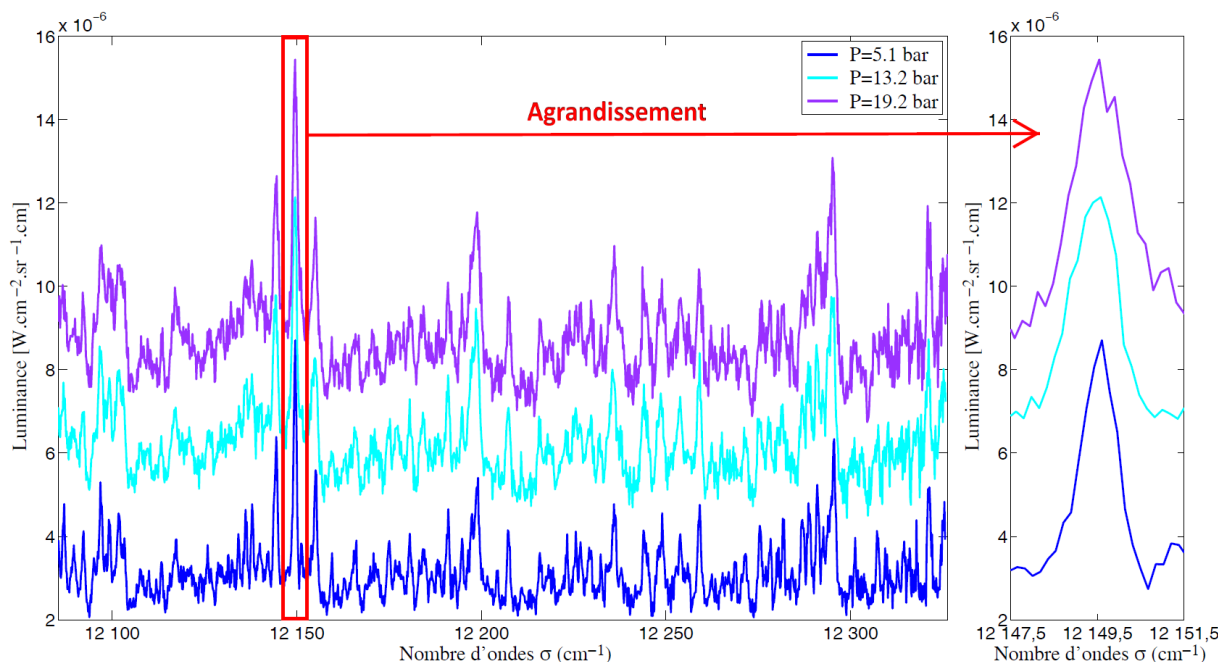


FIG. III.27 – Spectre d’émission de la vapeur d’eau pour un mélange chargé à 57%N₂ / 29%H₂ / 14%O₂ atteignant une température adiabatique de flamme de 2700 K et une formation de 29,5% de vapeur d’eau pour différentes pressions.

Effet de la température :

La figure III.29 présente l’évolution du spectre d’émission de la vapeur d’eau pour une même pression mais pour des températures différentes. On voit que lorsque la température augmente, l’intensité des raies (ou l’absorption) augmente significativement.

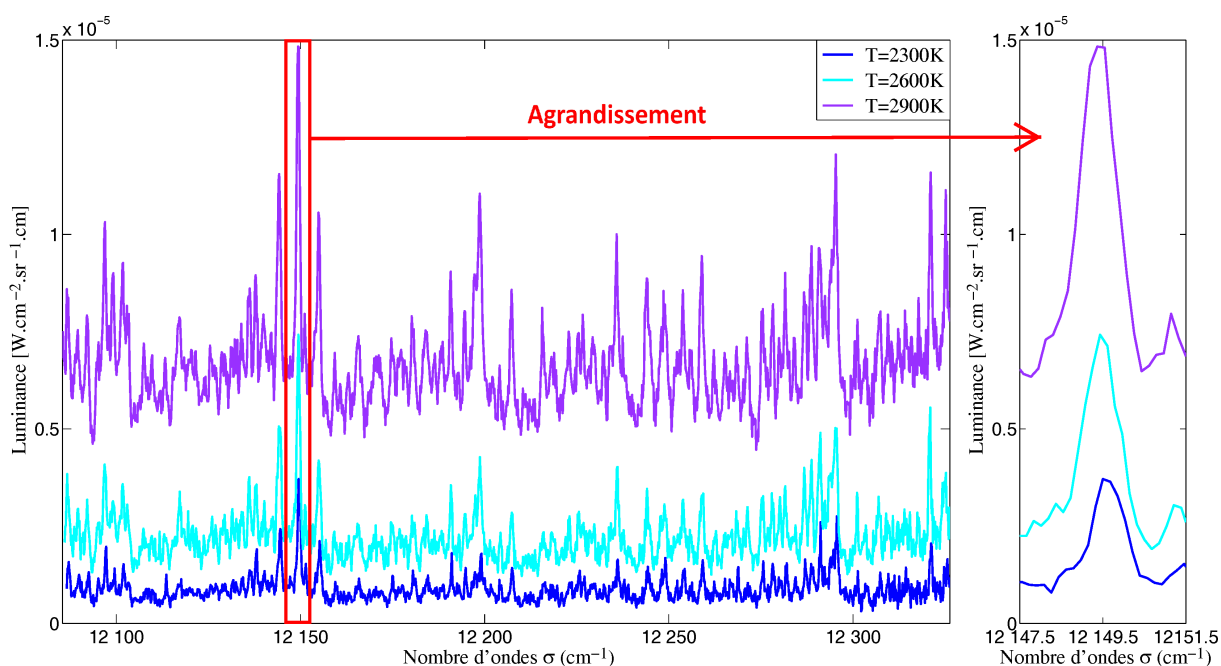


FIG. III.28 – Spectre d’émission de la vapeur d’eau à une pression de 7,1 bar pour différentes températures de flamme en fin de combustion.

4.4 Comparaison entre les mesures et les résultats du modèle de rayonnement

Afin de comparer mesure et simulation, il est bien entendu indispensable de connaître avec précision l'état thermodynamique du mélange gazeux étudié. Il nous faut déterminer la pression totale, la température mais aussi la fraction de vapeur d'eau formée au moment où le spectre est mesuré. La connaissance de la pression est donnée grâce à la valeur du capteur piézo-électrique correspondant à la prise d'image de la caméra. La température finale, ainsi que la fraction de vapeur d'eau formée en fin de réaction est calculée grâce au logiciel libre "GASEQ" disponible à l'adresse suivante : <http://www.gaseq.co.uk/>. Il est envisagé d'utiliser prochainement un code de calcul de l'Onera ("CEDRE") qui nous permettra de simuler temporellement la déflagration et de déterminer le profil spatial de la température au cours de la réaction. Le modèle, qui comporte une fonction d'appareillage afin de permettre la comparaison avec les mesures, est celui présenté dans le chapitre III paragraphe 1 qui s'appuie sur la base de données HITEMP 2010 [2]. Lorsque la pression est inférieure à une dizaine de bar, nous remarquons une bonne concordance entre le calcul et l'expérience, comme le montre les figures suivantes relatives à différentes déflagrations :

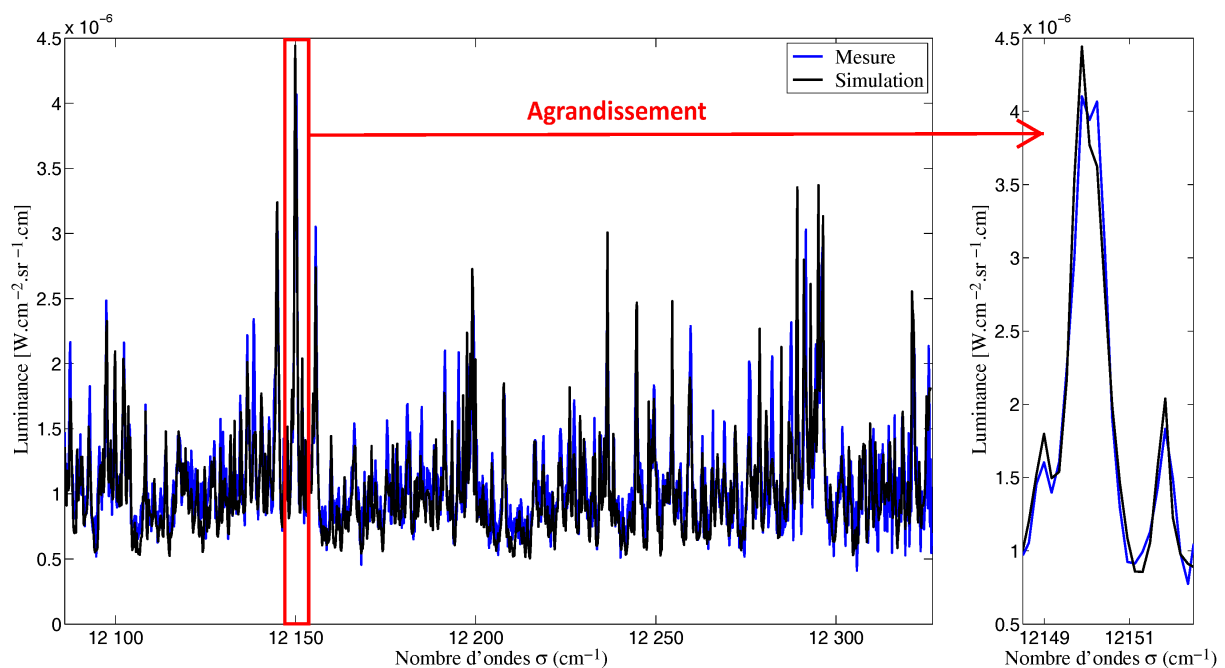


FIG. III.29 – Comparaison entre la déflagration (3,3 bar - 2540 K, 27,5% de vapeur d'eau) et la simulation.

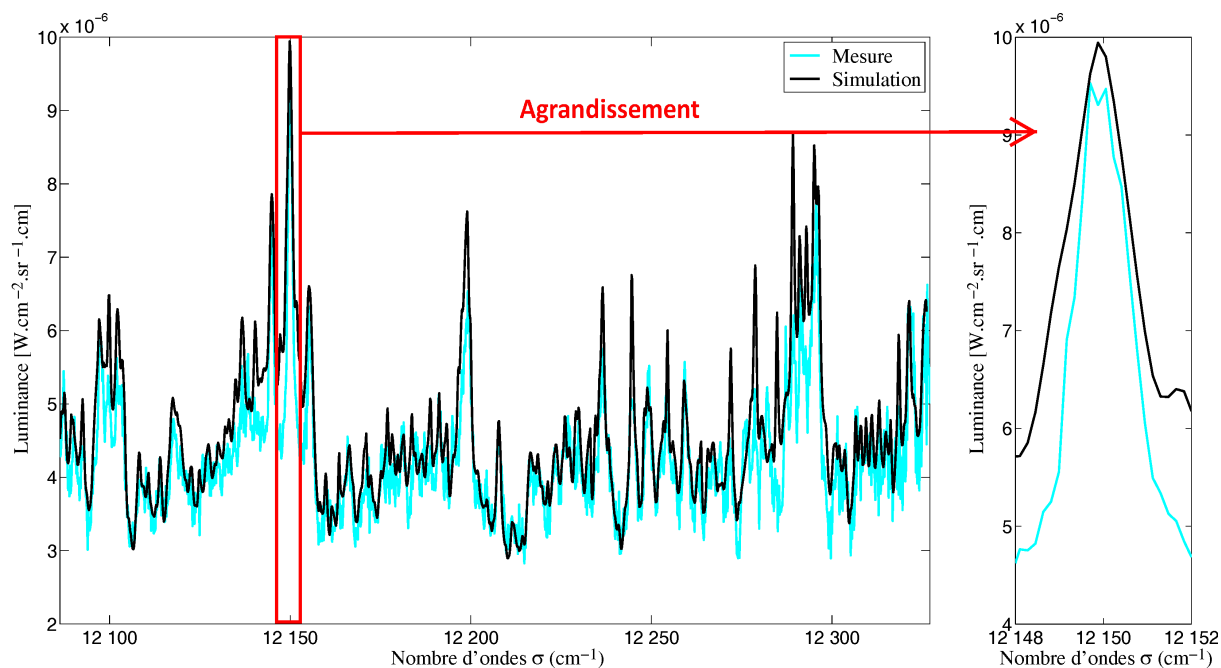


FIG. III.30 – Comparaison entre la déflagration (14,1 bar - 2556 K, 28,3% de vapeur d'eau) et la simulation.

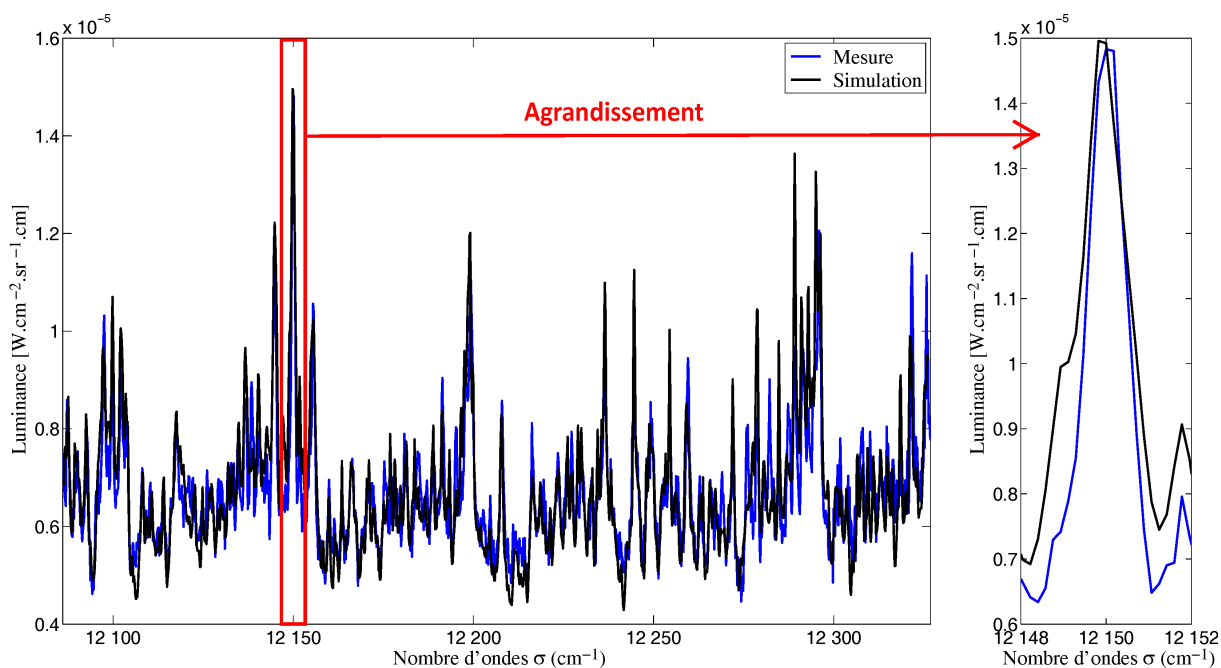


FIG. III.31 – Comparaison entre la déflagration (7,1 bar - 2900 K, 39,5% de vapeur d'eau) et la simulation.

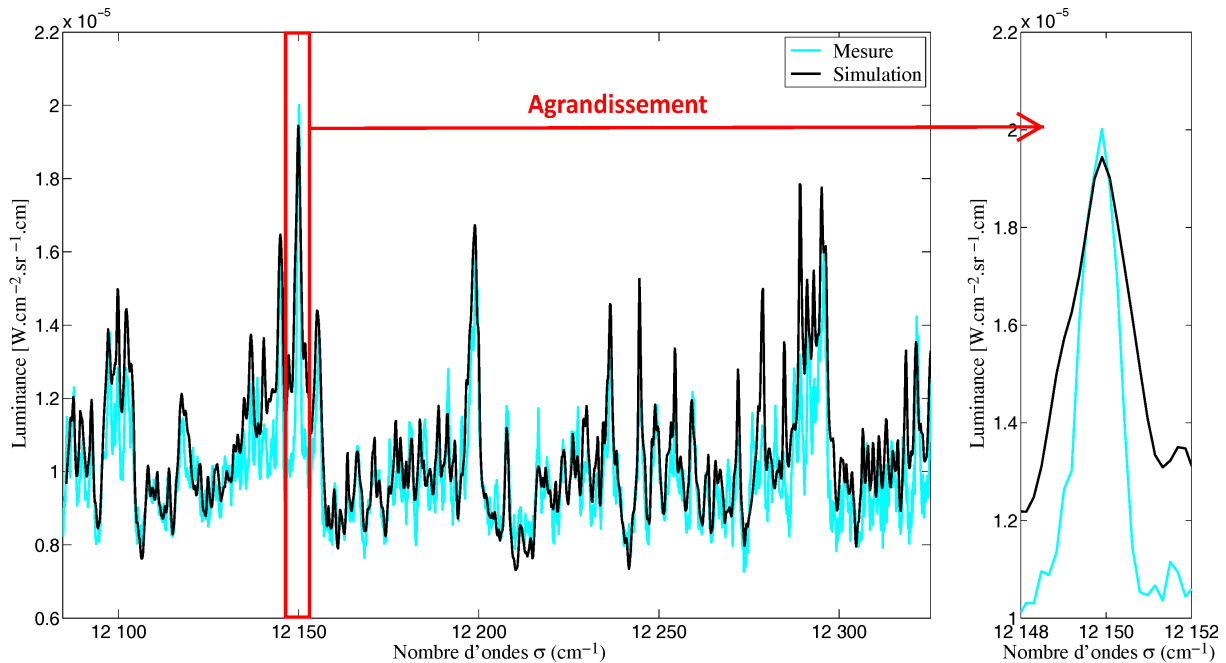


FIG. III.32 – Comparaison entre la déflagration (11,7 bar - 2900 K, 39,5% de vapeur d'eau) et la simulation.

Pour des pressions plus élevées que 10 bar, des différences plus marquées apparaissent entre la mesure et la simulation comme le montre la Figure III.31 et III.33 relatives à des déflagrations pour lesquelles la pression en fin de réaction dépasse 10 bar.

Ceci s'explique par des raisons expérimentales ainsi que théoriques. Aux plus hautes pressions, le mélange initial contient une plus grande quantité de réactifs. La mesure est réalisée par un capteur de pression totale de gamme plus étendue entraînant une perte de précision dans le mélange initial. Concernant la modélisation, les coefficients d'élargissement des raies d'absorption sont moins bien connus dans la littérature aux hautes pressions. **Cette divergence justifie notre choix d'effectuer ces mesures aux hautes pressions et hautes températures afin d'estimer la validité des bases de données.**

4.4.1 Récapitulatif des mesures d'émission sur les spectres de la vapeur d'eau

Suivant les compositions initiales des gaz, la déflagration va former plus ou moins de vapeur d'eau en fin de combustion. Le tableau ci-dessous nous donne le pourcentage d'eau formé en fonction de la température atteinte en fin de combustion.

Température (Kelvin)	2300 K	2400 K	2500 K	2600 K	2700 K	2800 K	2900 K
Pourcentage de vapeur d'eau formée	23,20%	25,30%	27,50%	29,60%	32,70%	35,30%	39%

TAB. III.4 – Pourcentage de vapeur d'eau formée en fonction de la température.

Le tableau ci-dessous présente toutes les mesures réalisées et comparées au modèle des bases de données HITEMP. Lors de ces déflagrations, tous les paramètres thermodynamiques ont été bien identifiés.

Température	2300 K	2400 K	2500 K	2600 K	2700 K	2800 K
Pression en Bar	1,36	5,8	3,2	3,3	5,1	2
Pression en Bar	3	8,8	4,4	3,8	6,8	3
Pression en Bar	5	11,8	5,6	4	9	5,1
Pression en Bar	6,6	X	6,6	6,3	10,8	6,1
Pression en Bar	7	X	8,9	7,15	13,2	X
Pression en Bar	7,7	X	11	8,35	14,7	X
Pression en Bar	8,9	X	14	12,5	16	X
Pression en Bar	9,8	X	16,5	16,6	19,2	X
Pression en Bar	10	X	X	X	X	X
Pression en Bar	10,5	X	X	X	X	X
Pression en Bar	11,8	X	X	X	X	X
Pression en Bar	12	X	X	X	X	X

TAB. III.5 – Température et pression des spectres d'émission de la vapeur d'eau mesurés.

Les cases remplies par le symbole X signifient l'absence de mesure. À partir de ces spectres expérimentaux de la vapeur d'eau mesurés sur notre cellule de déflagration, nous avons décidé d'établir les lois d'évolution en fonction de la pression et de la température. Ces lois d'évolution nous permettront de prendre en compte la divergence aux hautes pressions et températures pour la modélisation des raies nécessaires à notre programme d'inversion pour le domaine spectral compris entre 12084 cm^{-1} et 12327 cm^{-1} . On donnera notamment pour certains spectres intéressants, la valeur des coefficients d'élargissement des raies que l'on comparera aux paramètres des bases de données dans les tableaux ci-dessous.

4.4.2 Lois d'évolution du spectre d'émission de la vapeur d'eau

À partir des spectres expérimentaux obtenus grâce à la cellule de déflagration nous avons calculé différentes lois d'évolutions en fonction de la pression et en fonction et de la température pour le domaine spectral compris entre 12085 et 12326 cm^{-1} ainsi que la gamme de température comprise entre 2200 et 3000 K .

La loi d'évolution de la pression permet d'obtenir le spectre de la vapeur d'eau à une température connue à partir de la valeur de la pression grâce à la relation ci-dessous et des coefficients

A et B qui ont été calculés à partir des spectres mesurés :

$$Luminance = A \times Pression + B \quad (III.30)$$

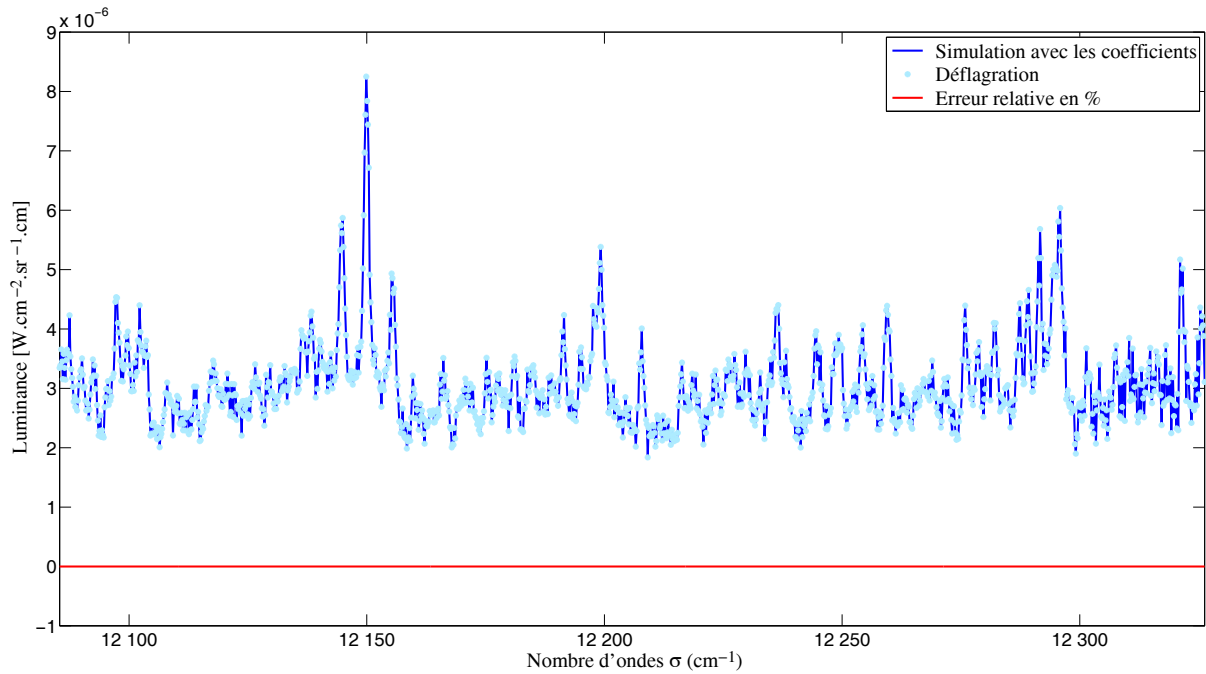


FIG. III.33 – Exemple d'un spectre d'émission de la vapeur d'eau calculé à partir des coefficients A et B pour une pression de 11,3 bar et une température de 2500 K comparé à la mesure.

Nombre d'onde Sigma	A	B
1.2085379e+004	8.8340292e-008	3.1351420e-007
1.2085554e+004	9.3843531e-008	4.0852295e-007
1.2085729e+004	8.9697161e-008	3.9167668e-007
1.2085904e+004	7.8948641e-008	4.8725281e-007
1.2086079e+004	7.2260252e-008	5.4867150e-007
....
....
1.2325532e+004	1.4937950e-007	-1.4209508e-007
1.2325717e+004	1.8037536e-007	-2.1339480e-007
1.2325901e+004	1.2534274e-007	1.8993163e-007
1.2326086e+004	1.3638363e-007	-3.5000633e-008
1.2326271e+004	7.9826960e-008	3.0098517e-007

TAB. III.6 – Exemple de tableau contenant les coefficients A et B pour $T = 2500 K$.

Grâce à la loi d'évolution des spectres de la vapeur d'eau calculés en fonction de la température et de la pression, on peut calculer un spectre quelconque pour les valeurs de pression et de température comprises dans le domaine d'étude par la formule ci-dessous à l'aide de coefficients calculés :

$$Luminance = [(C \times Température + D) \times Pression] + [E \times Température] + F \quad (III.31)$$

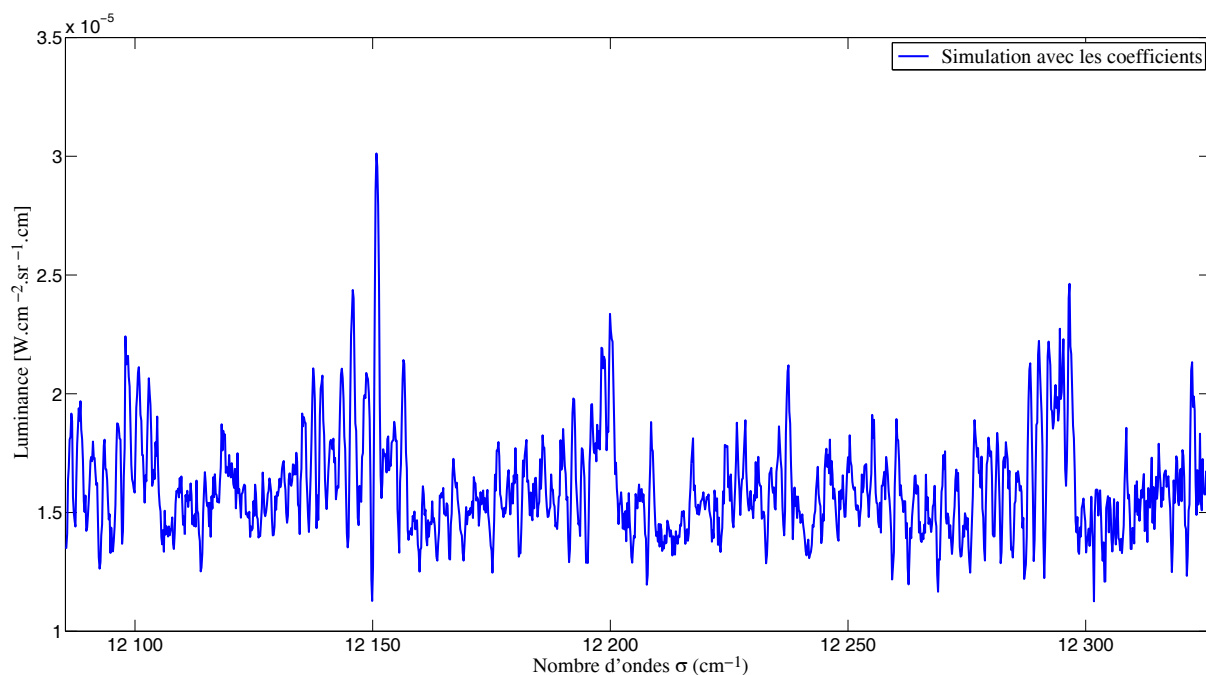


FIG. III.34 – Exemple de spectre d'émission de la vapeur d'eau calculé à partir des coefficients C,D,E et F pour une pression de 4,86 bar et une température de 2942 K.

Notre base de données spectroscopiques effectuée sur la vapeur d'eau, nous permet d'inverser nos spectres d'émission et de rétrodiffusion. Nous avons constaté un assez bon accord des bases de données existantes pour la vapeur d'eau jusqu'à 10 bars, 4500 K. En effet les coefficients d'élargissement sont donnés à pression atmosphérique, la pression n'étant considérée que comme un coefficient multiplicatif. Les résultats obtenus sur la vapeur d'eau, nous permettent de calculer n'importe quel spectre en fonction des paramètres de température et de concentration désirés. Par contre, il n'est pas possible d'établir une cartographie 3D des spectres de la vapeur d'eau car l'intégration spectrale la luminance en fonction des paramètres de température et de concentration n'est pas une fonction bijective. En couplant la mesure en émission avec une mesure en rétrodiffusion, l'intégration spectrale de la luminance deviendra bijective.

5 Programme d'inversion des mesures en émission

Le premier programme d'inversion développé au laboratoire [47] permet l'inversion de spectres issus de mesures en émission ou en transmission dans l'infrarouge. Préalablement à l'implémentation des équations de rétrodiffusion dans le modèle direct, nous nous sommes attachés à valider expérimentalement cette première version.

Le programme d'inversion permet le traitement d'une mesure de luminance spectrale obtenue par exemple par le dispositif présenté dans le chapitre en cours. Ce programme, codé en Matlab, utilise les résultats d'un modèle de transfert radiatif (problème direct) complété par les données spectroscopiques de nos mesures en émission qui permet pour une pression connue de calculer, en fonction des champs de température et de concentration, l'intensité du rayonnement émis à l'extrémité d'une colonne de gaz (Chapitre II paragraphe 1.4.3). La résolution du problème inverse consiste alors à remonter à ces distributions spatiales inconnues à l'aide d'un algorithme de minimisation de l'écart entre la mesure de la luminance spectrale et le modèle (Chapitre III paragraphe 1).

On rappelle que l'équation du transfert radiatif suivant une ligne de visée décrite au chapitre I paragraphe 1.4.3 peut s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{dL_{\sigma}(\sigma, x)}{dx} &= \frac{1}{dx} (-dL_{\sigma}^a(\sigma, x) + dL_{\sigma}^e(\sigma, x)) \\ &= -K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma}(\sigma, x) + K_{\sigma}(\sigma, T, C_i, P_{Tot})L_{\sigma T}^{\circ} \end{aligned} \quad (\text{III.32})$$

Avec la condition limite en $x = 0$, $L_{\sigma}(0) = \varepsilon_p L_{\sigma}^0(T) = L_{\sigma,0}$ où ε_p est l'émissivité de la paroi. La luminance d'une éventuelle paroi peut également être déterminée directement par la mesure dans les zones spectrales où le gaz est transparent. Nous avons présenté dans le chapitre 2 la formulation intégrale de l'équation de transfert radiatif qui permet de calculer la luminance $L_{\sigma}(\sigma, d)$ émergente d'une colonne de gaz comprise entre $x = 0$ et $x = d$ connaissant la pression totale de l'ensemble ainsi que les profils de température et de concentration qui permettent de déterminer les coefficients d'absorption monochromatiques correspondants :

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)L_{\sigma}(\sigma, 0) + \int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x)L_{\sigma T}^{\circ}(T(x))\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)dx \quad (\text{III.33})$$

où $\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)$ est le facteur de transmission monochromatique de x à d :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d) = \exp\left(-\int_x^d K_{\sigma}(\sigma, x')dx'\right) \quad (\text{III.34})$$

Sachant que :

$$\frac{\partial \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)}{\partial x} = K_{\sigma}(\sigma, x)\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d) \quad (\text{III.35})$$

l'équation III.33 peut s'écrire sous la forme :

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)L_{\sigma}(\sigma, 0) + \int_0^d L_{\sigma T}^{\circ}(T(x))\frac{\partial \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)}{\partial x}dx \quad (\text{III.36})$$

Dans le cas d'une épaisseur d homogène et isotherme, même fraction molaire et même température en tout point du volume considéré, l'équation III.36 devient :

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)L_{\sigma}(\sigma, 0) + L_{\sigma T}^{\circ}[1 - \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)] \quad (\text{III.37})$$

C'est cette dernière formulation qui va nous permettre de résoudre numériquement l'équation III.33 en discrétisant la colonne hétérogène et anisotherme en N éléments homogènes et isothermes, indicés k ($k = 1, \dots, N$), de même épaisseur $e = d/N$, comme indiqué sur la figure III.35 :

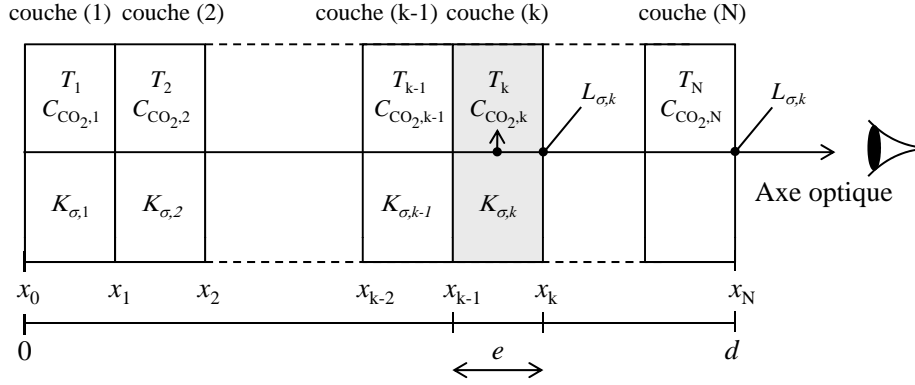


FIG. III.35 – Schéma d'un milieu hétérogène discrétisé en N éléments homogènes et isothermes.

L'indice $k = 0$ correspond à l'origine de la colonne de gaz. Celle-ci peut être une paroi d'émissivité $\varepsilon_P(\sigma)$ et de température T_P . Les profils de température T et de concentration C doivent être également discrétisés. Ils peuvent l'être sous la forme de fonctions constantes par morceaux T^{app} et C^{app} telles que pour $k = 1, \dots, N$:

$$\begin{aligned} T^{app}(x) &= T\left(\frac{x_k - x_{k-1}}{2}\right) = T_k \\ C^{app}(x) &= T\left(\frac{x_k - x_{k-1}}{2}\right) = C_k \quad \text{sur }]x_{k-1}, x_k] \end{aligned} \quad (\text{III.38})$$

Ce sont les valeurs de la température et de la concentration au centre de la couche k localisée entre x_{k-1} et x_k qui sont attribuées à l'ensemble de la couche. A partir de la température T_k et de la concentration C_k en H_2O , il est possible de calculer le coefficient d'absorption monochromatique de la couche k : $K_\sigma(\sigma, T_k, C_{H_2O,k}, P_{tot}) = K_{\sigma,k}$ grâce au modèle présenté chapitre III.

La luminance à l'extrémité de la portion k , $L_{\sigma,k}$, se calcule à partir de son coefficient d'absorption monochromatique $K_{\sigma,k}$ et de la luminance incidente $L_{\sigma,k-1}$ émise par la couche $k - 1$. En effet, d'après la formule III.35 il vient :

$$\begin{aligned} L_{\sigma,k} &= \tau_\sigma(\sigma, x_{k-1} \rightarrow x_k) L_{\sigma,k-1} + L_{\sigma T_k}^\circ [1 - \tau_\sigma(\sigma, x_{k-1} \rightarrow x_k)] \\ &= \exp(-eK_{\sigma,k}) L_{\sigma,k-1} + [1 - \exp(-eK_{\sigma,k})] L_{\sigma T_k}^\circ \end{aligned} \quad (\text{III.39})$$

Le calcul de la luminance spectrale en sortie de la colonne de gaz, $L_\sigma(\sigma, d) = L_{\sigma,N}$, s'effectue ainsi par N itérations successives ($k = 1, \dots, N$) avec l'initialisation $L_{\sigma,0} = \varepsilon_P(\sigma) L_{\sigma T_P}^\circ$ si une paroi est présente en $x = 0$.

Dans le cas où le milieu entre le gaz chaud et le système de mesure est de l'air à pression et température ambiantes, l'émission de cette lame d'air pourra être négligée et son influence réduite à celle d'un milieu absorbant. Pour prendre en compte cette absorption, la luminance calculée à l'extrémité de la colonne étudiée $L_{\sigma,N}$, est multipliée par le facteur de transmission caractérisant l'épaisseur d'air intermédiaire : $\tau_{\sigma,air}$. Enfin, ce produit est convolué par la fonction d'appareillage $f_A(\sigma)$ afin de modéliser la mesure L_σ^{mes} :

$$L_{\sigma \mathcal{A}}^{calc} = (L_{\sigma,N} \cdot \tau_{\sigma,air}) * f_A(\sigma) \quad (\text{III.40})$$

A noter que le calcul de la transmission de la colonne de gaz s'effectue simplement comme le produit des facteurs de transmission des N couches avec $\tau_{\sigma}(\sigma, x_{k-1} \rightarrow x_k) = \tau_{\sigma,k} = \exp(-eK_{\sigma,k})$.

5.1 Calculs approchés des coefficients d'absorption monochromatiques

Afin de résoudre le problème numériquement [48], la ligne d'émission est discrétisée en $N + 1$ points $(X_i)_{0 \leq i \leq N}$ uniformément répartis avec un pas $h = \frac{d}{N}$. L'inconnue est la valeur de $L_{\sigma}(d)$ pour une gamme de nombre d'onde donnée et deux distributions : l'une en température et l'autre en concentration sur l'intervalle $[0, d]$. Les profils de T et C sont discrétisés par des fonctions constantes par morceaux. Pour une couche $[x_i, x_{i+1}]$ le gaz est homogène en température et en concentration et en discrétisant l'intégration de l'équation III.32 il vient :

$$L_{\sigma}(x) = L_{\sigma}^0(T) + (L_{\sigma,0} - L_{\sigma}^0(T))\tau_{\sigma}(0, x) \quad (\text{III.41})$$

– Avec $\tau_{\sigma}(0, x) = \exp[-xK_{\sigma}(T, C)]$

Il en résulte le schéma numérique suivant pour un nombre d'onde σ donné :

- Initialisation ($i=0$) : $L_{\sigma}(0) = L_{\sigma,0} = \varepsilon_p L_{\sigma}^0(T)$
- Pour $i=1, \dots, N$: $L_{\sigma}(x_i) = L_{\sigma i} = L_{\sigma i}^0 + [\exp(-hK_{\sigma i})] (L_{\sigma, i-1} - L_{\sigma i}^0)$ avec $K_i = K_i(T_i, C_i)$
- La luminance au niveau de l'appareil de mesure est donnée par $L_{\sigma}(d) = L_{\sigma}^N$

Afin de résoudre cette équation, il est nécessaire de connaître la valeur des coefficients d'absorption monochromatiques en fonction de la température et de la concentration. Actuellement, ces valeurs sont interpolées d'une table contenant $K_{\sigma}(T, C)$ à plusieurs températures pour l'espace étudiée. Pour une température T et une concentration C données, la valeur du coefficient d'absorption monochromatique est donnée par :

$$K_{\sigma}(T, C) = C \times K_{\sigma}^N(T) = C \times (a_0 + a_1 T + a_2 T^2 + a_3 T^3) \quad (\text{III.42})$$

Avec :

- $K_{\sigma N}$ est le coefficient normé par rapport à la concentration des molécules de gaz en $[cm^{-1}/(molcules.cm^{-3})]$
- a_0, a_1, a_2, a_3 sont les coefficients de l'interpolation polynomiale d'ordre 3.

5.2 Résolution du problème inverse

Nous venons de présenter la résolution du problème direct permettant de déterminer la luminance spectrale issue d'un volume de gaz connaissant :

- les conditions aux limites : présence d'une paroi à l'origine de la colonne de gaz étudiée et/ou d'une épaisseur d'air à température et pression ambiantes entre son extrémité et l'appareillage de mesure qui lui-même doit être pris en compte dans la modélisation via la fonction d'appareil,
- la pression totale,
- les profils discrétisés de température $\mathbf{T} = T^{app}(x)$ et de concentration $\mathbf{C} = C^{app}(x)$ le long de la ligne de visée.

Retrouver les profils \mathbf{T} et \mathbf{C} par la mesure de la luminance spectrale nous amène donc à résoudre le problème inverse pour les mêmes conditions aux limites et pour une pression totale connue.

Le problème inverse consiste, pour un nombre d'onde σ donné, à résoudre l'équation :

$$L_{\sigma \mathcal{A}}^{calc}(\mathbf{T}, \mathbf{C}) = L_{\sigma}^{mes} \quad (\text{III.43})$$

où $L_{\sigma\mathcal{A}}^{calc}(\mathbf{T}, \mathbf{C})$ est la luminance calculée par le modèle direct et L_{σ}^{mes} la luminance provenant de la mesure. La résolution de III.42 est difficile puisque le problème est non linéaire par rapport aux profils de température et de concentration. En outre, en raison des imperfections du modèle et des incertitudes sur les mesures, cette équation peut ne pas avoir de solution et il faut introduire une formulation plus faible : la méthode des moindres carrés. En notant $\mathbf{m} = (\mathbf{T}, \mathbf{C}) \in \mathbb{R}^{2N}$ le vecteur des paramètres des profils à retrouver, la résolution du problème inverse au sens des moindres carrés, consiste en la minimisation d'une fonctionnelle coût $J(\mathbf{m})$ correspondante à l'écart quadratique entre les valeurs calculées et les données observées :

$$J(\mathbf{m}) = \frac{1}{2} \| L_{\sigma\mathcal{A}}^{calc}(\mathbf{m}) - L_{\sigma}^{mes} \|^2 \quad (\text{III.44})$$

Le problème inverse se ramène alors à un problème d'optimisation qui se résout suivant un processus itératif schématisé sur l'organigramme de la figure III.35.

La première étape consiste en une initialisation : pour une pression totale connue, le modèle direct calcule une luminance spectrale ou une transmission pour des profils initiaux \mathbf{T}_0 et \mathbf{C}_0 . Le produit de convolution entre le spectre calculé et la fonction d'appareillage permet de faire la comparaison avec le spectre mesuré nombre d'onde à nombre d'onde et d'évaluer un critère de convergence. $J(\mathbf{m})$ est minimisé grâce à un algorithme qui optimise la valeur des paramètres \mathbf{T}_i et \mathbf{C}_i où i correspond à l'itération i . Lorsque le critère de convergence est satisfait, l'optimisation est terminée et les paramètres correspondants, \mathbf{T}_{opt} et \mathbf{C}_{opt} , sont considérés comme étant les solutions de l'équation III.42.

La minimisation de $J(\mathbf{m})$ peut être réalisée grâce à des algorithmes d'optimisation que l'on peut distinguer en 2 classes : les algorithmes globaux et les algorithmes locaux. Les premiers explorent tout l'espace des paramètres afin de converger vers un éventuel minimum global dans des conditions générales. Ils ne nécessitent que la connaissance de $J(\mathbf{m})$ mais sont très coûteux en calculs. Les algorithmes locaux exploitent en plus l'information sur le gradient de la fonctionnelle coût pour converger vers un minimum local avec un nombre d'itérations plus faible, ce qui permet de les utiliser pour des problèmes avec un grand nombre de paramètres. Il est en outre possible de les faire converger vers le minimum global grâce à une régularisation adéquate [?]. Cette régularisation est effectuée dans notre cas par une paramétrisation qui sera abordée dans la section ??.

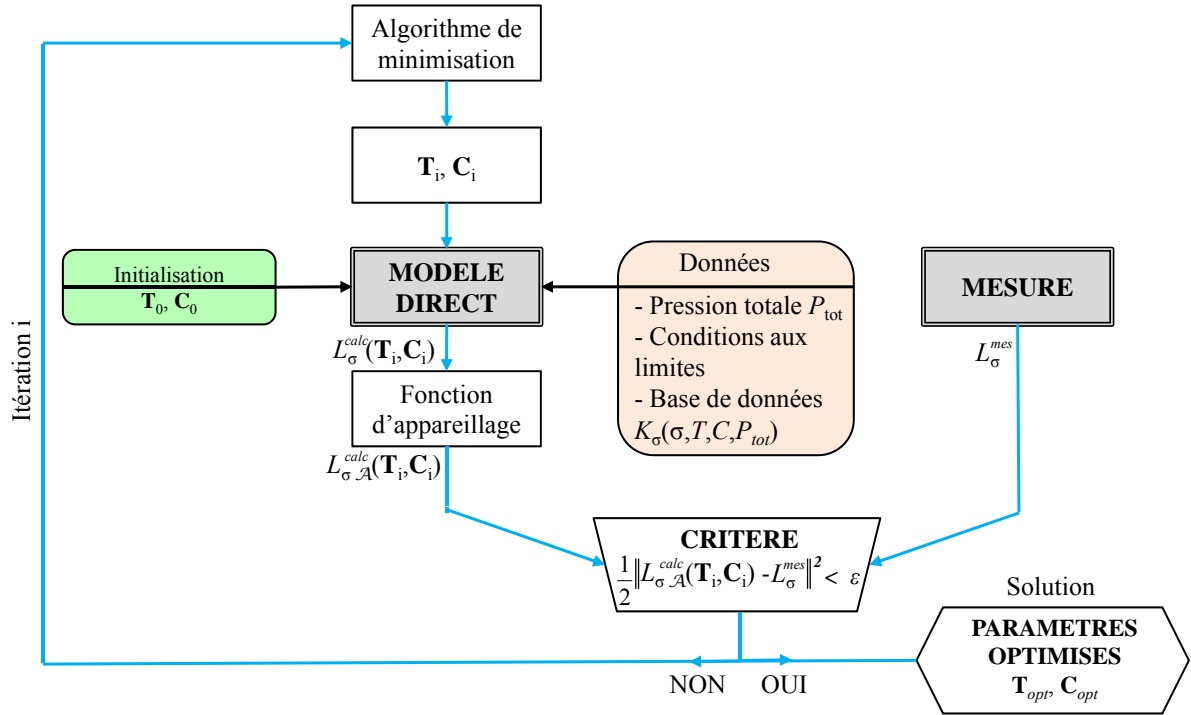


FIG. III.36 – Schéma de principe de l'inversion des mesures.

Lorsqu'un algorithme local est utilisé, ce qui est le cas dans le présent travail, il est nécessaire de calculer le gradient de la fonction coût précisément et rapidement. La méthode par différences finies requiert de nombreuses exécutions du programme calculant le problème direct (proportionnelles au nombre de paramètres $2N$). En effet, il faut calculer la limite suivante :

$$\frac{\partial J}{\partial m_\gamma}(\mathbf{m}) = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{J(\mathbf{m} + h\mathbf{e}_\gamma) - J(\mathbf{m})}{h} \quad (\text{III.45})$$

où \mathbf{e}_γ est un vecteur de la base canonique de \mathbb{R}^{2N} . Ce calcul étant coûteux et imprécis nous utilisons la méthode de l'état adjoint qui permet un calcul exact de la dérivée.

5.2.1 Paramétrisation

En supposant que la distribution dans l'espace de la température et de la concentration suivent une loi gaussienne, il vient :

$$T_k = T_\infty + \Delta T \times \exp \left[- \left(\frac{x_k - x_T}{\alpha_T} \right)^2 \right] \quad (\text{III.46})$$

$$C_k = C_\infty + \Delta C \times \exp \left[- \left(\frac{x_k - x_C}{\alpha_C} \right)^2 \right] \quad (\text{III.47})$$

On note P_G la fonction qui associe au vecteur paramètre $\mathbf{p} = (T_\infty, \Delta T, x_T, \alpha_T, C_\infty, \Delta C, x_C, \alpha_C)$ un profil de température et un profil de concentration de telle sorte que :

$$L_\sigma^{\text{calc}} \circ P_G(\mathbf{p}) = L_\sigma^{\text{calc}}(P_G(\mathbf{p})) = L_N \quad (\text{III.48})$$

où L_N est la luminance en bout de colonne. Le nombre de paramètres à retrouver est alors indépendant de la discrétisation spatiale choisie et est dans ce cas réduit à 2×4 : position du centre de la gaussienne (x_T, x_C), largeur de la gaussienne (α_T, α_C), valeur à l'infini (T_∞, C_∞) et amplitude entre la valeur maximum et à l'infini ($\Delta T, \Delta C$).

Après paramétrisation, la dérivée de la luminance calculée à un nombre d'onde donné σ par rapport à un paramètre p_γ de \mathbf{p} est [49] :

$$\frac{\partial(L_\sigma^{calc} \circ P_G)}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) = DL_\sigma^{calc}(\mathbf{T}, \mathbf{C}) \frac{\partial P_G}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) \quad (\text{III.49})$$

où les dérivées par rapport aux paramètres correspondants à la température sont :

$$\begin{aligned} \frac{\partial P_G}{\partial T_\infty}(\mathbf{p}) &= 1 \\ \frac{\partial P_G}{\partial \Delta T}(\mathbf{p}) &= \exp \left[- \left(\frac{x_k - x_T}{\alpha_T} \right)^2 \right] \\ \frac{\partial P_G}{\partial x_T}(\mathbf{p}) &= 2 \frac{(x_k - x_T)}{\alpha_T^2} \Delta T \exp \left[- \left(\frac{x_k - x_T}{\alpha_T} \right)^2 \right] \\ \frac{\partial P_G}{\partial \alpha_T}(\mathbf{p}) &= 2 \frac{(x_k - x_T)^2}{\alpha_T^3} \Delta T \exp \left[- \left(\frac{x_k - x_T}{\alpha_T} \right)^2 \right] \end{aligned}$$

Les dérivées par rapport aux paramètres liés à la concentration sont semblables.

La dérivée de la luminance calculée pour l'ensemble de nombre d'onde Σ par rapport au paramètre p_γ est similaire à l'équation III.49 [49] :

$$\frac{\partial(\mathbf{L}_\Sigma^{calc} \circ P_G)}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) = D\mathbf{L}_\Sigma^{calc}(\mathbf{T}, \mathbf{C}) \frac{\partial P_G}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) \quad (\text{III.50})$$

ce qui permet de calculer la matrice de sensibilité pour la paramétrisation gaussienne et d'effectuer l'analyse de sensibilité correspondante. Enfin, pour une paramétrisation quelconque $P(\mathbf{p})$ la fonction coût devient [49] :

$$\begin{aligned} J(\mathbf{p}) &= \frac{1}{2} \|\mathbf{L}_\Sigma^{calc} \circ P(\mathbf{p}) - \mathbf{L}_\Sigma^{mes}\|^2 \\ &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^I (L_{\sigma_i}^{calc} \circ P(\mathbf{p}) - L_{\sigma_i}^{mes})^2 \end{aligned} \quad (\text{III.51})$$

et pour l'algorithme d'optimisation, la dérivée partielle de $J(\mathbf{p})$ par rapport à un paramètre p_γ est [49] :

$$\frac{\partial J}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) = \sum_{i=1}^I \frac{\partial(L_{\sigma_i}^{calc} \circ P)}{\partial p_\gamma}(\mathbf{p}) (L_{\sigma_i}^{calc} \circ P(\mathbf{p}) - L_{\sigma_i}^{mes}) \quad (\text{III.52})$$

5.3 Généralités sur les problèmes inverses

La résolution du problème inverse consiste dans notre cas à remonter à la distribution spatiale des grandeurs inconnues T et C d'un volume de gaz à partir de l'observation de sa luminance spectrale L_σ à une de ses extrémités sur un ensemble de nombres d'onde σ pour une épaisseur et une pression totale données.

L'équation III.32 est une équation d'état qui relie le paramètre $x = (T, C)$ à la variable d'état $y = L_\sigma$. Cette équation peut se noter sous la forme suivante :

$$e(x, y) = 0, \quad (\text{III.53})$$

– Avec $x \in E$ l'espace des paramètres et $y \in Y$ l'espace d'état.

Pour extraire de l'état, la distribution spectrale des luminances L_σ , la partie qui correspond aux mesures $L_\sigma(d) = v$, il faut ajouter une équation supplémentaire : l'équation d'observation.

$$v = M(y) \quad (\text{III.54})$$

– Avec $y \in Y$ et M est un opérateur de mesure.

Dans la suite, l'application qui relie le paramètre à l'observation est notée $\varphi(x) = v$. Ainsi, à partir d'une mesure z ($z \in F$ l'espace des mesures), le problème inverse consiste à résoudre l'équation $\varphi(x) = z$. Cependant, en raison des incertitudes sur les mesures et des imperfections du modèle, il n'est pas possible de retrouver la solution vraie et une formulation plus faible est alors introduite : la méthode des moindres carrés. Elle consiste à minimiser la fonctionnelle coût $J(x)$ qui calcule l'écart quadratique entre les données observées (z) et les données calculées $\varphi(x)$:

$$J(x) = \frac{1}{2} \|\varphi(x) - z\|_F^2 \quad (\text{III.55})$$

Lorsqu'il n'y a pas assez de données pour contraindre la solution, le problème est sous-déterminé. Il est alors nécessaire d'effectuer une régularisation. Cela consiste en l'ajout d'informations supplémentaires comme une paramétrisation des profils recherchés, une réduction de l'espace des paramètres ou encore par l'addition d'un terme dit de régularisation dans l'expression de $J(x)$. Dans notre cas, la régularisation s'effectue par une paramétrisation des profils (le programme actuel permet des profils gaussiens 1D et 2D).

La minimisation de $J(x)$ peut être réalisée grâce à des algorithmes d'optimisation que l'on peut distinguer en 2 classes : les algorithmes globaux et les algorithmes locaux. Les premiers explorent tout l'espace des paramètres afin de converger vers un éventuel minimum global dans des conditions générales. Ils ne nécessitent que la connaissance de $J(x)$ mais sont très coûteux en calculs. Les algorithmes locaux, quant à eux, exploitent en plus l'information sur le gradient de $J(x)$ pour converger vers un minimum local avec un nombre d'itérations plus faible ce qui permet de les utiliser pour des problèmes avec un grand nombre de paramètres. Il est en outre possible de les faire converger vers le minimum global grâce à une régularisation adéquate. Assurer cette convergence nécessite le calcul du gradient de la fonction coût précisément et rapidement.

$$\frac{\partial J}{\partial x_j}(x) \approx \frac{J(x + h_j) - J(x)}{h_j} \quad (\text{III.56})$$

La méthode par différences finies requiert de nombreuses exécutions (proportionnelles au nombre de paramètres) du programme calculant le problème direct, ce qui est coûteux en temps lorsque

le nombre de paramètres est élevé. Par ailleurs, il est difficile d'évaluer la précision du résultat et le choix du pas h n'est pas aisé puisque trop élevé l'approximation par différences finies n'est pas correcte ; le bruit numérique devient important [50]. D'autres approches peuvent être utilisées pour calculer $\nabla J(x)$ comme la méthode de l'état adjoint présentée brièvement dans la suite du paragraphe.

Nous avons utilisé un algorithme local qui utilise la méthode de l'état adjoint [51] [52] afin de calculer le gradient d'une fonction $G(x, M(y)) = G(x, v)$ en supposant que x et y varient indépendamment. Pour ce faire, le Lagrangien est introduit :

$$\mathcal{L}(x, y, \lambda) = G(x, v) + \langle e(x, y), \lambda \rangle \quad (\text{III.57})$$

– Où λ est la variable adjointe de y .

Le théorème suivant est ensuite utilisé : soient l'équation III.35 une équation d'état et l'équation III.36 un opérateur d'observation. Soient $G(x, v)$ et $\varphi(x)$ suffisamment régulières. Soit $\mathcal{L}(x, y, \lambda)$ un Lagrangien de l'équation III.39 associé avec à l'équation III.35. Alors $G(x, \varphi(x))$ est différentiable et son gradient est donné par l'équation :

$$\langle \nabla G, \delta x \rangle_E = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial x}(x, y_x, \lambda_x) \delta x \quad \forall \delta x \in E \quad (\text{III.58})$$

où y_x est la solution du problème direct et $\lambda_x \in F$ est la solution de l'équation adjointe :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial y}(x, y_x, \lambda) \delta y = 0 \quad \forall \delta y \quad (\text{III.59})$$

Ainsi si E est muni du produit scalaire Euclidien usuel, la i^{me} composante de ∇G est le coefficient de δx_i dans $\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial x}(x, y, \lambda) \delta x$. Si l'on choisit $G(x, \varphi(x)) = J(x) = \frac{1}{2} \|\varphi(x) - z\|^2$ on obtient $\nabla G = \nabla J$. Le coût de cette méthode est indépendant du nombre de paramètre et ne nécessite la résolution que de 2 équations : l'équation d'état III.35 et l'équation adjointe III.41. C'est cette méthode qu'utilise le programme d'inversion dont nous disposons.

Le premier point que réalise le programme d'inversion consiste à initialiser le programme comme le montre la figure III.36. Pour une pression totale et une température connue, le modèle calcule une luminance spectrale pour les profils T_0 et C_0 . Il effectue un produit de convolution entre le spectre calculé et la fonction d'appareillage pour le comparer au spectre mesuré nombre d'onde à nombre d'onde et évalue ainsi le critère de convergence. Ensuite $J(m)$ est minimisé comme expliqué précédemment pour chaque itérations donnant un profil T_i et C_i . Lorsque le critère de convergence est satisfaisant, l'optimisation est terminée et les paramètres retrouvés T_{opt} et C_{opt} sont les solutions de l'équation d'entrée.

5.4 Exemple d'inversion d'une mesure en émission sur une flamme H_2/O_2

Les paramètres d'entrées :

- Température et émissivité de la paroi située face au système de mesure.
- Table de données contenant la valeur des coefficients d'absorption monochromatiques pour plusieurs températures de l'espèce étudiée.
- Spectre d'émission de l'écoulement réactif dans l'infrarouge. Dans cet exemple, on mesure une flamme H_2/O_2 pour une épaisseur de 2,5 cm en sortie de brûleur à une hauteur de 2 cm de celui-ci à pression atmosphérique. Les profils en température et en concentration le long de l'axe x d'observation sont des gaussiennes centrées en x_u de la forme :

$$U(x) = U_{inf} + \Delta U \exp\left(-\frac{x - x_u}{\alpha_u^2}\right) \quad (\text{III.60})$$

- Où U correspond à la température T ou à la concentration C et :
 - U_{inf} est la valeur à l'infini
 - δU est l'écart entre la valeur à l'infini et le maximum
 - x_u est l'abscisse du maximum
 - α_u est la largeur de bande horizontale
- Paramètres d'initialisation (4 x 2 paramètres dans cet exemple). Permet de démarrer l'algorithme d'optimisation pour la minimisation entre l'écart des profils calculés et les profils cibles de la mesure en émission.

La mesure de la flamme H_2/O_2 en entrée avec une résolution de $0,33 \text{ cm}^{-1}$ est présentée sur la figure III.36. Cette mesure est réalisée avec le dispositif utilisé pour réaliser la base de données des paramètres spectroscopiques de l'eau :

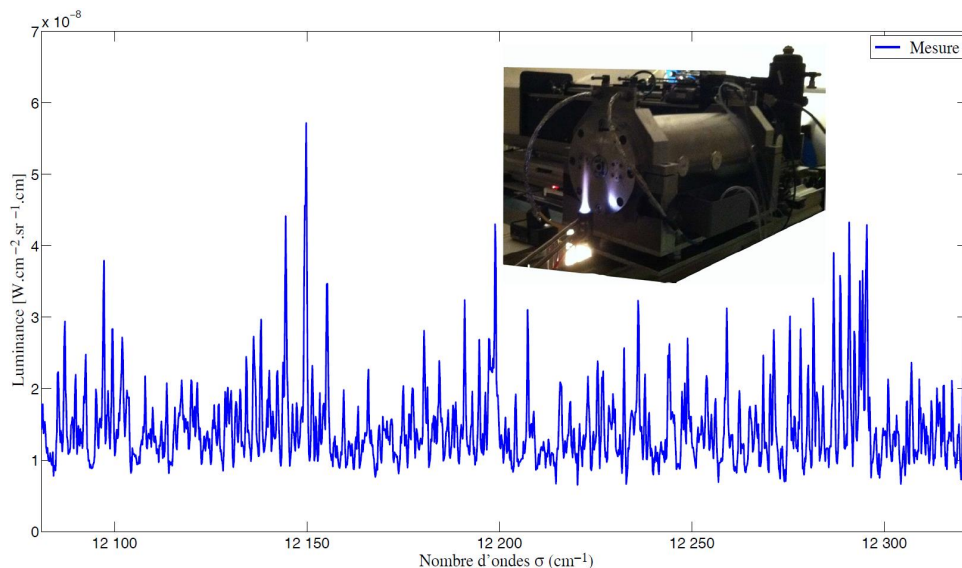


FIG. III.37 – Photo et mesure en émission de la flamme H_2/O_2 .

La mesure en luminance de la flamme H_2/O_2 est une donnée d'entrée du programme d'inversion, au même titre que l'initialisation de nos profils de température et de concentration qui sont paramétrés par des gaussiennes. Après inversion, on retrouve les profils de température et de concentration suivant :

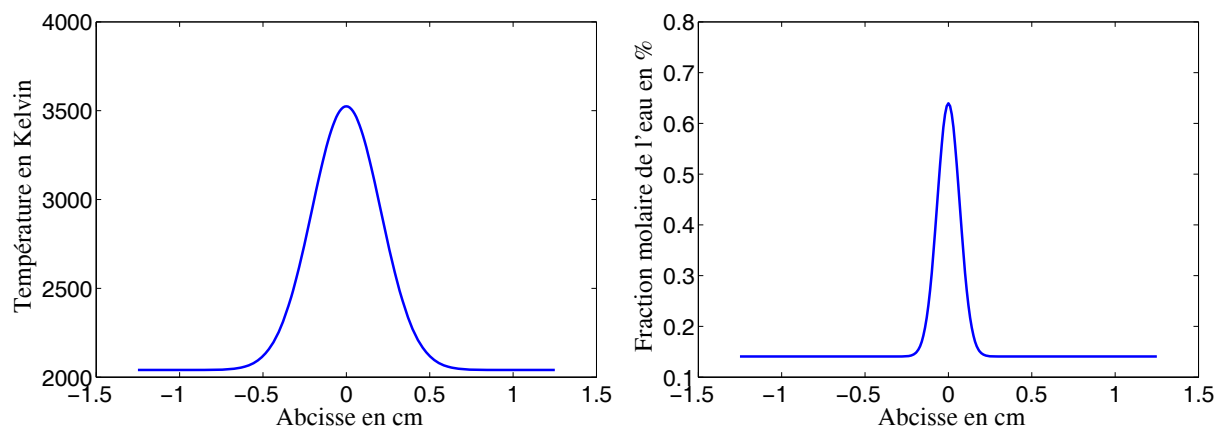


FIG. III.38 – Profils de température et de concentration retrouvés par l'inversion.

La température maximale identifiée est de l'ordre de 3500 K ce qui correspond bien au calcul de température adiabatique d'une flamme H_2/O_2 que l'on peut retrouver dans la littérature ou avec des logiciels de thermochimie libre comme "GASEQ". Sur les bords on retrouve une température à l'infini qui est de 2000 K ce qui peut s'expliquer par le fait que notre épaisseur de flamme n'est pas rigoureusement de 2,5 cm mais moindre.

Au niveau de la concentration, on retrouve une fraction molaire d'eau formée qui est d'environ 60% ce qui n'est pas déraisonnable. Nous sommes dans des conditions stochioemétrique, c'est à dire $H_2 + \frac{1}{2}O_2 = H_2O$, on devrait retrouver une formation d'eau d'environ 66 % mais a cette température de nombreuses dissociations s'effectuent sur les molécules et la formation d'eau n'est en réalité que d'environ 45 %.

On va également comparer la luminance mesurée avec la luminance retrouvée par inversion sur la figure III.40 :

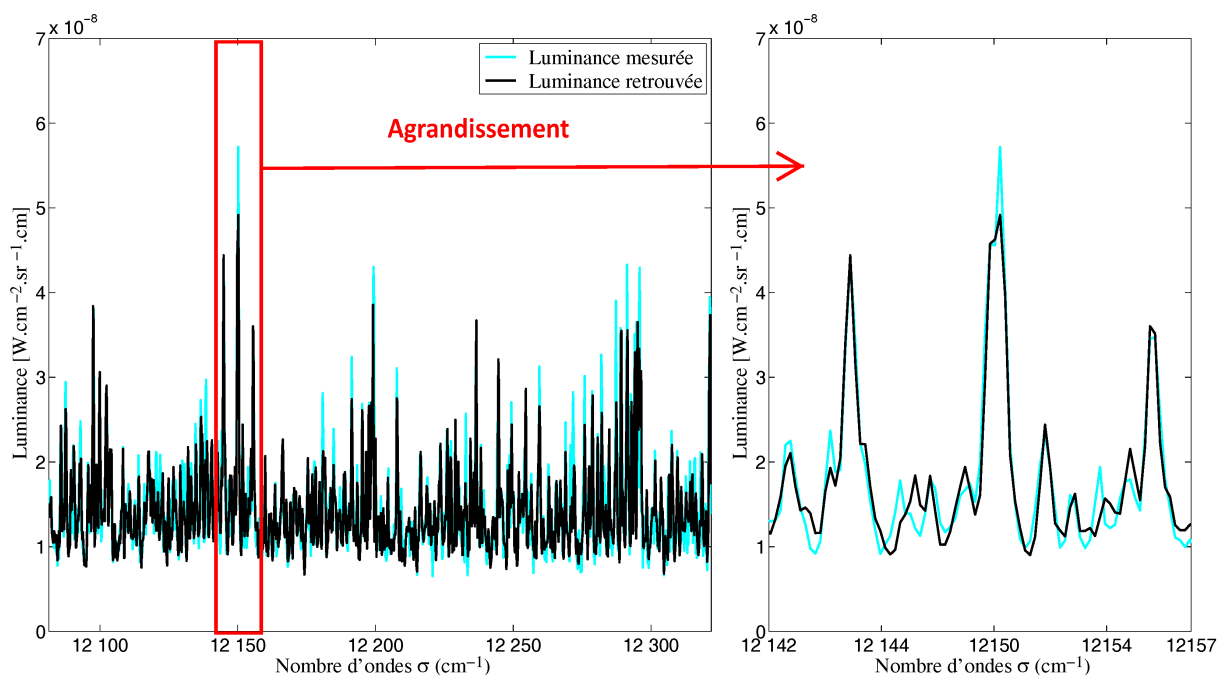


FIG. III.39 – Luminance mesurée comparée à la luminance retrouvée.

La luminance mesurée et la luminance retrouvée après inversion correspondent au sens de la norme J à 80 %. Pour une même luminance peut correspondre plusieurs profils de températures et de concentration, la mesure en émission est très sensible à la température mais beaucoup moins à la concentration ce qui explique aussi l'erreur sur le profil de concentration retrouvée. Nous allons donc apporter des informations supplémentaires en couplant notre mesure en émission à une mesure LIDAR, plus sensible à la concentration afin de déterminer le profil de température et de concentration avec une précision accrue [34].

6 Conclusion

Le code numérique qui calcule les coefficients des raies d'émissions monochromatiques de la vapeur d'eau, utilise pour les différents paramètres spectroscopiques caractérisant les raies de l'eau, des données pour la plupart issues de la base de données spectroscopique HITEMP-10.

La cellule à déflagration a été utilisée pour vérifier les résultats issus de la base de données spectroscopique, nous a permis de mesurer le rayonnement spectral de mélange $H_2/O_2/N_2$ en fin de combustion (car homogène en température et pression) dans la gamme de température 2200 K à 3000 K pour une pression allant de 1 à 20 bars. L'absorption le long de notre trajet optique est prise en compte dans notre étalonnage pour ne pas altérer les mesures. Les résultats, dont la très bonne répétabilité a été vérifiée, nous ont permis de montrer la bonne concordance aux hautes températures entre les mesures et le modèle. Par contre, on observe la divergence des paramètres spectroscopique à hautes pressions (au delà de 10 bars).

Les résultats obtenus nous ont donc permis de construire notre propre base de données, nécessaire à la modélisation de l'équation du transfert radiatif pour la vapeur dans le programme d'inversion. L'inversion de l'équation du transfert radiatif pour la vapeur d'eau complétée par nos données a été vérifiée sur une flamme H_2/O_2 qui retrouve une température de 3500 K avec un écart de 1 % par rapport à la littérature ou au calcul de température de flamme et de l'ordre de 20 % pour la concentration.

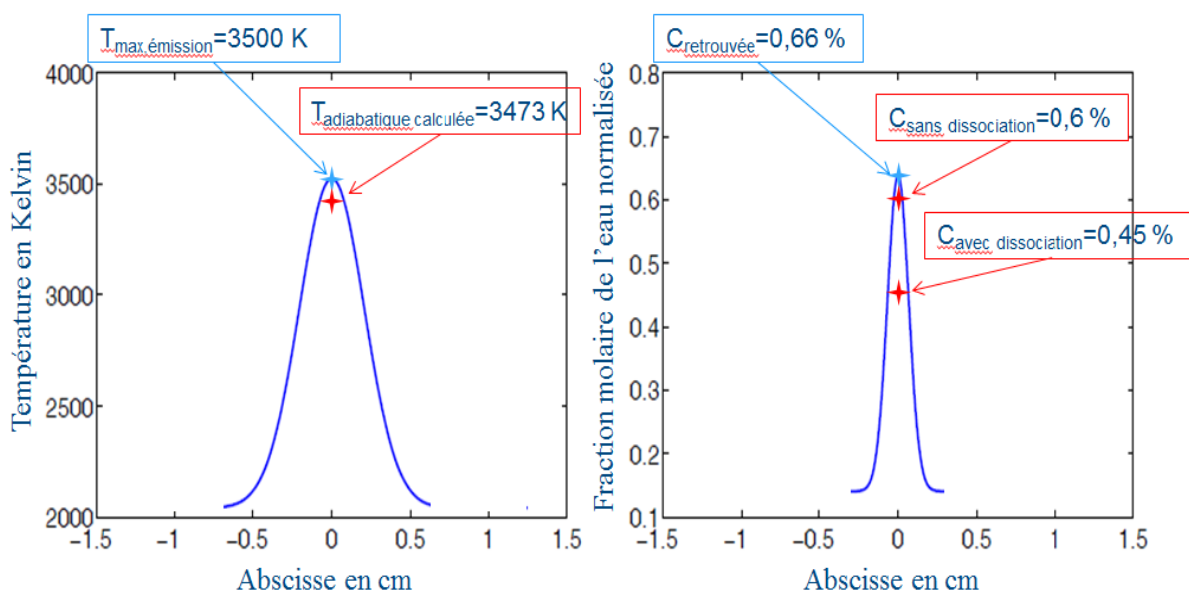


FIG. III.40 – Profils de température et de concentration retrouvés par inversion comparés aux valeurs théoriques.

Chapitre IV

Validation expérimentale du système LIDAR et du couplage émission/rétrodiffusion

La réalisation d'un système Lidar à courte distance nécessite de définir avec précision la puissance laser excitatrice ainsi que le matériel de détection adéquat dans la gamme spectrale désirée pour visualiser des signaux rétrodiffusés.

Le chapitre IV présente dans un premier temps une estimation du nombre de photons rétrodiffusés pour une excitation laser P_0 à une distance de visualisation x . Les résultats obtenus sont ensuite multipliés par les courbes de réponses des détecteurs envisagés. Nous présenterons une série de mesures en rétrodiffusion seule ainsi que l'inversion des données pour valider le banc de signaux rétrodiffusés. Enfin nous validerons notre méthode de mesure innovante couplant une mesure en émission et une mesure en rétrodiffusion pour déterminer les profils de température et de concentration d'un brûleur rampe (cas de laboratoire) et d'une turbine Jetcat (cas réel).

1 Banc de rétrodiffusion

Dans le but d'améliorer l'identification des profils de température et de concentration, nous allons coupler les mesures en émission à des mesures Lidar à courte distance. Les mesures en émission sont très sensibles à la température mais beaucoup moins à la concentration alors que les mesures Lidar y sont plus sensible et nous fournissent une information spatiale sur le signal mesuré. Les résultats de l'identification conjointe de la température et de la concentration seront donc améliorés en couplant les deux mesures.

La mesure Lidar est notamment utilisée pour étudier les composés des différentes couches de l'atmosphère sur de grandes distances (plusieurs kilomètres) [53] [54] [55] [17] utilisant pour se faire des lasers très puissants. Dans notre étude, nous allons adapter cette méthode à de très courtes distances (quelques mètres) avec une résolution spatiale inférieure au centimètre. Nous devons en premier lieu nous intéresser au nombre de photons qui seront rétrodiffusés sur une fine couche de gaz d'épaisseur dx par une excitation laser de puissance P_0 .

Ces calculs nous permettront de définir les besoins préalables au niveau de la puissance P_0 du laser mais aussi les besoins de détectivité pour mesurer les signaux rétrodiffusés.

1.1 Calcul du nombre de photons rétrodiffusés

Afin de mettre au point le banc de mesure des signaux de rétrodiffusion par Lidar multispectral, il est en nécessaire de définir les gammes spectrales d'intérêts qui vont orienter nos choix de matériel, notamment la photocathode de la caméra de visualisation. Pour ce faire, un programme modélisant le rayonnement rétrodiffusé a été développé en fonction du type de Lidar utilisé. Cette modélisation prend en compte tous les facteurs contenus dans l'équation Lidar que l'on rappelle ici [56] [57] :

$$S_L(x) = A * S_0 * \Omega * \tau^2(\lambda, x = a \rightarrow b) * \int_x^{x+e} \beta(\lambda, x') dx' \quad (\text{IV.1})$$

Avec :

- $S_L(x)$ l'intensité du signal Lidar rétrodiffusé et S_0 l'intensité du signal incident,
- A la fonction d'appareillage du système,
- Ω l'angle solide de visualisation en stéradian [sr],
- e la résolution spatiale le long de la ligne de visée x ,
- $\beta(x) = \sum_i [\beta_i(\lambda, x)]$ le coefficient de diffusion du mélange gazeux contenant l'espèce i ,
- $\beta_i(\lambda, x) = N(x)\sigma_i(\lambda)$ le coefficient de diffusion de l'espèce i ou N est la densité moléculaire en x et σ la section efficace de diffusion Rayleigh qui s'écrit :

$$\sigma_i(\lambda) = \frac{8\pi^3(n_i - 1)^2}{\lambda^4 N_L^2} \frac{3}{3 - 4\alpha_i} \quad (\text{IV.2})$$

Avec λ la longueur d'onde en mètres, n_i l'indice de réfraction du milieu considéré, N_L le nombre de Loschmidt (densité moléculaire du milieu dans les conditions normales de température 300 K et sous 1 atmosphère de pression) et α_i le rapport de dépolarisation prenant en compte l'anisotropie des particules.

1.1.1 Estimation du nombre de photons rétrodiffusés dans le cas d'un Lidar élastique

La diffusion Rayleigh de la lumière est une diffusion élastique [58] : la longueur d'onde du rayonnement incident est égale à celle du rayonnement diffusé. Son temps de relaxation

est extrêmement faible (inférieur à la picoseconde). La configuration géométrique retenue est présentée sur la figure IV.1.

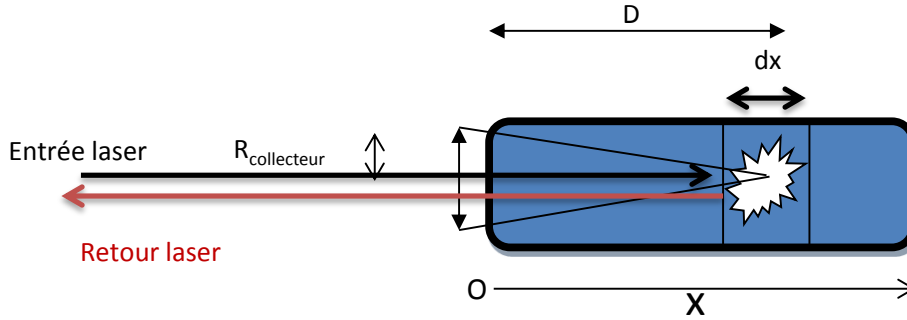


FIG. IV.1 – Configuration du système étudié

Une colonne de gaz est illuminée par un laser dont le faisceau est assimilé à un cylindre de section constante de rayon R_{laser} . On s'intéresse à une tranche de gaz d'épaisseur dx repérée par son abscisse $x = D$. L'élément de volume rétrodiffusant est alors :

$$dV = \pi R_{laser}^2 dx \quad (IV.3)$$

Le nombre de molécules d'eau ¹ potentiellement concernées dans le processus de rétrodiffusion est directement déduit des conditions thermodynamiques du gaz et de la fraction volumique de vapeur d'eau :

$$dN_{H_2O} = N_a dV \eta_{H_2O} \frac{P}{P_0} \frac{T_0}{T} \quad (IV.4)$$

Avec :

- P la pression totale du gaz
- P_0 Pression totale de référence (pression atmosphérique)
- $N_a = 6,02214129(27) \cdot 10^{23} [mol^{-1}]$. Nombre d'Avogadro
- T la température du gaz
- T_0 la température de référence (température ambiante)
- η_{H_2O} la fraction volumique de l'espèce étudiée (ici de vapeur d'eau)

La probabilité qu'il y ait une interaction entre les molécules d'eau et le rayonnement laser incident est donnée par la section efficace de diffusion qui est décrite par la formule [18] :

$$\sigma(\lambda) = \frac{8\pi^3 (n_i - 1)^2}{\lambda^4 N_L^2} \frac{3}{3 - 4\alpha_i} [m^2] \quad (IV.5)$$

Avec λ la longueur d'onde en m, n_i l'indice de réfraction du milieu considéré, N_L le nombre de Loschmidt (densité moléculaire du milieu dans les conditions normales de température et de pression) et α_i le rapport de dépolarisation prenant en compte l'anisotropie des particules.

Remarque : à noter que le facteur α_i est négligeable dans le visible et a fortiori dans l'infrarouge. De plus on calcule l'indice de réfraction du milieu par la formule :

$$(n_i - 1) = 10^{-8} \left(\frac{5791817}{238.0185 - (\frac{1}{\lambda})^2} + \frac{1677909}{53.362 - (\frac{1}{\lambda})^2} \right) \quad (IV.6)$$

¹On présente ici le déroulement des calculs dans le cas de la vapeur d'eau. Ceci ne restreint en rien la généralité puisque le déroulement resterait identique pour une autre espèce chimique.

Avec λ en $[\mu m]$.

Le nombre de photons rétrodiffusés par unité d'angle solide est alors :

$$\frac{dN_{Ph,R}}{d\lambda} = P_{laser} \frac{\lambda}{h c} f(\lambda) \frac{\sigma(\lambda)}{\pi R_{laser}^2} dN_{H_2O} \quad (IV.7)$$

- P_{laser} la puissance moyenne du laser
- $h = 6,626.10^{-34}$ en $[J.s]$ la constante de Planck
- $c = 2,99792458.10^8$ $[m.s^{-1}]$ la célérité de la lumière dans le vide
- $f(\lambda)$: une fonction gaussienne représentant l'élargissement spectral du laser telle que $\int_0^{+\infty} f(\lambda) d\lambda = 1$

Le système de mesure va alors collecter par la lentille un nombre de photons (Figure IV.1).

$$\frac{dN_{Ph,C}}{d\lambda} = \frac{dN_{Ph,R}}{d\lambda} \Omega \quad (IV.8)$$

Où Ω désigne l'angle solide sous lequel la lentille collectrice voit le volume rétrodiffusant dV , soit :

$$\Omega = \frac{\pi R_{collecteur}^2}{D^2} \quad (IV.9)$$

Finalement, le signal rétrodiffusé recueilli par le détecteur en provenance de l'élément diffusant d'épaisseur dx à la distance D s'écrit :

$$\frac{dN_{Ph,C}}{d\lambda} = \frac{\pi R_{collecteur}^2}{D^2} P_{laser} \frac{\lambda}{h c} f(\lambda) \sigma(\lambda) N_a \eta_{H_2O} \frac{P}{P_0} \frac{T_0}{T} dx \quad (IV.10)$$

1.1.2 Influence de l'absorption

Dans la réalité, il est nécessaire de prendre en compte l'absorption optique le long des trajets optiques, c'est-à-dire pour le rayon incident et les rayons rétrodiffusés. La densité spectrale recueillie par le détecteur s'écrit alors :

$$\frac{dN_{Ph}}{d\lambda} = \frac{dN_{Ph,C}}{d\lambda} \text{Exp} \left[-2 \int_0^D K_{\lambda,T} dx \right] \quad (IV.11)$$

Où $K_{\lambda,T}$ désigne le coefficient d'absorption de la molécule dépendant de la température et de la longueur d'onde.

Nous avons donc simulé l'absorption atmosphérique pour la vapeur d'eau à une température de 1000 K en utilisant HITEMP 2010 et un trajet optique de 1,2 mètres sur la figure IV.2 ce qui correspondrait à un statoréacteur.

Remarque : si $K_{\lambda,T}$ est constant le long du trajet optique, alors le terme correctif de l'équation précédente se ramène au carré du facteur de transmission τ entre O et D .

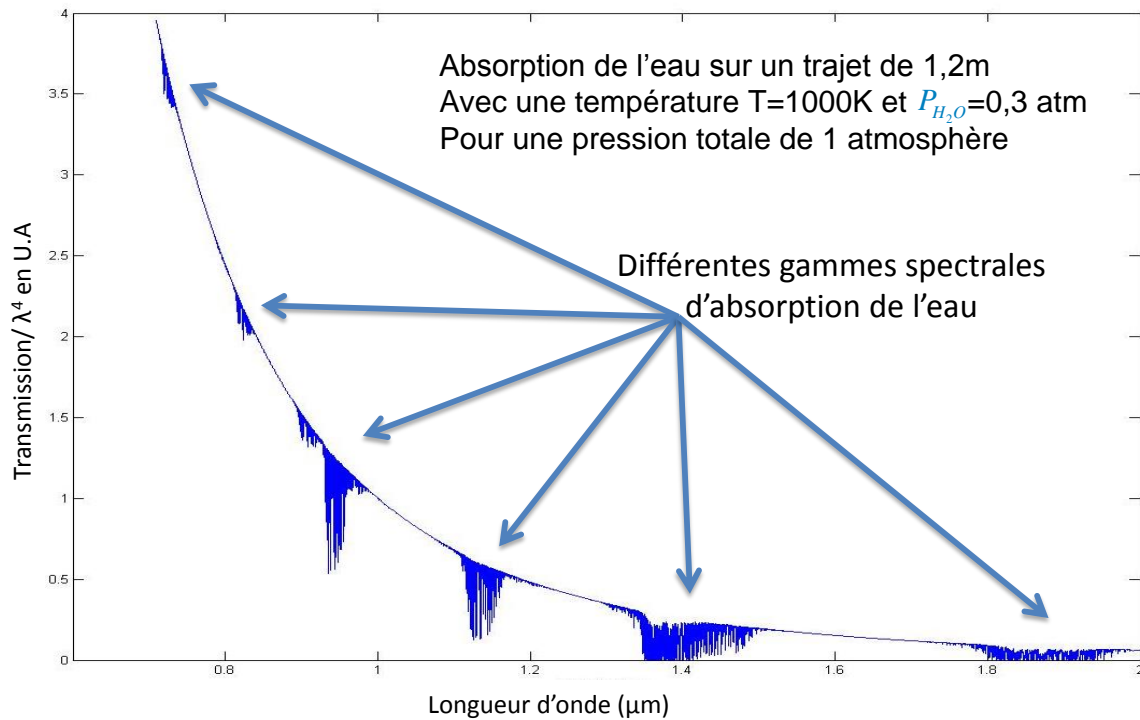


FIG. IV.2 – Diffusion Rayleigh en prenant en compte l'absorption de la vapeur d'eau.

1.1.3 Présentation des résultats aux longueurs d'onde d'intérêt dans le cas d'un Lidar rétrodiffusion élastique

Les valeurs retenues sont représentatives de ce qui peut être rencontré dans des gaz de combustion et on suppose l'utilisation d'un laser OPO accordable en fréquence :

- $T = 1000 K$,
- $P = 101325 Pa$,
- $\eta_{H_2O} = \frac{1}{3}$,
- $P_{laser} = 0,6 mJ$,
- $\delta\sigma = 0,15 nm$, la largeur de raie du laser OPO,
- $R_{collecteur} = 1,5 cm$,
- $D = 57,5 cm$,
- $dx = 5 cm$.

Nous présentons en premier lieu la variation de la section efficace $\sigma(\lambda)$ et la variation du coefficient de diffusion $\beta(\lambda)$ en fonction de la longueur d'onde sur la figure IV.3 ci-dessous [59] [60] :

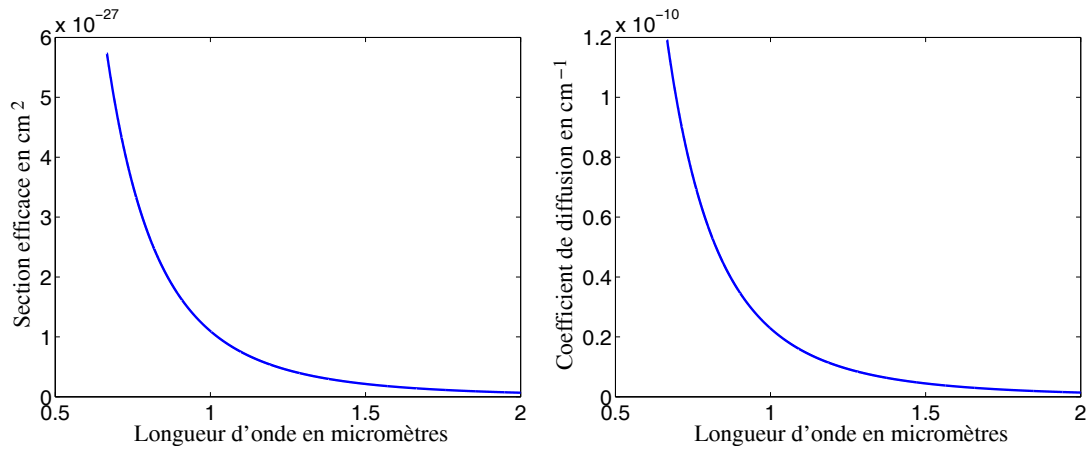


FIG. IV.3 – Variation de la section efficace et du coefficient de diffusion en fonction de la longueur d'onde en microns

Les variables $\sigma(\lambda)$ et $\beta(\lambda)$ étant maintenant définies pour toutes les longueurs d'onde, on prend en compte la puissance du laser par pulse sur sa largeur spectrale ce qui nous donne accès au nombre de photons diffusés dans tout l'espace en fonction de l'épaisseur de gaz. Puis, pour calculer le nombre de photons rétrodiffusés, il faut tenir compte de l'angle solide du collecteur ainsi que de l'absorption atmosphérique qui a été présentée figure IV.2.

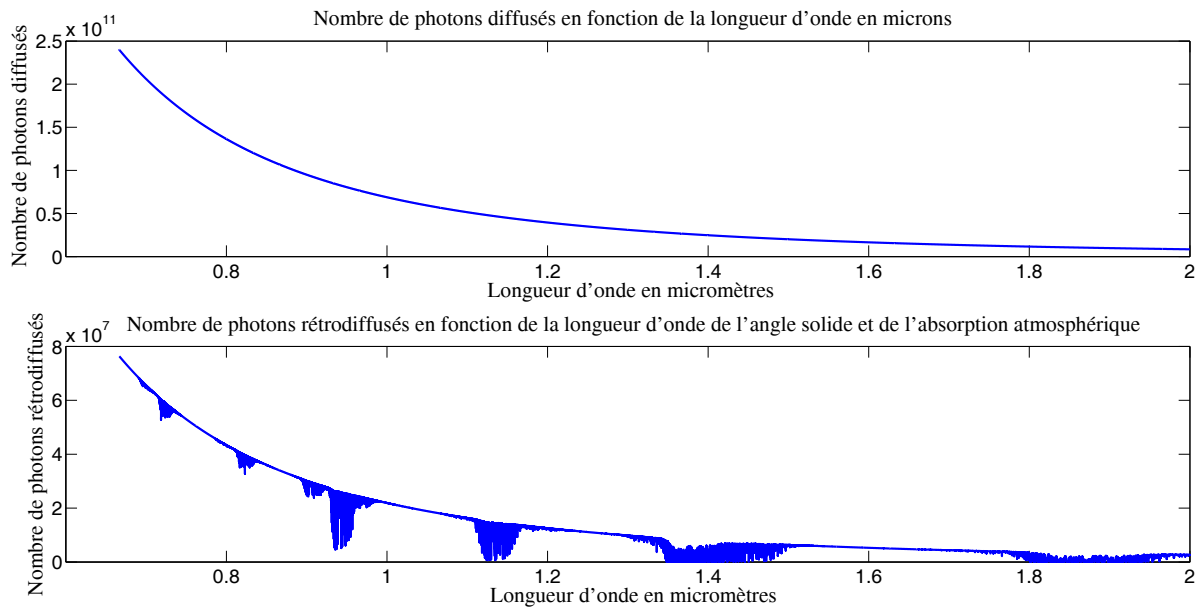


FIG. IV.4 – Variation du nombre de photons diffusés et rétrodiffusés en fonction de la longueur d'onde en microns

Ces calculs ont permis de nous orienter dans le choix du matériel de détection mais aussi dans le choix du laser accordable en fréquence qui seront définis dans le paragraphe du chapitre IV. Notre choix pour le matériel de détection s'est porté sur une caméra STREAK OPTRONIS de type SC-10. Il sera par ailleurs nécessaire de tenir compte du rendement quantique de

la camera STREAK pour le calcul du nombre de photons collectés. On présente ci-dessous les courbes de rendement quantique de la caméra STREAK SC-10 OPTRONIS pour laquelle plusieurs types de photocathodes sont disponibles en fonction de la gamme spectrale désirée (Figure IV.5).

On multiplie le nombre de photons rétrodiffusés par le rendement quantique de la caméra STREAK pour obtenir le nombre de photons que l'on pourrait visualiser en rétrodiffusion. Les résultats sont présentés sur la figure IV.6.

Nous avons choisi la photocathode S25 qui présente la plus grande gamme spectrale de détection mais aussi le meilleur rendement quantique dans la gamme où nous souhaiterions faire des mesures sur la vapeur d'eau ($\lambda = 0,66 \mu\text{m}$, $\lambda = 0,72 \mu\text{m}$, $\lambda = 0,82 \mu\text{m}$) En utilisant ce type de caméra nous ne pourrions pas faire des mesures au-delà de 900 nm mais on voit également que la décroissance du signal Rayleigh est très prononcée après 1 micron c'est pourquoi on s'est orienté vers ce type de photocathode.

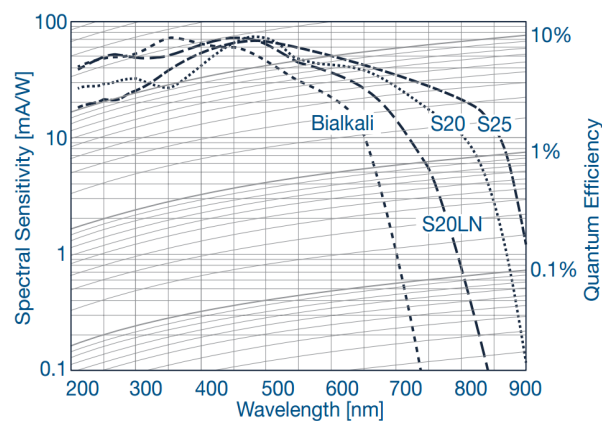


FIG. IV.5 – Courbe de réponse des différentes barrettes de détecteurs de la photocathode de la caméra STREAK OPTRONIS

On présente le nombre de photons rétrodiffusés théoriquement reçus par la caméra sur la figure IV.6.

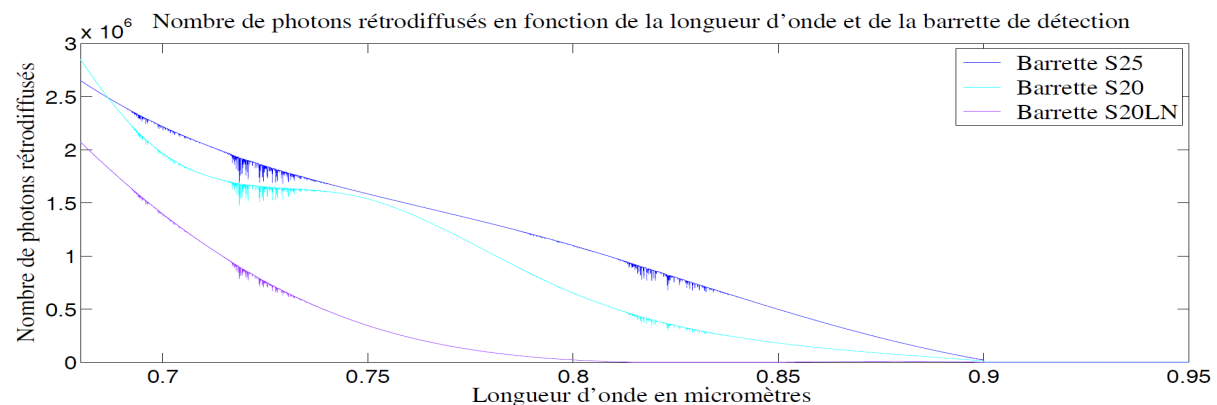


FIG. IV.6 – Variation du nombre de photons rétrodiffusés en fonction de la longueur d'onde en microns et de la barrette de détection

1.1.4 Estimation du nombre de photons rétrodiffusés dans le cas d'un Lidar Dial

Un banc Lidar Dial nous permet de déterminer la concentration totale, mais aussi la fraction molaire d'une espèce en particulier. Cette méthode repose sur la sélection de longueurs d'onde proches (λ_a et λ_b , voir Figure IV.8), nous permettant de considérer le coefficient de diffusion Rayleigh constant, c'est-à-dire indépendant de la longueur d'onde. λ_a est une longueur d'onde absorbée par l'espèce étudiée et λ_b une longueur d'onde proche de λ_a qui n'est absorbée par aucune des espèce présentes (Figure IV.2 et Figure IV.3) [61].

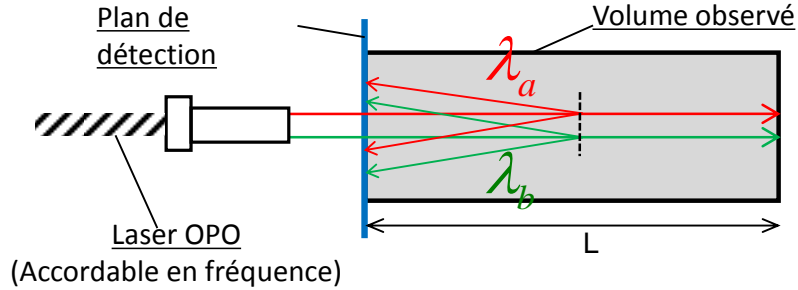


FIG. IV.7 – Schéma de principe de la simulation numérique en mode Dial

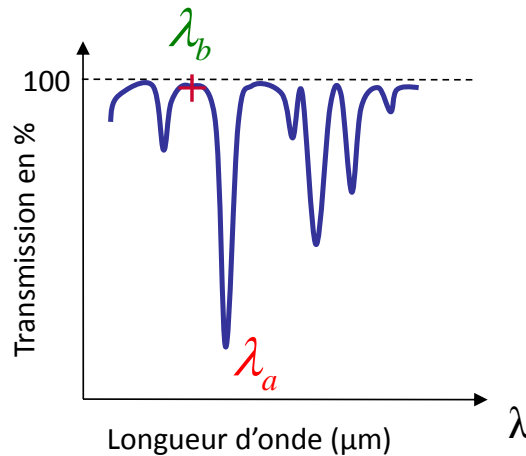


FIG. IV.8 – Exemple de longueur d'onde absorbée λ_a et transmise λ_b

Calcul du signal mesuré en mode Dial pour deux longueurs d'onde très proches avec une fraction molaire d'eau X_{H_2O} en %. On peut écrire [62] [63] :

$$S_L(x, \lambda_{a,b}) = S_0 \beta(x, \lambda_{a,b}) e^{-2 \int_0^x K_{H_2O}(x', \lambda_{a,b}) C(x') X_{H_2O}(x') dx'} \quad (IV.12)$$

$$\frac{S_L(x, \lambda_a)}{S_L(x, \lambda_b)} = \frac{S_0 \beta(x, \lambda_a) e^{-2 \int_0^x K_{H_2O}(x', \lambda_a) C(x') X_{H_2O}(x') dx'}}{S_0 \beta(x, \lambda_b) e^{-2 \int_0^x K_{H_2O}(x', \lambda_b) C(x') X_{H_2O}(x') dx'}} \quad (IV.13)$$

On considère que les deux longueurs d'onde sont suffisamment proches pour que l'on puisse faire l'hypothèse que $S_0 \beta(x, \lambda_a) = S_0 \beta(x, \lambda_b)$ ce qui nous permet d'écrire :

$$\frac{S_L(x, \lambda_a)}{S_L(x, \lambda_b)} = e^{-2 \int_0^x [K_{H_2O}(x', \lambda_a) - K_{H_2O}(x', \lambda_b)] C(x') X_{H_2O}(x') dx'} \quad (IV.14)$$

$$-2 \int_0^x [K_{H_2O}(x', \lambda_a) - K_{H_2O}(x', \lambda_b)] C(x') X_{H_2O}(x') dx' = \ln\left(\frac{S_L(x, \lambda_a)}{S_L(x, \lambda_b)}\right) \quad (IV.15)$$

$$[K_{H_2O}(x, \lambda_a) - K_{H_2O}(x, \lambda_b)] C(x) X_{H_2O}(x) = -\frac{1}{2} \frac{\partial \ln\left(\frac{S_L(x, \lambda_a)}{S_L(x, \lambda_b)}\right)}{\partial x} \quad (IV.16)$$

Cette dernière équation nous permet d'obtenir à partir du rapport des deux signaux Lidar le produit suivant :

$$[K_{H_2O}(x, \lambda_a) - K_{H_2O}(x, \lambda_b)] C(x) X_{H_2O}(x) \quad (IV.17)$$

Cette fonction servira de référence pour le calcul inverse, mais les mesures en mode Dial ne sont réalisables que dans le cadre d'une absorption significative sur la distance de visée prise en compte par la résolution spatiale de notre système. Dans le cas où l'absorption est très faible, les deux signaux ne présenteront pas de différence significative et nous ne pourrons pas utiliser la mesure pour retrouver le profil de température et de concentration. Nous privilégierons dans ce cas la mesure à une seule longueur d'onde en Lidar.

Les tableaux suivants présentent le coefficient de transmission de la vapeur d'eau et la faisabilité des mesures Dial sur différents systèmes que l'on peut rencontrer en cas réel en fonction de la longueur d'onde choisie :

Application	Bec Meker	Rampe à gaz	Cylindre de voiture	Statoréacteur	Turboréacteur
Epaisseur	2cm	30cm	6cm	80cm	100cm
Résolution spatiale	0,5cm	2cm	1cm	10cm	10cm
pression totale	1bar	1bar	80bar	6bar	1bar
pression partielle	0,1bar	0,1bar	8bar	2bar	0,3bar
Température	1700°C	1700°C	1700°C	2000°C	600°C
Transmission maximale	1	1	0,998	0,997	0,997
Faisabilité du DIAL	Non	Non	Non	Non	Non

TAB. IV.1 – Coefficients de transmission de la vapeur d'eau pour différentes applications et faisabilité du Dial à 890 nm

Application	Bec Meker	Rampe à gaz	Cylindre de voiture	Statoréacteur	Turboréacteur
Épaisseur	2cm	30cm	6cm	80cm	100cm
Résolution spatiale	0,5cm	2cm	1cm	10cm	10cm
pression totale	1bar	1bar	80bar	6bar	1bar
pression partielle	0,1bar	0,1bar	8bar	2bar	0,3bar
Température	1700°C	1700°C	1700°C	2000°C	600°C
Transmission maximale	0,998	0,99	0,7	0,55	0,45
Faisabilité du DIAL	Non	Non	Oui	Oui	Oui

TAB. IV.2 – Coefficients de transmission de la vapeur d'eau dans pour différentes applications et faisabilité du Dial à 950 nm

En pratique le mode DIAL n'est possible pour la vapeur d'eau qu'avec la raie à 950 nm.

1.1.5 Aspects temporels

Les photons rétrodiffusés par une tranche de gaz localisée à l'abscisse x auront un temps de retard δt par rapport à ceux se rétrodiffusés sur la face avant du nuage de gaz ($x = 0$) donné par :

$$\delta t = 2x \frac{n_i}{c} \quad (\text{IV.18})$$

Où n_i est l'indice optique du gaz.

La mesure de δt permet donc de localiser spatialement la couche de gaz dont sont issus les photons rétrodiffusés.

1.2 Présentation du matériel de détection et du matériel d'excitation

1.2.1 Caméra STREAK ou caméra à balayage de fente modèle SC-10 OPTRONIS

Nous avons choisi la caméra STREAK OPTRONIS équipée de la barrette de détection S25 pour la photocathode dont la courbe de réponse est présentée sur la figure IV.5. Cette caméra est composée de 5 parties présentées sur la figure IV.9 [64].

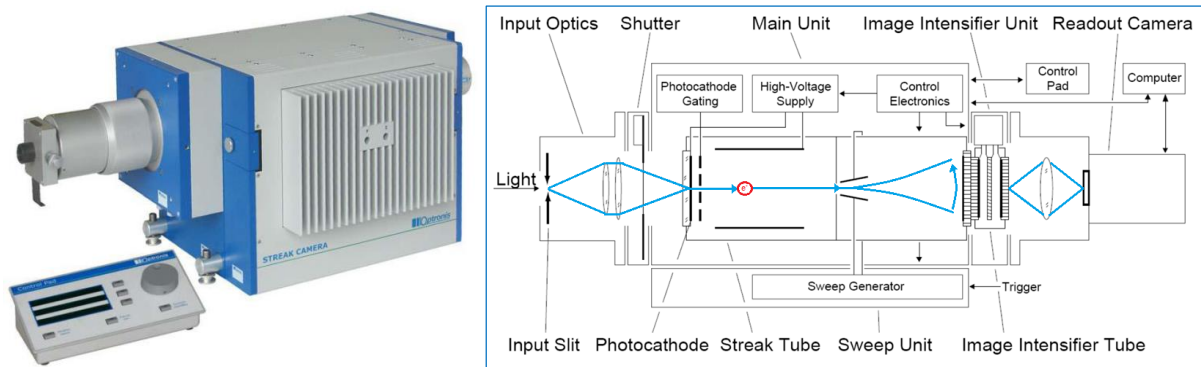


FIG. IV.9 – Photographie et schéma de principe de la caméra Streak SC-10 [64]

La lumière pénètre dans le système par la fente d'entrée de longueur 8 mm ("Input slit" sur le schéma) dont la largeur est variable de 0 à 2 mm par pas de $10\text{ }\mu\text{m}$ puis traverse le système optique ("Input Optics"). Le système optique collecteur est composé de deux lentilles dont la distance de séparation est réglable en distance pour optimiser la focalisation. Le système optique focalise le faisceau d'entrée sur la photocathode qui permet de convertir les photons reçus en photoélectrons suivant la courbe de réponse de sensibilité figure IV.5. Cette courbe représente la gamme spectrale ou la photocathode est capable de convertir un photon en électron. Les photons étant convertis en photoélectrons, ils traversent ensuite le tube de Streak qui est composé d'une alimentation haute tension ("High-Voltage supply") qui accélère ces électrons vers un écran en phosphore. La haute tension au sein du tube Streak varie sur un laps de temps (entre 300 et 2000 ps) pour créer un balayage des photoélectrons sur l'écran à l'entrée de l'intensificateur d'image.

Le photoélectron est dévié en fonction de la tension et donc du temps et, à partir de sa zone d'impact sur le MCP (Micro Channel Plate), on sait quand il a été émis relativement à l'instant du déclenchement du balayage.

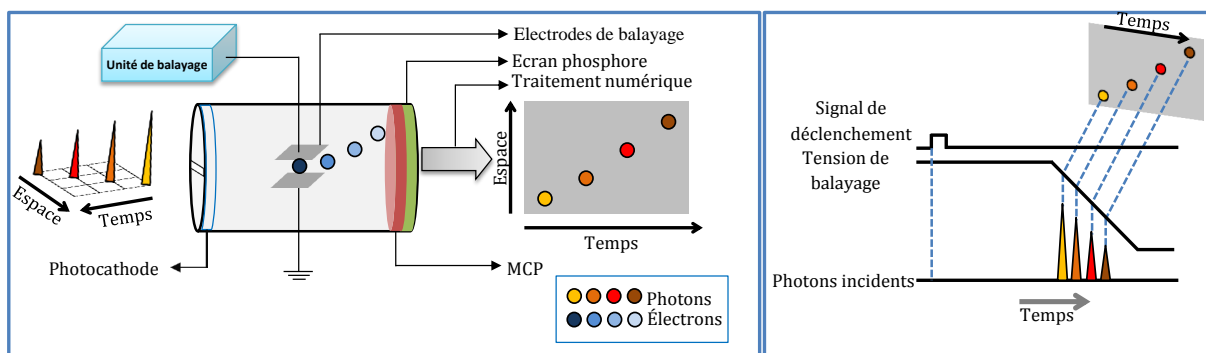


FIG. IV.10 – Schéma de principe du tube Streak et du processus de balayage

Les photoélectrons une fois déviés par la variation de tension impactent un écran de phosphore qui va les convertir en photons. Ils passent à travers l'unité d'intensification de signal qui permet de multiplier le nombre de photons reçus par un facteur allant de 1 à 1000 en faisant varier la tension au sein de celle-ci ("Image Intensifier Unit").

1.2.2 Laser accordable en fréquence ou Laser O.P.O EKSPLA PG 401

L'intérêt principal d'utiliser un laser accordable en fréquence est le choix de la longueur d'onde d'utilisation du laser. Il est composé d'un laser de pompe qui fournit des pulses de photons à la fréquence ν_0 . Un photon va traverser la cavité optique contenant un matériau non-linéaire qui permet la création de deux pulses de photons à des fréquences inférieures à ν_0 . Les deux photons formés sont désignées par les termes ν_1 qui représente le photon émis en sortie du laser et ν_2 qui est le photon complémentaire appelée aussi "idler" qui permet la conservation de l'énergie. Cette conservation de l'énergie impose :

$$h\nu_0 = h\nu_1 + h\nu_2 \quad (\text{IV.19})$$

L'utilisation de la cavité optique non-linéaire permet de générer des signaux pouvant aller de l'ultra violet à l'infrarouge lointain. Le signal de sortie provient de l'interférence paramétrable entre les trois différentes ondes de la cavité optique (Figure IV.11). Les interférences peuvent être adaptées afin de sélectionner la longueur d'onde via la position du cristal sur son axe de rotation.

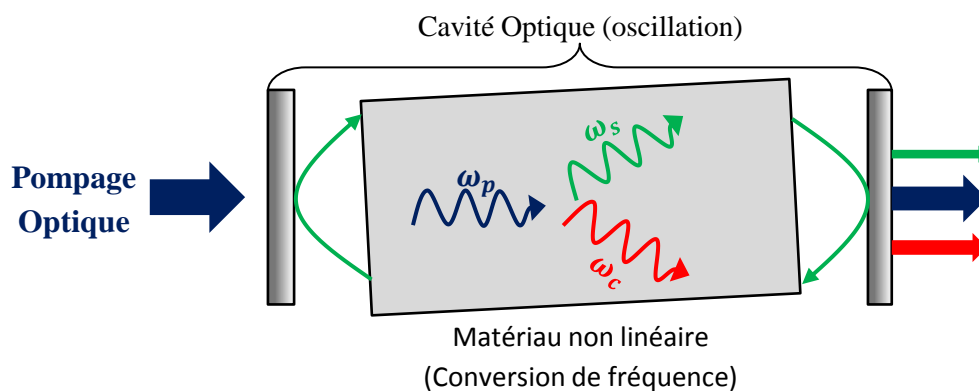


FIG. IV.11 – Schéma de principe du laser OPO

L'utilisation d'un laser accordable permet aussi de générer des signaux de sortie crête à crête de très forte intensité ce qui est idéal pour les applications de spectroscopie non-linéaire. Le signal généré en sortie est très étroit spectralement avec une largeur de bande inférieure à 6 cm^{-1} [64]. Nous présentons ci dessous les caractéristiques énergétiques de notre laser PG 401 de marque EKSPLA :

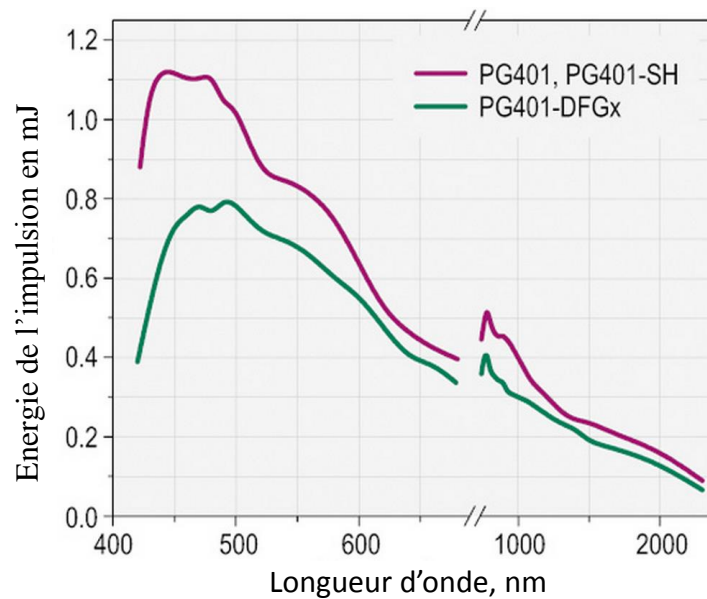


FIG. IV.12 – Courbe d'énergie émise en fonction de la longueur d'onde de notre laser OPO [64]

Nous avons orienté notre choix vers ce type de laser car il nous permet d'accéder à toutes les longueurs d'onde d'intérêt de la vapeur d'eau qui sont $\lambda = 820 \text{ nm}$, $\lambda = 950 \text{ nm}$, $\lambda = 1150 \text{ nm}$ notamment, bien que la raie située au delà de 1 micron ne soit pas visible par la caméra. Par contre nous n'aurions pas accès à la raie $\lambda = 720 \text{ nm}$ qui se trouve juste dans la gamme de coupure de notre cavité optique non-linéaire. Le choix du PG401 est issu du compromis entre énergie par impulsion, résolution spectrale, durée de l'impulsion et coût.



FIG. IV.13 – Rappels de quelques données techniques du Laser OPO PG 401

2 Réalisation de mesures sur le banc de rétrodiffusion

Les différentes expériences décrites dans ce paragraphe nous permettent de tester la méthode de mesure pour identifier les profils de température et de concentration par banc de Lidar. Nous présenterons les différentes mesures réalisées en laboratoire sur des flammes ainsi que le programme d'inversion en rétrodiffusion nous donnant accès aux profils de température et de concentration à partir des données collectées par la caméra Streak [65].

2.1 Mesure en rétrodiffusion

Nous réalisons une série de mesures sur différents types de flammes en rétrodiffusion avec notre Laser OPO et notre caméra Streak afin de valider dans un premier temps le montage optique et notre méthode mesure. Nous avons étudié différentes formes de flamme dont des flammes verticale CH_4/Air , des flammes inclinées H_2/Air et des flammes issus d'un brûleur rampe linéaire d'une longueur de 15 cm.

Un diaphragme est placé en sortie du laser afin de filtrer spatialement le faisceau, le signal rétrodiffusé est collecté via la caméra Streak située en aval d'une lentille convergente de distance focale 125 mm. Un absorbeur de faisceau est placé derrière la flamme à étudier dans le but d'éviter tout signal parasite et toute réflexion dans la pièce. La caméra Streak ne pouvant être placée colinéairement au laser, par commodité nous l'avons placé de telle sorte que l'angle entre le faisceau laser et la caméra soit inférieur à $1,5^\circ$ comme indiqué sur la figure IV.14.

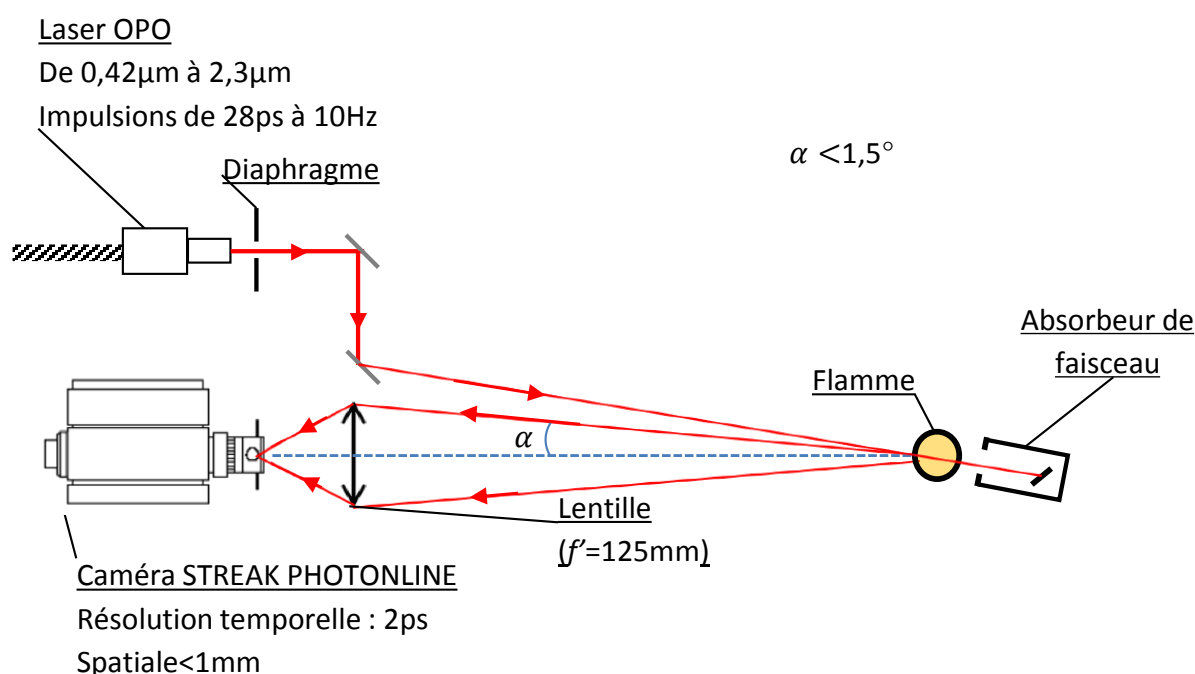


FIG. IV.14 – Schéma de principe du montage en rétrodiffusion

2.1.1 Mesure d'une flamme verticale de prémélange H_2/Air

Pour réaliser nos premières expériences, nous nous sommes placés dans le cas d'un lidar rétrodiffusion élastique afin de vérifier la concordance des résultats du programme d'inversion en rétrodiffusion avec les résultats des logiciels libres comme "Gaseq" de simulation de combustion. Nous utilisons donc une seule longueur d'onde $\lambda = 0,42 \mu m$ qui fournit environ 1 mJ par impulsion. Nous utiliserons cette longueur d'onde d'excitation pour les trois flammes suivantes.

Notre première configuration a consisté à viser au milieu d'une flamme de H_2/Air telle que représentée sur la IV.15.

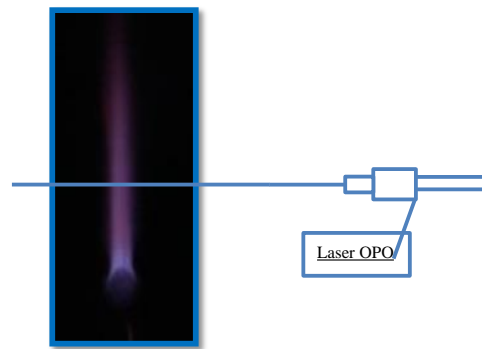


FIG. IV.15 – Photographie de la flamme de diffusion H_2/Air

Le résultat obtenu par la camera Streak avant inversion des mesures est présenté sur la figure IV.16. On peut voir sur l'image de gauche, le laser traversant la flamme vu par la caméra Streak. L'axe des abscisses représente le balayage temporel, c'est à dire la date à laquelle les photons ont été détectés par la caméra. La base de temps est donc la résolution temporelle et elle dépend de la vitesse de balayage utilisée. L'axe temporel de la caméra contient 1400 pixels ce qui représente un temps de balayage compris entre 200 et 20000 picosecondes. Le nombre de coups reçu par les pixels numérotés de 0 à 1051 représente les 8 mm d'ouverture de la fente d'entrée de la caméra.

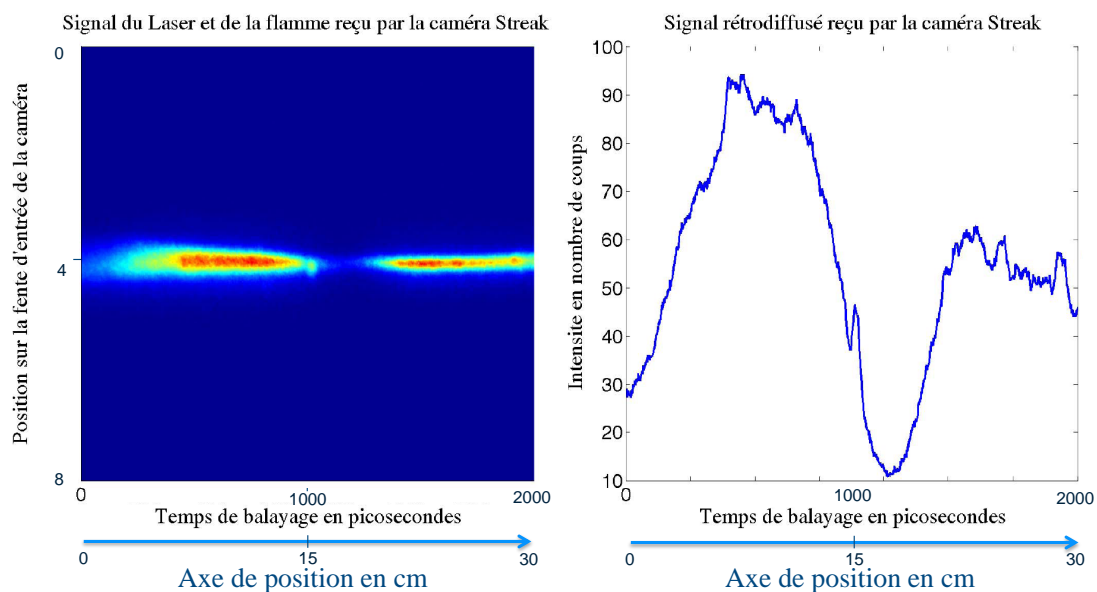


FIG. IV.16 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme verticale H_2/Air

À l'endroit où se situe la flamme, on observe un creux de diffusion. Ce phénomène s'explique par le fait que la diffusion est proportionnelle à la concentration des molécules qui varie inversement proportionnellement avec la température (en considérant la loi des Gaz Parfait à pression constante). Dans la flamme la température est donc très élevée par rapport aux bords ce qui implique une chute de concentration et donc du nombre de photons rétrodiffusés. Après traitement de l'image, on obtient la courbe de droite Figure IV.16 qui représente le nombre de photons rétrodiffusés en fonction du temps. Ce résultat est utilisé dans le programme d'inversion en rétrodiffusion pour obtenir le profil de température et de concentration en tenant compte

des conditions aux limites (on considère une température de 300 K sur les bords). Les résultats sur cette flamme seront présentés dans la section suivante.

2.1.2 Mesure d'une flamme inclinée H_2/Air

Nous allons viser au cours de cette expérience une flamme inclinée de H_2/Air . Nous sommes toujours dans le cas d'une visualisation de signal lidar en rétrodiffusion élastique. Nous utilisons la même longueur d'onde d'excitation qu'avec la flamme verticale qui est $\lambda = 0,42 \mu m$. On a 1 mJ d'énergie par impulsion. Le creux d'absorption indique comme dans le cas précédent l'endroit où se situe la flamme. La partie rouge sur l'image de gauche de la figure IV.18 est le signal diffusé par l'air qui présente le signal le plus élevé, car elle présente la température la moins élevée (cela est relatif à la loi des gaz parfait à pression constante).

La partie de droite de l'image ne présente pas la même caractéristique cela provient du fait que la flamme est inclinée donc la température sous la flamme est en quelque sorte une moyenne entre la température ambiante et la température de la flamme inclinée. Cela explique le profil de la courbe du signal rétrodiffusé obtenu en fonction du temps alors que l'on pourrait s'attendre à un profil en forme de cloche comme dans le cas suivant sur la rampe. Le résultat de cette flamme sera présenté dans la section suivante.

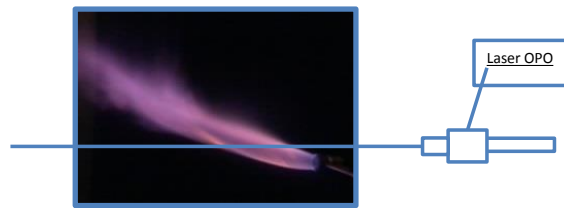


FIG. IV.17 – Photographie de la flamme de prémélange inclinée H_2/Air

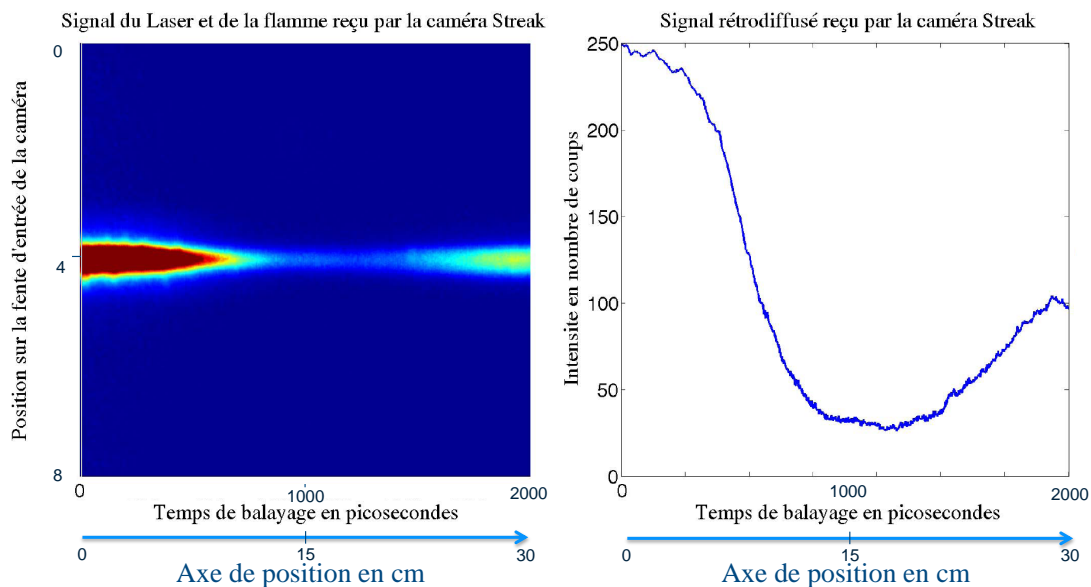


FIG. IV.18 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme "inclinée" H_2/Air

2.1.3 Mesure d'une flamme de méthane sur un brûleur rampe linéaire

Nous nous plaçons dans les mêmes conditions que les deux précédentes expériences (même longueur d'onde $\lambda = 0,42 \mu\text{m}$ et puissance du laser) la seule différence est que l'on utilise une flamme de plus grande longueur (15 cm) à l'aide d'une rampe linéaire. Les parties rouges sur l'image de gauche de la figure IV.20 représentent le signal rétrodiffusé par l'air de part et d'autre de la rampe qui présentent comme dans les autres cas d'études la température la plus basse et donc le signal le plus intense. La forme de la courbe obtenue (profil en cloche) est en adéquation avec ce que nous avons prévu après l'étude des deux précédentes flammes. La ligne de visée du laser se situe environ 2 cm au dessus de la rampe ce qui explique que le creux d'absorption n'est pas trop bruité et presque plan par rapport à la photo où l'on peut voir que la flamme de la rampe est légèrement plus grande d'un côté. Les résultats sur cette flamme seront présentés dans la section suivante.

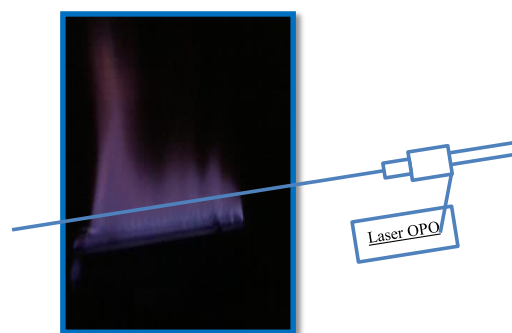


FIG. IV.19 – Photographie de la flamme de méthane issu d'un brûleur rampe linéaire

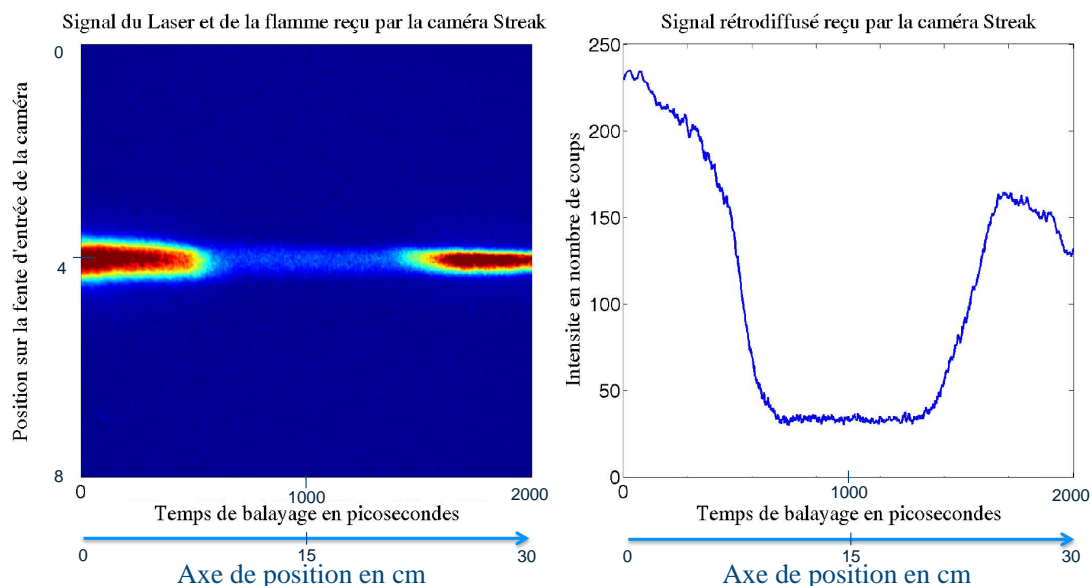


FIG. IV.20 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme de méthane d'un brûleur rampe linéaire

2.2 Programme d'inversion des mesures en rétrodiffusion

2.2.1 Principe de l'inversion des mesures en rétrodiffusion

Le principe comme pour l'inversion des mesures en émission consiste à résoudre l'équation suivante où les inconnues que l'on cherche à déterminer sont la température et la concentration (fraction molaire X) :

$$S_{Rayleigh}^{calc}(T, X) = S_{Rayleigh}^{mes} \quad (IV.20)$$

On va comparer le signal Rayleigh rétrodiffusé par rapport au signal calculé par le modèle à l'aide de l'équation du Lidar et de la diffusion Rayleigh. On rappelle l'équation Lidar :

$$S_L(x) = A * S_0 * \Omega * \tau^2(\lambda, x = a \rightarrow b) * \int_x^{x+e} \beta(\lambda, x') dx' \quad (IV.21)$$

On peut réécrire cette équation en se plaçant à une distance x de la caméra par la formule :

$$S_L(x) = \frac{A * \beta(\lambda, x)}{x^2} * \int_x^{x+e} K(\lambda, x') C(x') dx' \quad (IV.22)$$

Avec :

- A le coefficient d'appareillage,
- β le coefficient de diffusion Rayleigh,
- K le coefficient d'absorption monochromatique du gaz considéré,
- C la concentration.

Le programme d'inversion des mesures en émission qui était assez lourd en raison de l'utilisation de l'état adjoint. Ici l'inversion va reposer principalement sur la fonction `FminSearch` du logiciel Matlab décrite Figure IV.21.

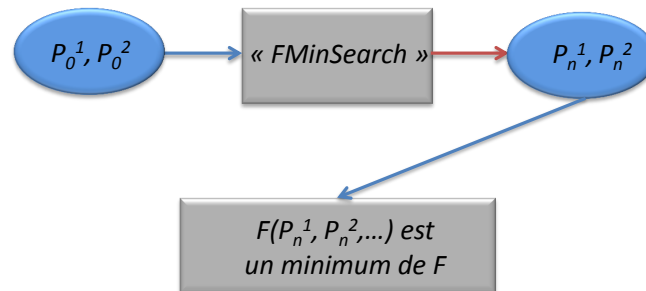


FIG. IV.21 – Fonctionnement de la fonction `FMinSearch` de Matlab

2.2.2 Résultat de l'inversion en rétrodiffusion des différentes flammes étudiées au paragraphe 2.1

On va présenter dans ce paragraphe le résultat du programme d'inversion en rétrodiffusion des flammes H_2/Air verticale et inclinée ainsi qu'avec le brûleur en forme de rampe linéaire au méthane. Étant donné les températures attendues, nous ne pourrions comparer nos profils de température obtenus avec un thermocouple, nous simulerons les températures des flammes avec un logiciel de combustion libre ("Gaseq") qui nous donnera une idée de la température en fonction du mélange.

Résultat de la flamme H_2/Air verticale :

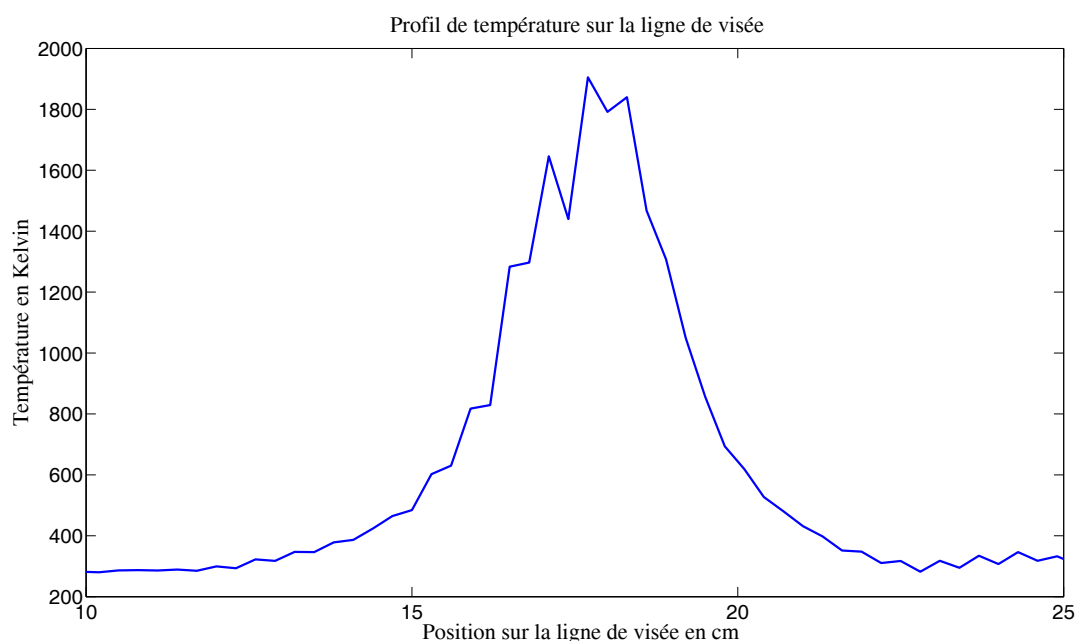
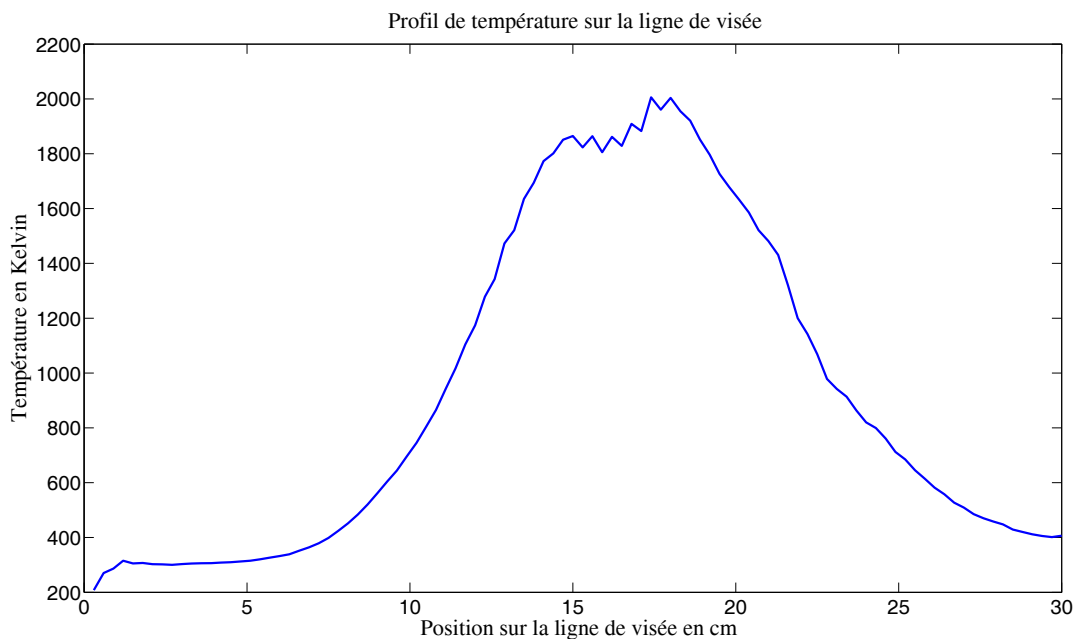


FIG. IV.22 – Profil de température de la flamme H_2/Air verticale

Le calcul de combustion à pression constante d'une flamme H_2/Air a trouvé une température adiabatique de flamme de l'ordre de 2350 K à la stoechiométrie. Si l'on se place en excès d'air, on atteint une température de 1650 K et si l'on se place en excès d'hydrogène on atteint une température de l'ordre de 2300 K. Notre flamme n'ayant pas été réalisée avec des débits-mètres, nous ne connaissons pas avec précision le mélange réalisé mais la température obtenue se situe parfaitement dans l'intervalle de température calculée. De plus pour minimiser les risques avec l'utilisation de l'hydrogène, nous nous plaçons plutôt en excès d'air quand nous ne travaillons pas à la stoechiométrie ce qui confirme notre résultat sur la flamme H_2/Air verticale.

Résultat de la flamme H_2 /Air inclinée :FIG. IV.23 – Profil de température de la flamme H_2 /Air inclinée

Les calculs pour la flamme H_2 /Air inclinée restent les mêmes que dans le cas précédent où la flamme est verticale. La température reste dans l'intervalle 1600 – 2300 K suivant la richesse du mélange ce qui est en accord avec notre résultat.

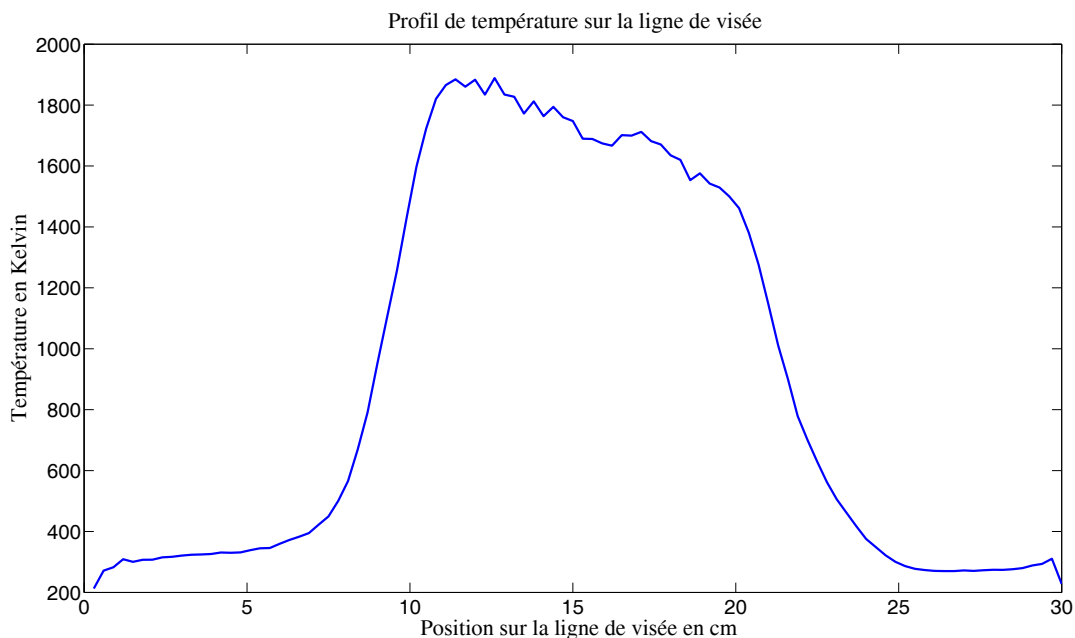
Résultat de la flamme de méthane sur le brûleur rampe :

FIG. IV.24 – Profil de température de la flamme de méthane sur le brûleur rampe

Les calculs de combustion à pression constante d'une flamme de méthane/Air ont trouvé une température adiabatique de flamme de l'ordre de 2200 K à la stoechiométrie. Si l'on se place

en excès d'air, on atteint une température de 1530 K et si l'on se place en excès d'hydrogène on atteint une température de l'ordre de 1600 K . Dans notre cas d'étude la flamme était en léger excès d'hydrogène même si nous ne connaissons pas avec précision le mélange réalisé, la température obtenue se situe parfaitement dans l'intervalle de température calculée.

2.3 Couplage des mesures en émissions avec les mesures en rétrodiffusion

Nous avons précédemment validé nos mesures en rétrodiffusion et en émission sur différents types de flammes. Nous présentons dans ce paragraphe la mise en œuvre du banc d'essai avec les mesures couplées en émission et rétrodiffusion. Nous validerons dans un premier temps le principe de la mesure sur un brûleur rampe linéaire avant de déterminer le profil de température et de concentration d'une turbine Jetcat P100 Rx qui modélisera le couplage sur un système que l'on peut qualifier de réel.

2.3.1 Principe du couplage émission/rétrodiffusion

Nous avons d'une part un Laser OPO délivrant des impulsions de 30 ps à une longueur d'onde allant de 0,4 à 2,3 μm avec une largeur de bande 6 cm^{-1} couplé à une caméra STREAK nous permettant une résolution temporelle de 2 ps. La résolution spatiale est donc déterminée par la durée l'impulsion laser (environ 5 mm).

Et d'autre part, nous utilisons un spectromètre à transformée de Fourier nous autorisant une résolution spectrale de 0,125 cm^{-1} . Un miroir amovible (M3) nous permet de réaliser les deux mesures sur une même flamme en passant simplement de la mesure en rétrodiffusion à la mesure en émission.

Le centre de la flamme est situé à 75 cm de la lentille de collection. Nous faisons la mesure Lidar à 450 nm, longueur d'onde à laquelle le signal reçu est le plus intense.

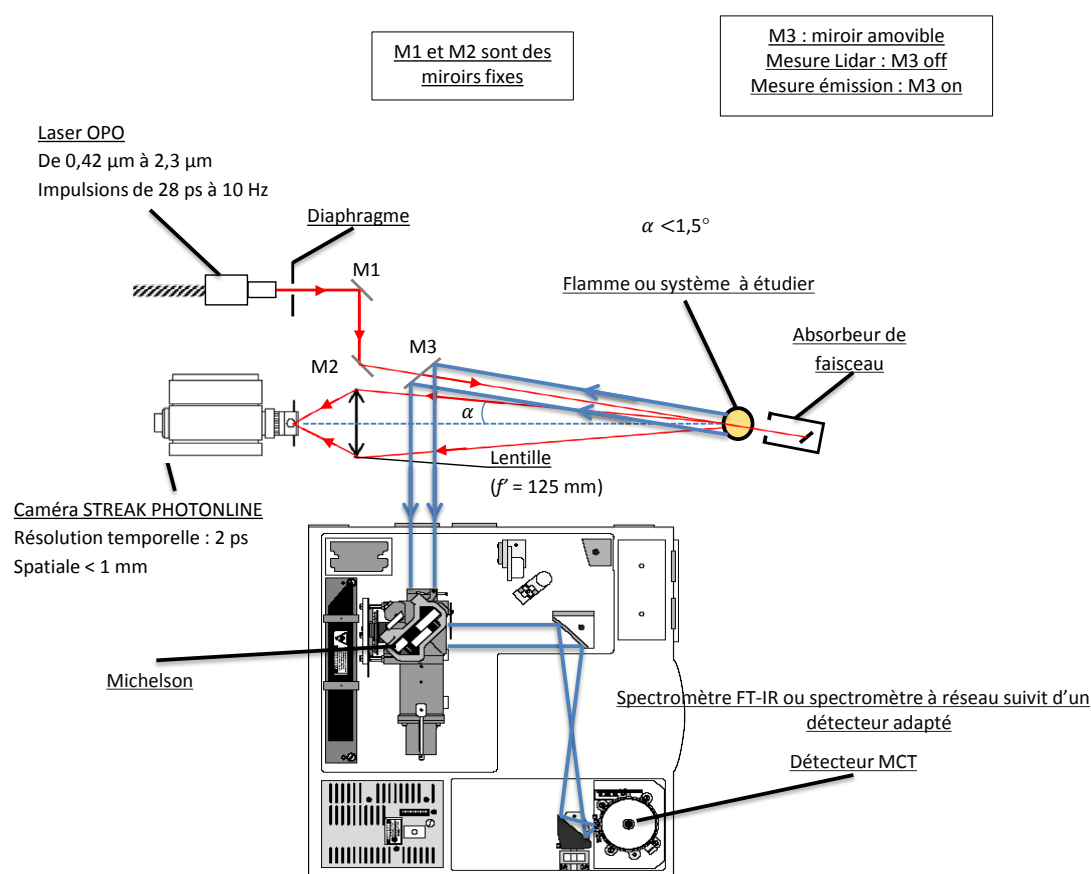


FIG. IV.25 – Schéma de principe du couplage émission/rétrodiffusion

2.3.2 Couplage émission/rétrodiffusion sur un brûleur rampe linéaire

La première expérience couplant une mesure en émission et une mesure en rétrodiffusion a été menée sur une flamme de méthane issu d'un brûleur rampe linéaire de 15 cm de long (Figure IV.25).

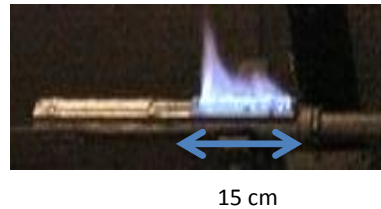


FIG. IV.26 – Photographie de la flamme de méthane issu du brûleur rampe

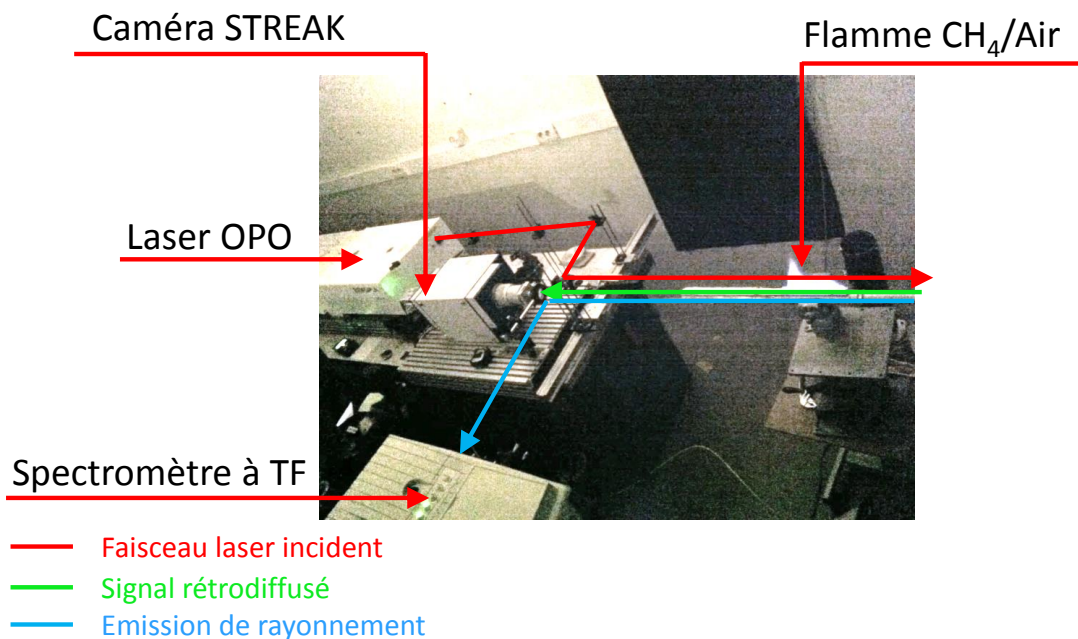


FIG. IV.27 – Photographie du montage réalisé pour la mesure en émission et rétrodiffusion simultanément

Résultat de la mesure couplée sur le brûleur rampe :

La figure IV.28 à gauche correspond au signal mesuré par la caméra STREAK dans le cadre de la mesure en rétrodiffusion. Nous avons en abscisse le temps caméra (de 0 à 2000 ps) et en ordonnée la position du signal sur la fente d'entrée de la caméra (0 à 8 mm). Sur cette image nous observons d'une part l'effet de la présence de la flamme sur le signal diffusé. Nous avons en effet une atténuation significative du signal où la flamme est présente. D'autre part, nous observons une diminution progressive de l'intensité du signal le long de l'axe temporel. Ceci est dû à la diminution de l'angle solide avec l'augmentation de la distance entre la lentille collectrice et la région observée à un instant donné.

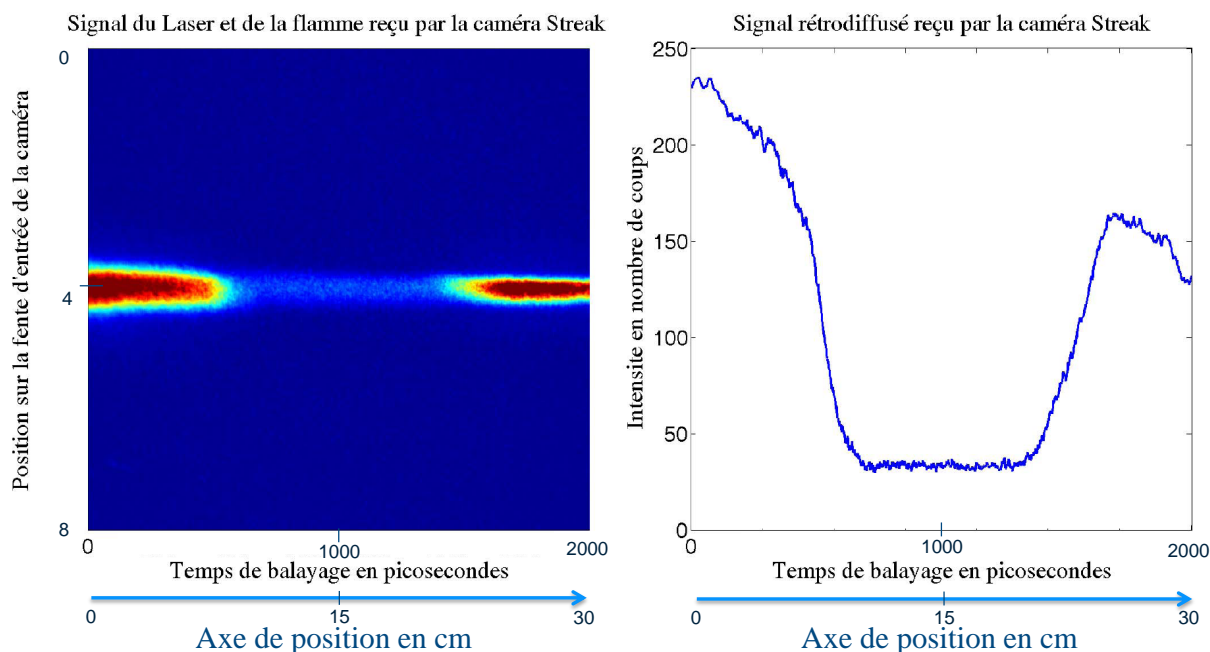


FIG. IV.28 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme de méthane d'un brûleur rampe linéaire

La courbe de droite figure IV.28 représente le signal Rayleigh rétrodiffusé mesuré par la caméra Streak pour lequel le modèle présenté plus haut dans le paragraphe 2.2.1 retrouve une température maximale de l'ordre de 1857 K (Figure IV.29).

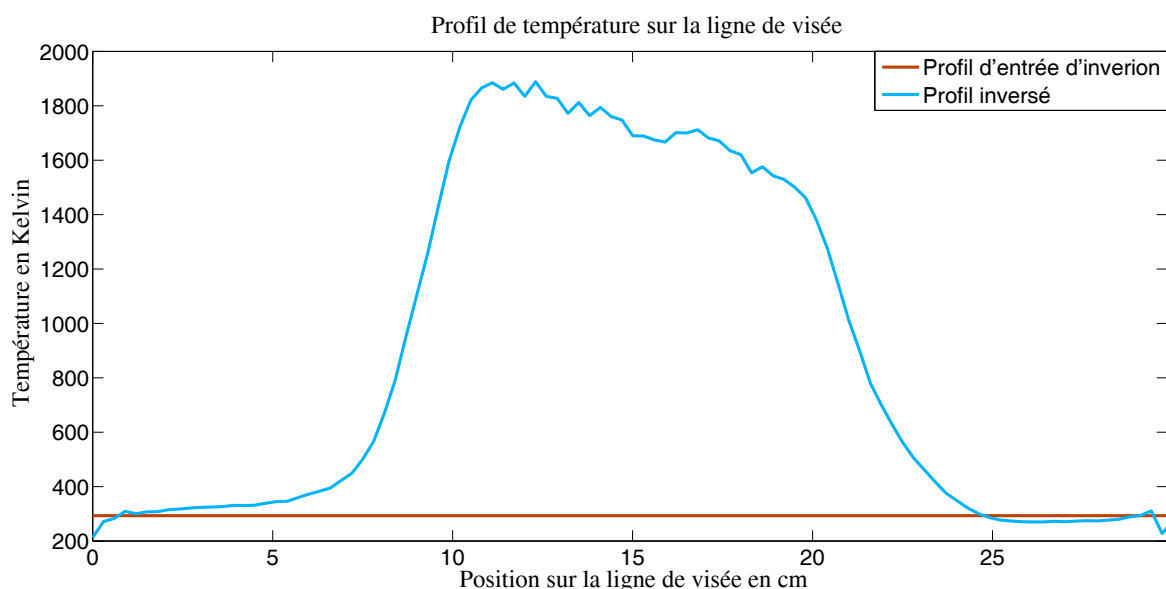


FIG. IV.29 – Profil de température retrouvé par inversion de la mesure en rétrodiffusion d'une flamme de méthane issue d'un brûleur rampe linéaire

La figure IV.30 présente le spectre de la tête de bande du CO₂ en luminance. Ce spectre a été utilisé dans le programme d'inversion de données spectroscopiques afin d'obtenir la température maximale atteinte dans la flamme. Nous obtenons environ 1820 K, ce qui donne un facteur de correction de 1,13 par rapport à la mesure de température en rétrodiffusion.

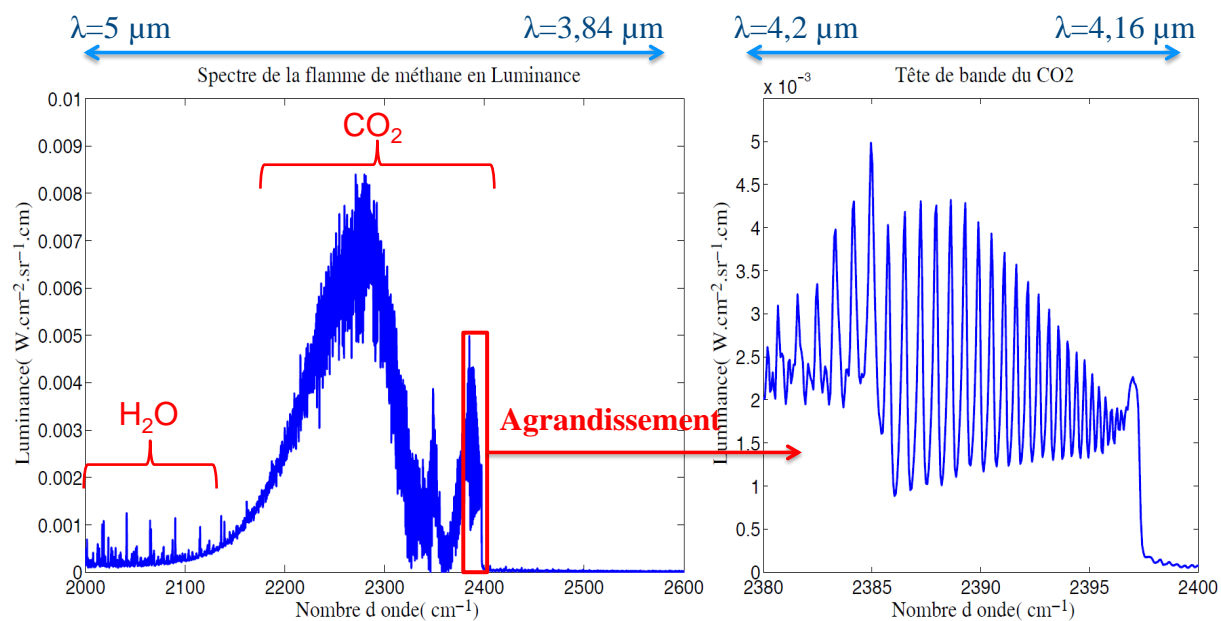


FIG. IV.30 – Mesure en émission de la tête de bande du CO_2

La figure IV.31 représente le profil de température final obtenu après correction par le coefficient qui est le rapport entre la température obtenue par émission et celle obtenue par rétrodiffusion. L'émission étant beaucoup plus sensible à la température que la rétrodiffusion, cela nous permet de corriger le profil de température par la température maximale obtenue par émission.

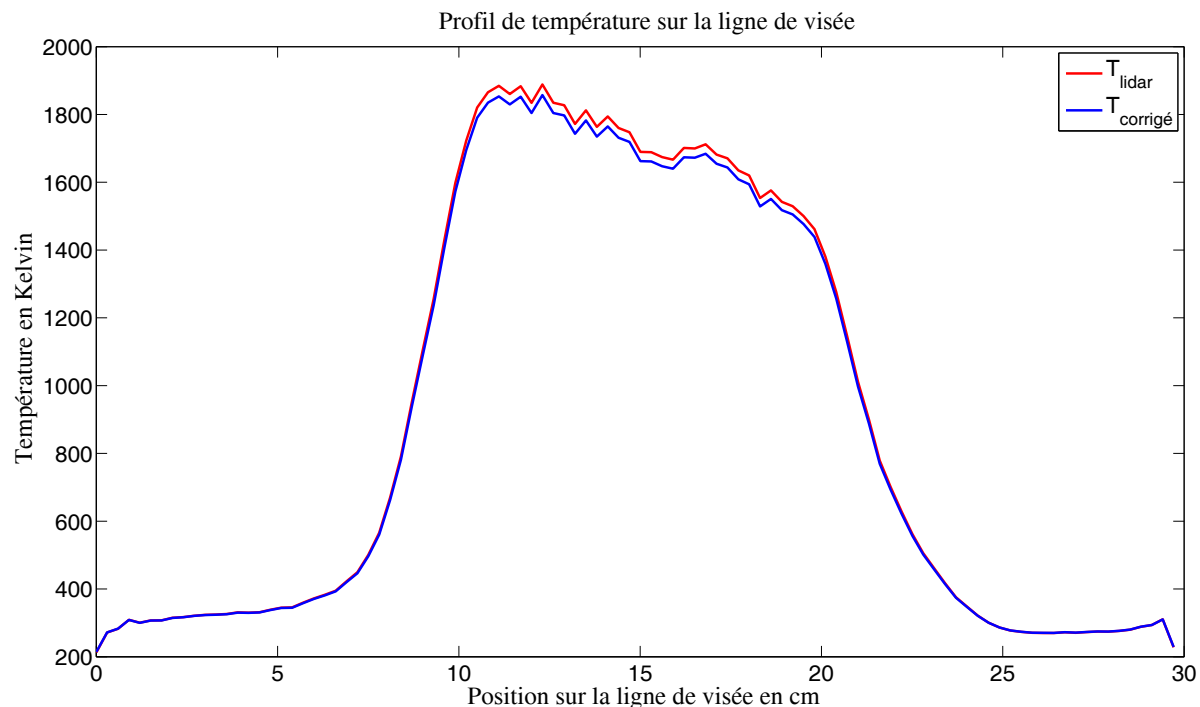


FIG. IV.31 – Profil de température sur la ligne de visée d'une flamme de méthane issue d'un brûleur rampe linéaire

2.3.3 Couplage émission/rétrodiffusion sur une turbine JetCat P100RX

La seconde expérience couplant une mesure en émission et une mesure en rétrodiffusion a été réalisée sur une turbine JetCat P100RX. Cette turbine est un turboréacteur de 10 Kg de poussée d'une longueur de 24,5 cm et de diamètre 10 cm. Son régime de fonctionnement est compris dans la gamme 42 000 *trs/min* au ralenti et 152 000 *trs/min* plein gaz, ce qui représente une température maximum des gaz à l'échappement d'environ 1000 K (données constructeurs). Cette turbine JetCat est un cas réel qui est le plus proche des systèmes de propulsion d'avions ou de missiles que nous puissions tester dans le cadre de notre laboratoire.

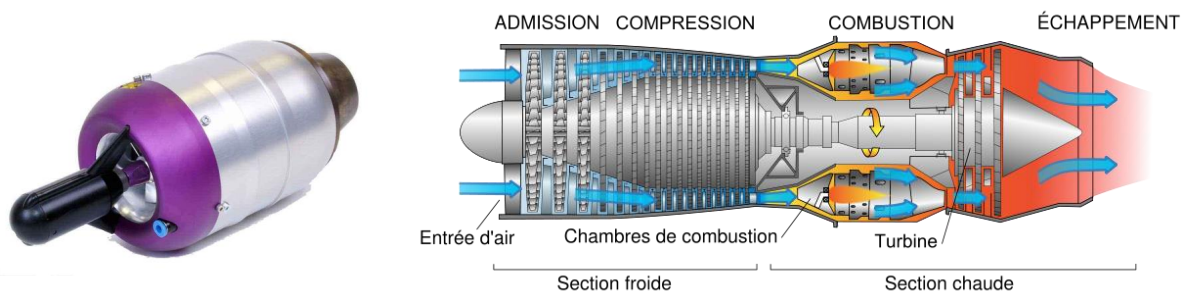


FIG. IV.32 – Photographie de la turbine JetCat P100RX et schéma de principe d'une turbine

Nous avons dans un tout premier temps effectué une phase de tests en émission et en rétrodiffusion seule sur la turbine dans le but d'effectuer les réglages optiques et de vérifier la faisabilité des mesures. Pour cette série de test en émission et en rétrodiffusion, nous faisons tourner la turbine à un régime légèrement plus rapide que le ralenti, c'est à dire environ 45 000 *tr/min*. À ce régime le thermocouple en sortie de tuyère indique une température de 800 K.

Résultat de la mesure seule en rétrodiffusion :

La figure IV.33 gauche correspond au signal mesuré par la caméra Streak dans le cas d'une mesure en rétrodiffusion seule sur la turbine JetCat. Comme dans le cas du brûleur rampe linéaire, nous observons l'effet des gaz chauds en sortie de turbine sur le signal. Nous avons une atténuation significative au niveau de la tuyère et des gaz chauds.

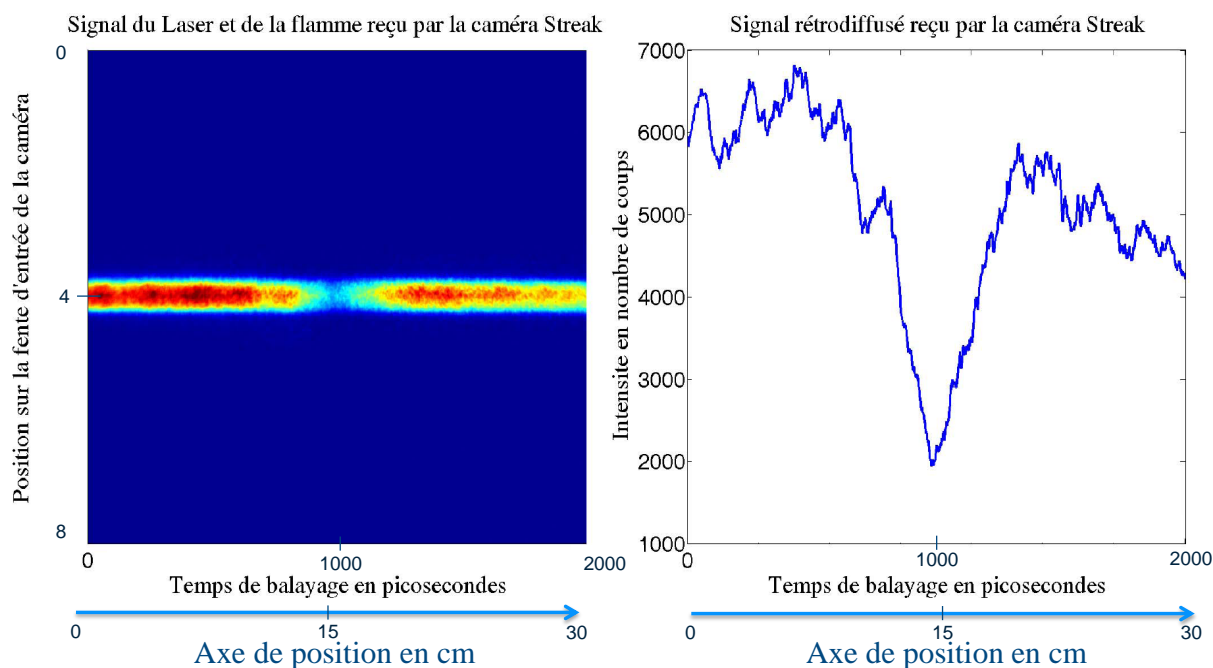


FIG. IV.33 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la turbine JetCat

La courbe de droite figure IV.33 représente le signal Rayleigh rétrodiffusé mesuré par la caméra Streak pour lequel le modèle présenté dans le paragraphe 2.2.1 retrouve une température maximale de 780 K (Figure IV.34).

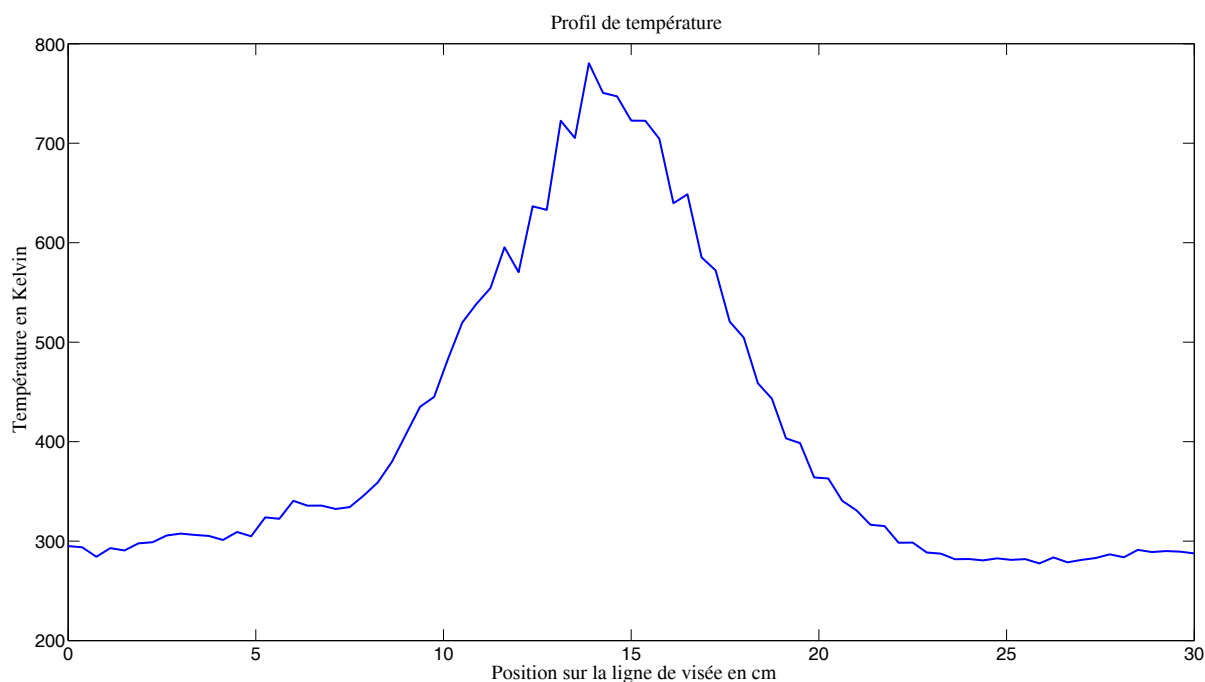


FIG. IV.34 – Profil de température retrouvé par inversion de la mesure en rétrodiffusion de la turbine JetCat

Résultat de la mesure seule en émission :

La figure IV.35 présente une partie du spectre mesuré de la turbine JetCat à gauche et un zoom sur la tête de bande du CO_2 en luminance à droite. Le spectre de la tête de bande du

CO_2 a été utilisé dans le programme d'inversion de données spectroscopiques pour obtenir la température maximale atteinte par les gaz chauds dans le flux en sortie de tuyère. Nous obtenons une température maximale de 812 K, ce qui nous donne un facteur de correction de 1,04 par rapport à la mesure en rétrodiffusion.

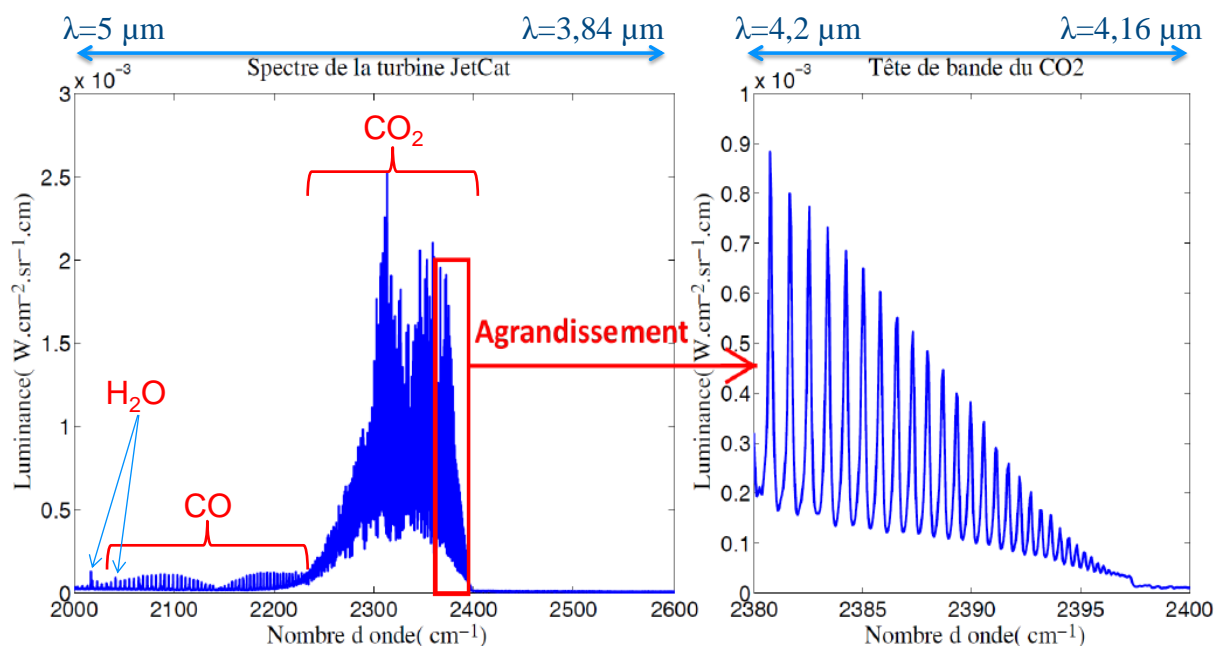


FIG. IV.35 – Spectre en luminance de la turbine Jetcat dans la gamme $2000 - 2600 \text{ cm}^{-1}$ avec un zoom sur la tête de bande du CO_2 à droite

Dans cette configuration, les mesures n'ont pas été réalisées simultanément mais l'une après l'autre. Ceci explique pourquoi on peut observer une différence de température entre les deux mesures d'un point de vue stabilité de la combustion et donc fonctionnement de la turbine. De plus la mesure en rétrodiffusion et la mesure en émission n'ont pas été réalisées sur la même ligne de visée. La mesure en émission a été réalisée à environ 3 cm de la tuyère alors que les mesures en rétrodiffusion ont été réalisées à environ 7 cm de la sortie tuyère. Nous n'avons pas pu faire les mesures en configuration colinéaire pour les premiers essais car la tuyère réfléchit une partie du laser ce qui éblouit la caméra Streak c'est pourquoi nous avons dû décaler le faisceau laser.

Dans le but de vérifier si la colinéarité est nécessaire entre émission et rétrodiffusion, nous avons visualisé la turbine avec l'aide d'une caméra Cedip infrarouge et d'un filtre centré sur la longueur d'onde d'émission-absorption du CO_2 à $4.26 \mu\text{m}$ afin d'observer l'écoulement des gaz chauds en sortie. Nous avons vérifié que l'écoulement est bien homogène en température et concentration de CO_2 .

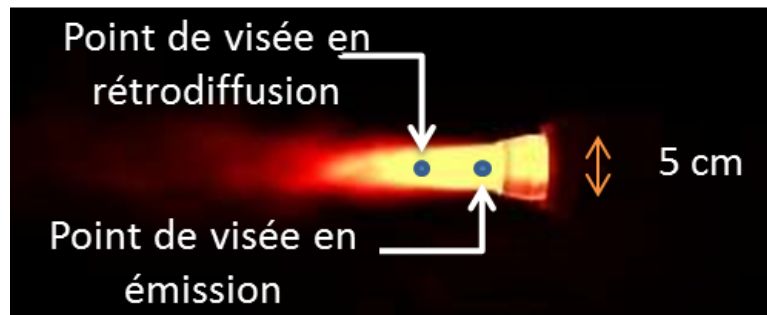


FIG. IV.36 – Image visualisée par la caméra Infrarouge Cedip Orion avec le filtre CO_2

La thermographie infrarouge réalisée sur la turbine a permis de montrer que le profil de température et de concentration en CO_2 était homogène en sortie de tuyère sur environ 15 cm avec un diamètre du jet d'environ 5 cm pour les dix premiers centimètres.

Mesure couplée en émission et en rétrodiffusion sur la turbine JetCat :

Nous avons pu réaligner la mesure en émission avec la mesure en rétrodiffusion sur la turbine. Après allumage de la turbine, on attend deux pour atteindre la stabilisation du système et de la température. L'afficheur de la turbine indique une vitesse de rotation de 43000 tr/min et une température mesurée au sein de l'écoulement au niveau du début de la tuyère de 800 K soit $527\text{ }^\circ\text{C}$. La figure IV.37 représente le lieu au sein de l'écoulement où a été réalisée la mesure. Le point rouge sur la photo symbolise le diamètre et le lieu de notre ligne de visée dans l'écoulement. La mesure réalisée en thermographie nous permet de dire que dans cette zone, température et concentration sont constants.



FIG. IV.37 – Photographie symbolisant le lieu de la ligne de visée de la mesure couplée

La figure IV.38 gauche correspond au signal mesuré par la caméra Streak dans le cas de la mesure en rétrodiffusion sur la turbine JetCat. Comme dans le cas précédent avec la mesure en rétrodiffusion seule sur la turbine, nous observons l'effet des gaz chauds en sortie de turbine sur le signal. Nous avons une atténuation significative au niveau de la tuyère et des gaz chauds.

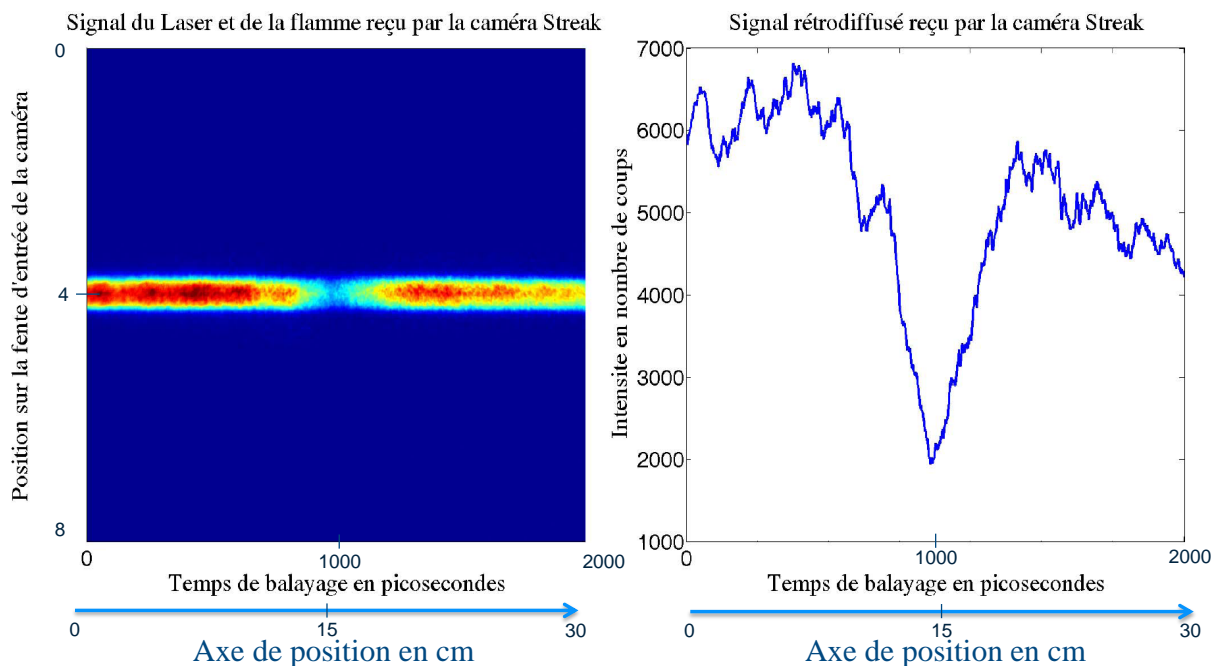


FIG. IV.38 – Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la turbine JetCat

La figure IV.38 représente le signal et l’image visualisé par la caméra Streak, nous avons fait plusieurs mesures en sortie de tuyère sans modifier le régime de fonctionnement. D’une part nous avons testé pour la répétabilité des mesures et d’autres part car pour certaines mesures on a l’impression de voir passer des particules dans le signal rétrodiffusé qui faussent la détection du signal Rayleigh rétrodiffusé. Ces particules doivent être en fait des imbrûlés de combustion du kérosène ou de l’huile de mélange.

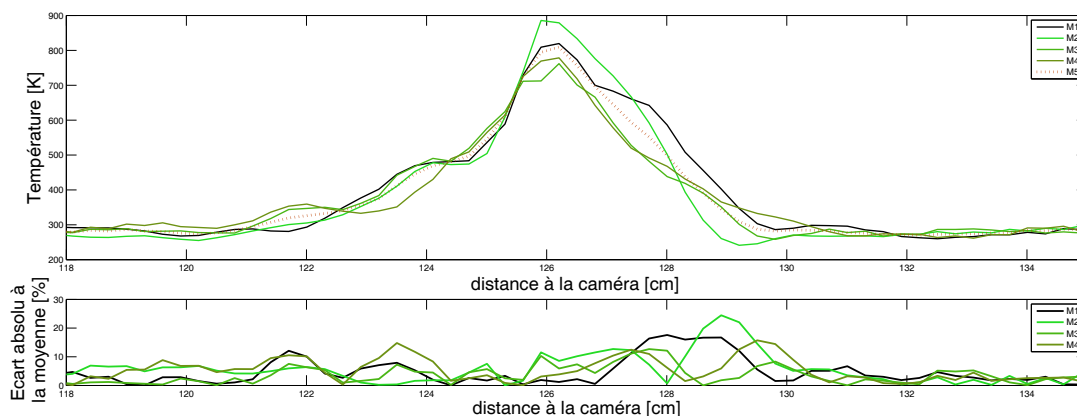


FIG. IV.39 – Comparaison de la température et du profil retrouvés par inversion en rétrodiffusion sur la turbine JetCat en fonction des différentes mesures

En moyennant les quatre différentes mesures, on obtient le profil de température suivant sur la Figure IV.40 par inversion de la mesure moyenne rétrodiffusée. On retrouve une température maximale à partir de la rétrodiffusion qui est de 810 K.

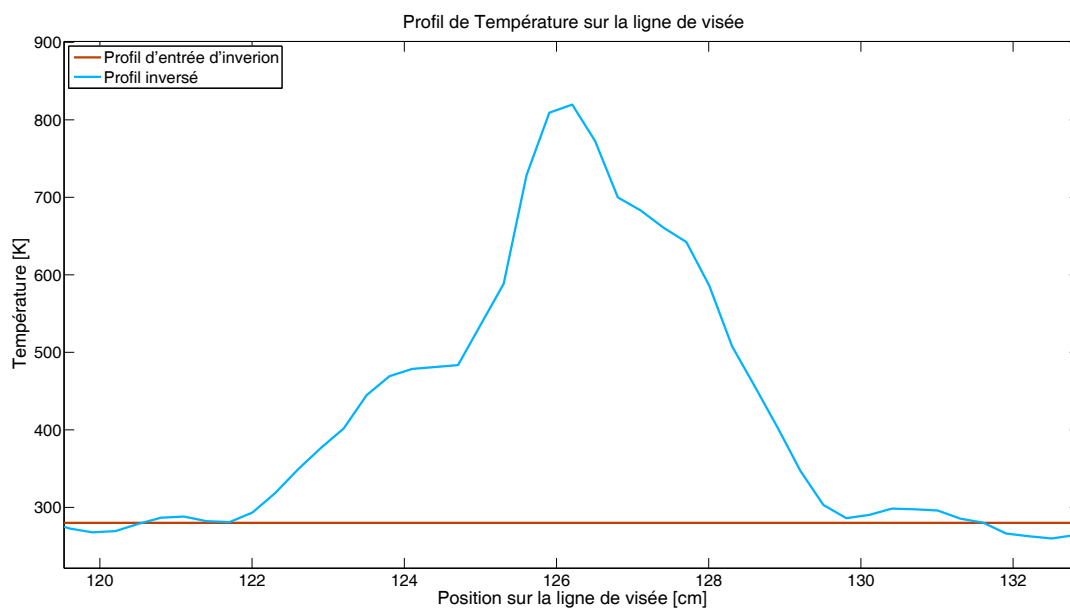


FIG. IV.40 – Profil de température de la turbine JetCat

La figure IV.41 présente une partie du spectre mesuré de la turbine JetCat à gauche et un zoom sur la tête de bande du CO_2 en luminance à droite. Le spectre de la tête de bande du CO_2 a été utilisé dans le programme d'inversion de données spectroscopiques pour obtenir la température maximale atteinte par les gaz chauds dans le flux en sortie de tuyère. Nous obtenons une température d'environ 820 K avec un profil que l'on considère plan, ce qui nous donne un facteur de correction de 1,01 par rapport à la mesure en rétrodiffusion ce qui est presque négligeable.

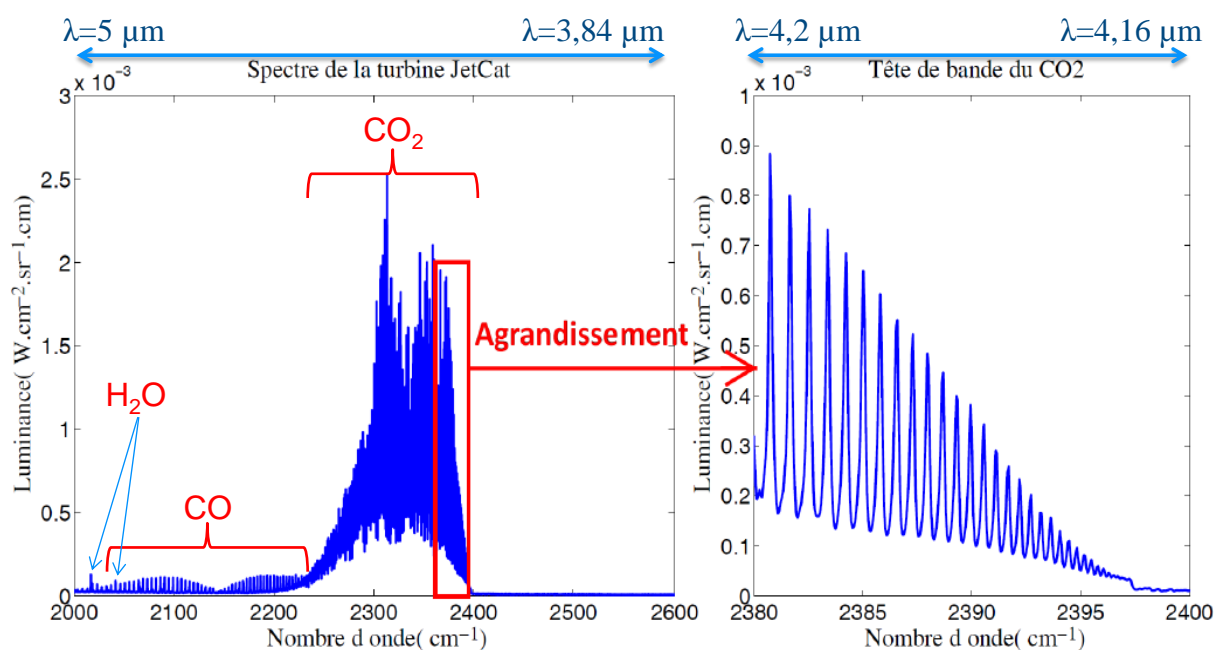


FIG. IV.41 – Spectre en luminance de la turbine Jetcat dans la gamme 2000 – 2600 cm^{-1} avec un zoom sur la tête de bande du CO_2 à droite

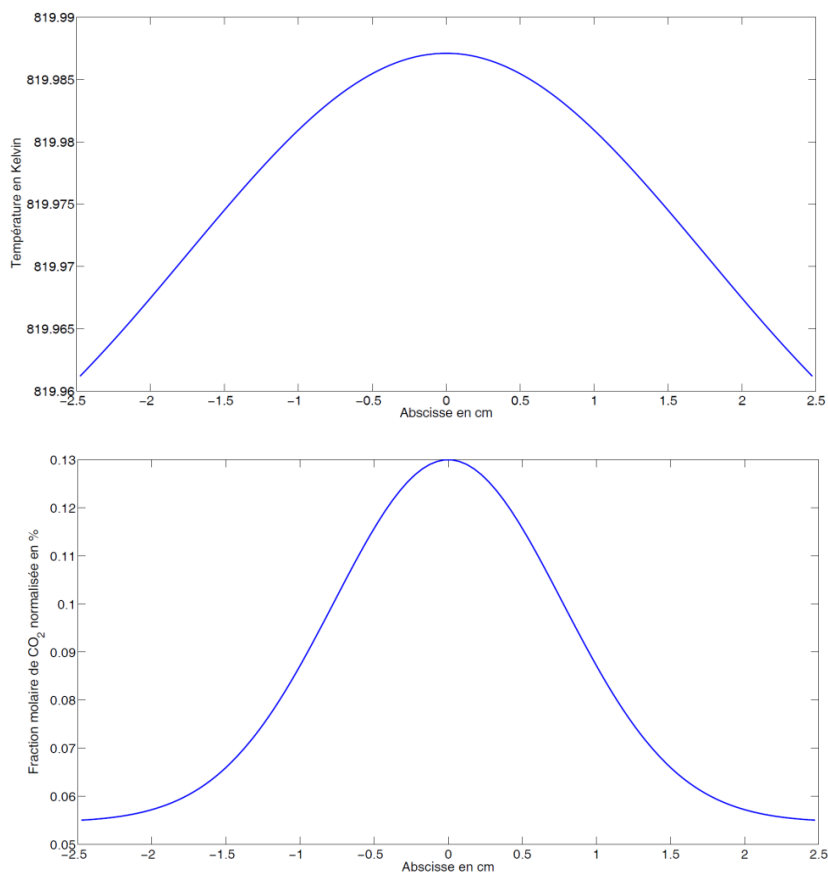


FIG. IV.42 – Profils de températures et de concentrations retrouvé par inversion des données spectroscopiques

On trouve un bon accord du point de vue de la température entre la mesure en émission, la mesure en rétrodiffusion et la mesure du thermocouple. Au vu de l'emplacement du thermocouple dans la tuyère celle-ci doit être sous estimée mais nous donne une bonne indication. Du point de vue de la concentration, le résultat de 13 % de CO_2 est assez proche de la réalité, on trouve en effet avec le logiciel libre Gaseq, une formation de 11,5% de CO_2 au niveau de la température adiabatique de flamme. La température adiabatique de flamme se situe au niveau du point le plus chaud de notre profil. On retrouve un profil de température en accord avec les résultats attendus avec une erreur de moins de 1% en température et 10% sur la concentration.

Méthode de mesure	Température maximale
Thermocouple de la turbine (valeur sous estimée)	800 K
Rétrodiffusion sans correction donne le profil relatif de température	810 K
Rétrodiffusion et émission Valeur retenue	820 K

TAB. IV.3 – Tableau récapitulatif des températures mesurées en fonction de la méthode de mesure

Remarque : Un thermocouple dans un écoulement libre donne une température inférieure à

la température réelle (cf chapitre I paragraphe 1.2).

La figure IV.43 représente le profil de température final retrouvé par le couplage de la mesure en émission et de la mesure en rétrodiffusion corrigé par la mesure en émission même si le facteur de correction est ici quasiment négligeable.

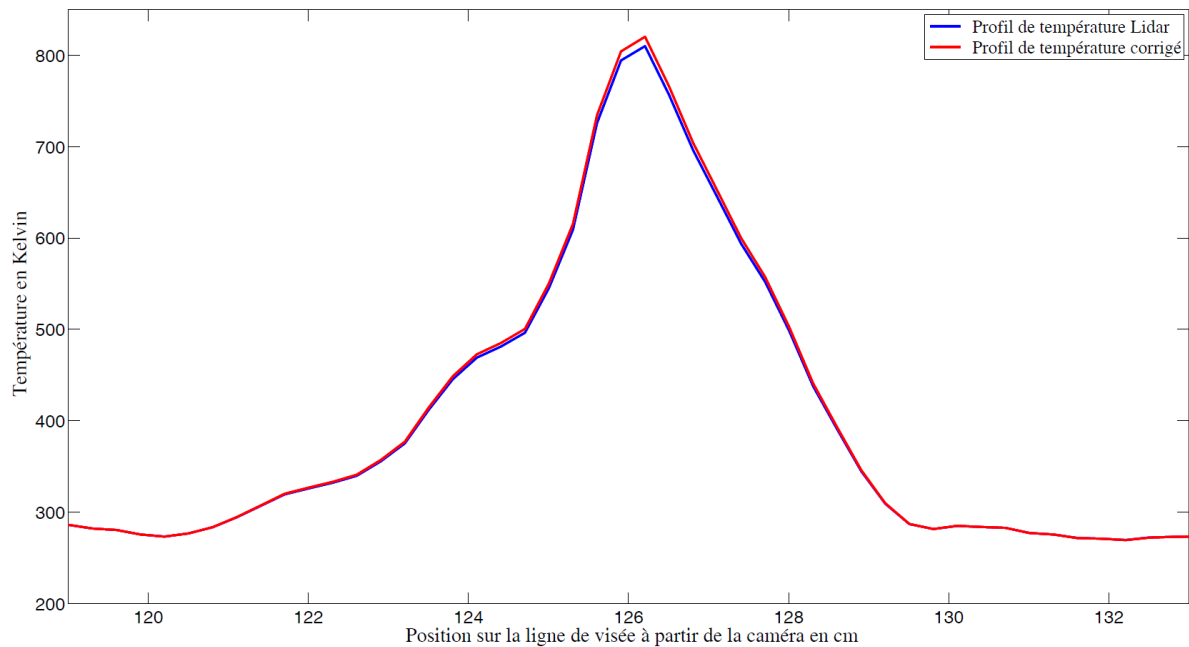


FIG. IV.43 – Profil de température corrigé sur la ligne de visée d'une turbine JetCat

La température maximale est donnée par la mesure en émission et se situe autour de 820 K, le profil est lui donné par la mesure en rétrodiffusion.

Conclusions et perspectives

Les travaux présentés dans ce mémoire, nous ont permis de développer une méthode de mesure sans contact innovante couplant une mesure en émission et une mesure en rétrodiffusion. Cette nouvelle méthode nous donne accès à la connaissance des profils de température et de concentration le long d'une ligne de visée dans un écoulement. A partir d'une mesure directe de rayonnement de notre système d'étude (mesure en émission) qui est très sensible à la température (évolution exponentielle), on peut remonter aux profils de température et concentration par inversion de la mesure en minimisant l'écart entre le spectre mesuré et le spectre calculé par le modèle.

Cette mesure a été couplée à une mesure Rayleigh du signal rétrodiffusé par un système lidar qui elle, est plus sensible à la concentration et nous apporte une information spatiale sur le signal. Cette information spatiale nous permet d'apporter d'avantages de paramètres initiaux dans notre programme d'inversion pour restreindre la solution vers une solution qui sera unique. Ce programme a comme entrée les mesures en rétrodiffusion et en spectres d'émission ainsi que les données thermo-optiques sur les gaz (CO_2 , H_2O) dont les spectres sont mesurés. Une partie importante de l'étude a été de faire une banque de données thermo-optiques.

Ce travail de modélisation de spectre est nécessaire à notre programme d'inversion car il peut exister des divergences entre les banques de données et les mesures réalisées. Le spectre d'une molécule est caractérisé par sa position spectrale, l'intensité des raies, sa largeur de raie qui forme les paramètres spectroscopiques d'une molécule. Nous nous sommes dans un premier temps intéressés aux spectres de la molécule H_2O à hautes températures et à hautes pressions dans une gamme spectrale qui ne présente pas de recouvrement avec une autre molécule. Pour l'étude de hautes températures, nous avons utilisé la base de données HITEMP qui est donnée pour être valide à la température de 1000 K à pression atmosphérique pour une liste de 47 molécules (elle est tabulée à la température de référence de 296 K). Pour l'étude de plus hautes températures, il convient de se servir de la base de données HITEMP mais aussi des valeurs des fonctions de partition jusqu'à 6000 K que l'on peut trouver dans les travaux de Gregory J. Harris pour modéliser les spectres de la vapeur d'eau. Les intensités des raies mesurées sont très proches de celles calculées à l'aide des fonctions de partition de Gregory J. Harris ce qui valide le modèle aux hautes températures.

Le point limitant des bases de données publiées est surtout lié aux hautes pressions qui sont imparfaitement modélisées hors des valeurs à pression atmosphérique. Nous avons fait porter l'effort sur les données pour la vapeur d'eau afin de pouvoir étudier des flammes hydrogène/air. La connaissance de tous ses paramètres spectroscopiques nous permet de modéliser l'émission d'une colonne de vapeur d'eau en son extrémité en fonction de la pression, la température et de sa concentration. Afin de valider les spectres de la vapeur d'eau à hautes pressions et hautes

températures, nous avons réalisé des mesures sur une cellule à déflagration où l'on considère la réaction de combustion adiabatique isochore. En réalisant des mélanges $H_2/O_2/N_2$, nous mesurons le rayonnement émis par la vapeur en maîtrisant la composition initiale de charge (mélange en pression partielle). La mesure de la pression pendant la déflagration et la maîtrise de la charge nous permettent de calculer la température adiabatique de flamme et la formation de vapeur d'eau. Nous connaissons donc tous les paramètres thermochimiques de notre combustion. La connaissance de ses paramètres permet de comparer les spectres mesurés aux spectres modélisés par HITEMP. La mesure de ses spectres est réalisée à l'aide d'un spectromètre à réseau de grand focale offrant une très grande résolution (environ $0,3\text{ cm}^{-1}$) couplé en sortie à une caméra Princeton refroidie à l'azote liquide ce qui réduit le niveau de bruit de mesure. La mesure de ses spectres a été réalisée en fonction de la température et de la pression en fin de combustion. Les résultats sont répétables, ils ont été réalisés dans la gamme de température $2300 - 3000\text{ K}$ et pour des pressions allant de $1,3$ à 20 bars . La concordance entre les mesures et le modèle est très bonne pour la gamme de température observée mais présente des divergences lorsque la pression dépasse 10 bars . Nous utilisons donc nos résultats sur les spectres de la vapeur d'eau pour modéliser des systèmes réels où la pression est élevée (type moteur HCCI et moteur à détonation). La méconnaissance des phénomènes liés à la pression sur les spectres de la vapeur d'eau peut en effet engendrer une erreur importante sur le programme d'inversion.

Le programme d'inversion est basé sur un algorithme de minimisation entre le spectre mesuré et celui calculé qui utilise les gradients de la luminance en fonction des paramètres de température et de concentration. Le spectre retrouvé est ensuite comparé à celui mesuré, ce fonctionnement implique que si les paramètres spectroscopiques sont mal définis la convergence ne peut avoir lieu. Pour ce faire, on utilise la méthode de l'état adjoint par le calcul de dérivées exactes ce qui nous permet d'obtenir une stabilité du code de calcul ainsi qu'un retour sur la sensibilité du code en fonction des paramètres. Afin de restreindre le problème mathématique, nous devons définir des profils initiaux de température et de concentration pour réduire les paramètres identifiables à 7. Par exemple pour un profil initial gaussien, nous connaissons en sortie la valeur à l'infini, le delta en le maximum et le minimum, la largeur de profil et la position pour la concentration et la température comme la position ne change pas pour les différents profils nous déterminons bien 7 paramètres. La mesure des spectres en émission ne nous permet pas de déduire les paramètres de température et de concentration en chaque point spatiale mais plutôt une valeur moyenne de long de la ligne de visée. C'est pourquoi nous avons couplé la mesure en émission avec une mesure lidar qui est une mesure résolue spatialement. La méthode que nous avons choisie est une technique qui est utilisée pour l'étude des molécules de différentes couches de l'atmosphère. Cette mesure est donc réalisée sur de grandes distances qui par intégration du signal sur les épaisses couches de gaz permet de visualiser un signal rétrodiffusé. Nous avons appliqué cette méthode à l'étude de couche de gaz à courtes distances. Dans un premier temps, nous avons donc modélisé le signal rétrodiffusé en fonction de la distance d'observation, de la puissance du laser d'excitation, des courbes de réponse des détecteurs et des paramètres géométriques tels que l'angle solide. Ces calculs nous ont permis de définir le matériel d'excitation et le matériel de détection. Notre choix s'est orienté vers un laser accordable en longueur d'onde ($0,4$ à $2,3\ \mu\text{m}$) présentant des impulsions de trente picosecondes pouvant atteindre 1 mJ en énergie ce qui représente une puissance énorme de l'ordre du gigawatt mais nécessaire pour obtenir un signal rétrodiffusé de quelques centaines de photons. Pour le matériel de détection, nous avons choisi une caméra à balayage de fente qui présente un bruit de mesure très faible de l'ordre de 2 photoélectrons par image dans le but de pouvoir visualiser le signal rétrodiffusé qui est très faible en photoélectrons. De plus le balayage effectué par la

caméra nous donne accès au temps où le photon a été émis et donc à une résolution spatiale de la mesure de 5 mm.

Avant de coupler le système lidar à courtes distances à la mesure en émission, nous avons réalisé une série de test en laboratoire sur différents type de flammes simulant un cas réel simple. Nous voulions en premier lieu tester la méthode de mesure lidar en mode rétrodiffusion élastique et en mode dial. Notre idée initiale était de faire une mesure Lidar en mode dial. Le mode dial nous permet de nous affranchir de nombreux paramètres pour ne laisser passer que le signal correspondant à la concentration de la molécule étudiée. Dans le mode dial, on peut à l'aide de notre laser accordable en longueur d'onde sélectionner une longueur d'onde d'excitation de la molécule et une longueur d'onde où la molécule étudiée ne réagit pas. En soustrayant les deux signaux, on peut déterminer la concentration de l'espèce étudiée en éliminant les diffusions éventuelles de particules dans le jet. Mais la technique dial nécessite que la couche de gaz soit assez épaisse pour présenter une absorption moléculaire importante (Par exemple un jet de 30 cm d'épaisseur). C'est pourquoi nous n'avons pu faire ce test en laboratoire et nous sommes orientés vers le comptage de photons Rayleigh rétrodiffusés à une seule longueur d'onde. Nous avons sélectionné une longueur d'onde pour le laser qui fournit le plus d'énergie (environ 1 mJ) et avons analysé les signaux sur différents cas tels que des brûleurs H_2/air verticale ou incliné et sur un brûleur rampe linéaire de 15 cm de long. Les résultats obtenus ont montré une bonne concordance avec les modèles de calcul de température de combustion comme Gaseq. Afin de valider cette nouvelle méthode de mesure couplant une mesure passive sans contact (mesure en émission) et une mesure active sans contact résolue spatialement (mesure lidar), nous avons réalisé un montage optique simple qui permet de passer d'une mesure à l'autre. Nous avons testé un cas simple de laboratoire représenté par un brûleur rampe linéaire et une mesure sur une turbine Jetcat représentant un cas réel. Le résultat sur le brûleur rampe a montré une bonne concordance avec les mesures et les calculs réalisés sur ce type de flamme de méthane. La mesure en émission étant plus sensible que celle lidar, nous pouvons corriger le profil résolu spatialement par la température maximale retrouvé par le programme d'inversion. Voici deux types caractéristiques des résultats obtenus :

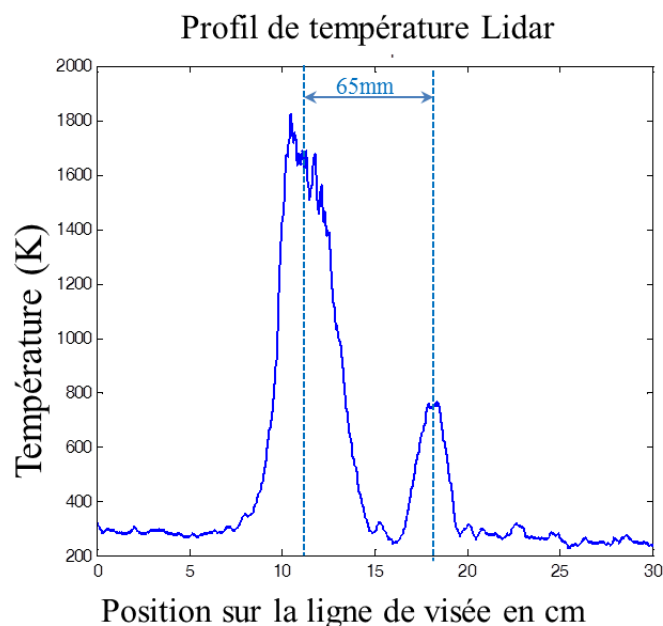


FIG. IV.44 – Mesure lidar d'un profil bilobé d'une flamme de méthane inclinée

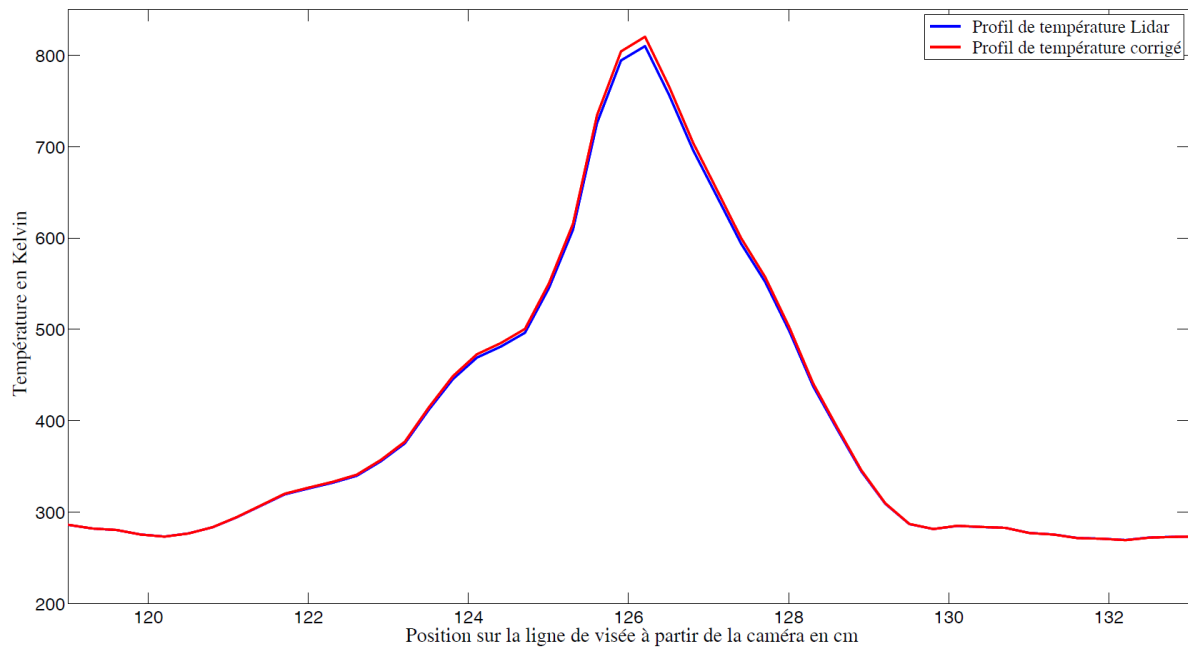


FIG. IV.45 – Profil de température corrigé sur la ligne de visée d’une turbine JetCat

Méthode de mesure	Température maximale
Thermocouple de la turbine (valeur sous estimée)	800 K
Rétrodiffusion sans correction donne le profil relatif de température	810 K
Rétrodiffusion et émission Valeur retenue	820 K

TAB. IV.4 – Tableau récapitulatif des températures mesurées en fonction de la méthode de mesure

Notre méthode innovante a montré des résultats encourageant dans les conditions de laboratoire, nous devons maintenant la tester dans des conditions réelles de terrain pour juger de la robustesse de la méthode. De plus, nous n’avons pu mettre au point un protocole de mesure dans le cas d’une méthode de mesure dial du fait du peu d’absorption que présente la molécule d’eau. En réalisant le même travail de spectroscopie sur une autre molécule absorbant beaucoup plus, nous pourrions tester le mode dial pour comparer les informations retrouvés sur les profils de température et concentration par rapport à la méthode des signaux Rayleigh rétrodiffusés. Par contre l’avantage de l’étude de la rétrodiffusion Rayleigh à une seule longueur d’onde est que le système est plus facilement industrialisable en remplaçant par exemple le laser accordable en fréquence (constitué d’un laser de pompe illuminant un oscillateur paramétrique accordable) par un laser Yag beaucoup moins encombrant.

Le couplage entre une méthode de mesure passive (mesure en émission) et une méthode de mesure active (mesure en rétrodiffusion) nous a permis de déterminer avec précision la température maximale d’un système et nous donne accès à son profil avec une résolution spatiale de

5 mm avec le laser O.P.O. La mise au point de la méthode et l'achat des différents matériels en font une méthode de mesure avec un coût élevé que l'on utilise la méthode Dial ou à une seule longueur d'onde.

La méthode Dial n'est applicable que pour des flammes épaisses ou sous fortes pressions. Elle permettra de déterminer avec précision la concentration d'une espèce en présence au sein de la combustion en choisissant une longueur d'onde absorbée et une deuxième non absorbée de la molécule étudiée. Cette méthode n'a pas pu être appliquée dans le cadre de ma thèse à cause de l'impossibilité de mettre ce type de flamme dans le laboratoire.

La méthode Lidar à une longueur d'onde d'excitation est critiquable du point de vue de la méconnaissance de la somme des sections efficaces du milieu rétrodiffusant étudié. Il faudrait étudier les sections efficaces au sein de la combustion pour corriger ce point. L'émission étant exponentiellement sensible à la température alors que la rétrodiffusion est sensible linéairement, nous permet de corriger la section efficace mesurée par le coefficient α par :

$$\alpha = \frac{T_{\max,mission}}{T_{\max,Lidar}} = \frac{\sigma(measure)}{\sigma(air)} \quad (IV.23)$$

En pratique la correction entre la température retrouvée par émission et celle retrouvée par rétrodiffusion est souvent faible, inférieure à 20 % dans le cadre des flammes étudiées à ce jour. On se permet cette correction en émettant l'hypothèse que les concentrations relatives des gaz varient de façon affine le long de la ligne de visée. En pratique, nous avons une précision de quelques % vers 2000 K sur les hautes températures du profil mesuré et un risque d'imprécision sur les basses températures.

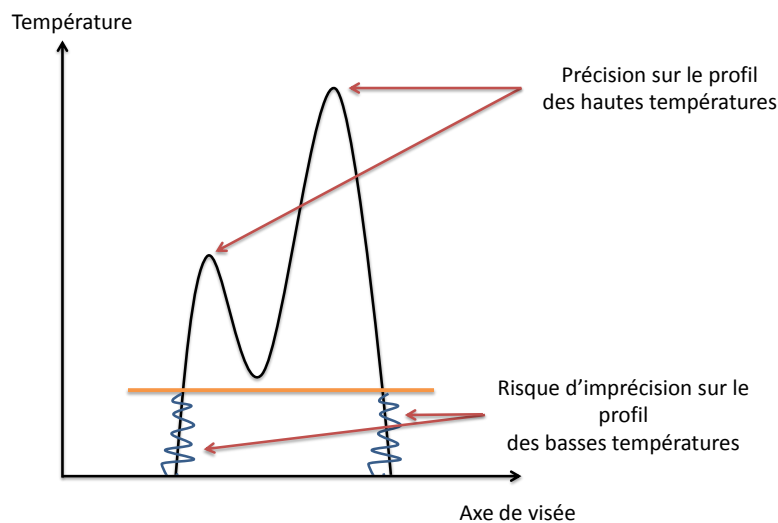


FIG. IV.46 – Précision du profil des mesures

Notre prochaine étape consistera à coupler l'inversion des deux mesures en introduisant dans la mesure en rétrodiffusion un profil inconnu des concentrations des gaz. Dans le programme d'inversion nous rajouterons sur les mesures en émission une décomposition en polynômes de Hermite. Ce développement a déjà été amorcé.

Perspectives :

- Etude de la réaction sodium/eau en collaboration avec Julien-Pierre OFFRET doctorant au laboratoire pour les réacteurs nucléaires de la quatrième génération (CEA SACLAY et CADARACHE),
- Moteurs cycliques à combustion interne avec Pr. GUIBERT(Institut Jean Le Rond d'Alembert),
- Essais chez MBDA sur un propulseur hypersonique,
- Couplage des mesures en émissions et en rétrodiffusion avec une mesure de paroi par pyrométrie impulsionnelle avec Lorris NAVELLO doctorant au laboratoire (connaître la température de paroi donne des conditions aux limites du problème).

Bibliographie

- [1] Michael J. MORAN, Howard N. SHAPIRO, Daisie D. BOETTNER et Margaret BAILEY : Fundamentals of Engineering Thermodynamics. John Wiley & Sons, décembre 2010.
- [2] Jean-Louis MAGNET, Georges Descombes : Moteurs non Conventionnels. Ed. Techniques Ingénieur.
- [3] Jérémy LEBEDINSKY Yannick BAILLY Philippe HERVE DAVID RAMEL, Robin CONSEIL : Determination of hot gas temperature profiles by ir spectroscopy. 15th International Symposium of Flow Visualization, Minsk, Bélarussie, June 25-28 2012.
- [4] JOHANA VALLY : Etude du spectre d'émission infrarouge des gaz de combustion : application à la mesure de température de gaz et de concentration de CO₂. Paris 10, janvier 1999.
- [5] P HERVE : Procédé et système de détermination de la distribution de la concentration d'un composant d'un gaz d'échappement dans une chambre de combustion, numéro 09 52995, 5 Mai 2009.
- [6] D. LUPANT, B. PESENTI et P. LYBAERT : Influence of probe sampling on reacting species measurement in diluted combustion. Experimental Thermal and Fluid Science, 34(5):516–522, juillet 2010.
- [7] Robin E. BENTLEY : The use of elemental thermocouples in high-temperature precision thermometry. Measurement, 23(1):35–46, janvier 1998.
- [8] Robert B. BARAT, John P. LONGWELL, Adel F. SAROFIM, Stephen P. SMITH et Ezra BARZIV : Laser rayleigh scattering for flame thermometry in a toroidal jet stirred combustor. Applied Optics, 30(21):3003–3010, juillet 1991.
- [9] Glenn HERB et Charles FENDROCK : Systeme de thermometre a ultrasons, mai 2001.
- [10] L.C LYNNWOTH et E.H CARNEVALE : Ultrasonic thermometry using pulse techniques, temperature : its measurement and control in science and industry. Instrument Society of America, pages 715–735.
- [11] Lo AMATH : Diffusion raman spontanée pour la combustion turbulente et les plasmas. Thèse de doctorat, Rouen, juillet 2012.
- [12] Daniel C HARRIS et Bertolucci : Symmetry and spectroscopy : an introduction to vibrational and electronic spectroscopy. Dover Publications, New York, 1989.
- [13] Groupement scientifique moteurs COLLOQUE : La combustion dans les moteurs d'automobile : simulation, validation, les moteurs de synthèse. Editions TECHNIP, janvier 1991.

- [14] P. CHELIN, C. CAMY-PEYRET, V. PINA, P. ALKHOURY et D. DAVIDENKO : Emission spectroscopy of hot water vapor from h_2/air deflagrative combustion in a closed cylinder. Combustion and Flame, 140(4):319–331, mars 2005.
- [15] K.H TRAN, M KÜHNI, C MORIN et P GUIBERT : Anisole laser induced fluorescence (LIF) for imaging local heterogeneities in temperature in a rapid combustion machine. Proceeding of the European Combustion Meeting, 2011.
- [16] S. W. GREENWOOD : The effect of comparison source reflectance on gas temperature measurement by kurlbaum's method and line reversal methods. Journal of Physics E : Scientific Instruments, 6(8):693, août 1973.
- [17] FLAMANT Pierre H. : Lidars atmosphériques et météorologiques : Principes fondamentaux = Atmospheric and meteorological lidars : Fundamental principles. Techniques de l'ingénieur, Paris, FRANCE (1953) (Revue), 2008, vol. E7, noE4310, [Note(s) : E4310.1-E4310.16] (1/4 p.).
- [18] Nicolas CEZARD : Etude de faisabilité d'un lidar Rayleigh-Mie pour des mesures à courte portée de la vitesse de l'air, de sa température et de sa densité. Palaiseau, Ecole polytechnique, janvier 2008.
- [19] M. CHARPENEL : Mesures instantanées par pyrométrie infrarouge de températures de gaz de combustion. application à la turbulence thermique. Revue de Physique Appliquée, 14(3):491–508, 1979.
- [20] Chiu-Lin YAO, San-Liang LEE, Yung-Jr HUNG, Yen-Ting PAN, Jing-Lyang JENG et Hsiu-Che WANG : Novel tunable laser sources with $1.5 \mu m$ and $1.57 \mu m$ cascaded DFB reflectors for in situ gas monitoring applications. Sensors and Actuators B : Chemical, 140(2):371–377, juillet 2009.
- [21] Scott A. GEARHART et Michael E. THOMAS : Evaluation of a temperature remote sensing technique. Applied Optics, 27(17):3630–3637, septembre 1988.
- [22] H. TRAN, C. BOULET, S. STEFANI, M. SNELS et G. PICCIONI : Measurements and modelling of high pressure pure CO₂ spectra from 750 to 8500 cm^{-1} . central and wing regions of the allowed vibrational bands. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 112(6):925–936, avril 2011.
- [23] Stephen C. BATES, Jr. MORRISON et Peter R. SOLOMON : Infrared monitoring of combustion. volume 1434, pages 28–38, 1991.
- [24] Dominique FOURNET : Etude des propriétés thermo-optiques des milieux polyphasiques : application aux jets de propulseurs. Paris 10, janvier 1997.
- [25] Viviane BOUYER, Isabelle DARBORD, Philippe HERVÉ, Gérard BAUDIN, Christian LE GALLIC, François CLÉMENT et Guy CHAVENT : Shock-to-detonation transition of nitromethane : Time-resolved emission spectroscopy measurements. Combustion and Flame, 144:139–150, janvier 2006.
- [26] Peter R. GRIFFITHS, James A. De HASETH et James D. WINEFORDNER : Fourier Transform Infrared Spectrometry. Wiley-Blackwell (an imprint of John Wiley & Sons Ltd), 2nd revised edition édition, 2007.
- [27] Gerhard HERZBERG : Molecular spectra and molecule structure. i. diatomic molecules. The Journal of Physical Chemistry, 44(7):954–954, juillet 1940.
- [28] Marie SIMECKOVA, David JACQUEMART, Laurence S. ROTHMAN, Robert R. GAMACHE et Aaron GOLDMAN : Einstein a-coefficients and statistical weights for molecular absorption transitions in the HITRAN database. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 98(1):130–155, mars 2006.

- [29] G. BRUHAT : Cours de physique générale. Masson. 6 édition, 1992.
- [30] Olivier JACQUOT : Etude du profil de température et de concentration dans une flamme par spectroscopie infrarouge. Paris 10, janvier 1997.
- [31] Michael F. MODEST : Chapter 22 - inverse radiative heat transfer. In Radiative Heat Transfer (Second Edition), pages 729–742. Academic Press, Burlington, 2003.
- [32] Roland BORGHI et Michel DESTRIAU : La combustion et les flammes. Editions OPHRYS, janvier 1995.
- [33] C. B. LUDWIG : Measurements of the curves-of-growth of hot water vapor. Applied Optics, 10(5):1057–1073, mai 1971.
- [34] Robin CONSEIL : Spectrométrie infrarouge de gaz de combustion. Thèse de doctorat, Franche-Comté, 2011.
- [35] Christian HILL, Iouli E. GORDON, Laurence S. ROTHMAN et Jonathan TENNYSON : A new relational database structure and online interface for the HITRAN database. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 130:51–61, novembre 2013.
- [36] L.S. ROTHMAN, I.E. GORDON, A. BARBE, D.Chris BENNER, P.F. BERNATH, M. BIRK, V. BOUDON, L.R. BROWN, A. CAMPARGUE, J.-P. CHAMPION, K. CHANCE, L.H. COUDERT, V. DANA, V.M. DEVI, S. FALLY, J.-M. FLAUD, R.R. GAMACHE, A. GOLDMAN, D. JACQUEMART, I. KLEINER, N. LACOME, W.J. LAFFERTY, J.-Y. MANDIN, S.T. MASSIE, S.N. MIKHAILENKO, C.E. MILLER, N. MOAZZEN-AHMADI, O.V. NAUMENKO, A.V. NIKITIN, J. ORPHAL, V.I. PEREVALOV, A. PERRIN, A. PREDOI-CROSS, C.P. RINSLAND, M. ROTGER, M. SIMECKOVA, M.A.H. SMITH, K. SUNG, S.A. TASHKUN, J. TENNYSON, R.A. TOTH, A.C. VANDAELE et J. VANDER AUWERA : The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 110:533–572, juin 2009.
- [37] L.S. ROTHMAN, I.E. GORDON, R.J. BARBER, H. DOTHE, R.R. GAMACHE, A. GOLDMAN, V.I. PEREVALOV, S.A. TASHKUN et J. TENNYSON : HITEMP, the high-temperature molecular spectroscopic database. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 111(15):2139–2150, octobre 2010.
- [38] Gregory J. HARRIS, Serena VITI, Hamse Y. MUSSA et Jonathan TENNYSON : Calculated high-temperature partition function and related thermodynamic data for H_2O_{16} . The Journal of Chemical Physics, 109(17):7197, 1998.
- [39] E.E. WHITING : An empirical approximation to the voigt profile. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 8(6):1379–1384, juin 1968.
- [40] Dennis KILLINGER : HITRAN-PC user manual. 2009.
- [41] P. CHELIN, V. PINA et P. HERVÉ : Emission line broadening in combustion products. static and dynamic studies of gas mixtures. Le Journal de Physique IV, 10(PR11):Pr11–197–Pr11–204, novembre 2000.
- [42] A. VALENTIN : Etude d'un spectromètre à réseau de grande résolution et de haute précision. Application à l'étude de l'intensité et de la largeur des raies de vibration-rotation des molécules et à la détermination des constantes spectroscopiques. Thèse de doctorat, Pierre et Marie Curie, 1977.
- [43] Patrick BOUCHAREINE : Spectrométrie optique. Techniques de l'ingénieur Métrologie optique et photonique, base documentaire : TIB143DUO.(ref. article : r6310), 2014. fre.
- [44] Spectrometer systems, notice sopra, 1994.

- [45] MARTIN W.C., FUHR J.R., KELLEHER D.E., MUSGROVE A., PODOBEDOVA L., READER J., et SALOMAN E.B., SANSONETTI C.J., WIESE W.L., MOHR P.J., AND OLSEN K. : NIST atomic spectra database (version 2.0), 2002.
- [46] Gallet P. PAPINI F. : Thermographie infrarouge, Image et mesure. Masson paris édition, 1994.
- [47] François Clément Philippe Hervé PHILIPPE AL KHOURY, Guy Chavent et Olivier LEGRAS. : Etude numérique du comportement de l'équation de transfert radiatif des milieux semitransparents. inversion de données spectroscopiques pour le CO_2 , 2003.
- [48] Max D. GUNZBURGER : Perspectives in Flow Control and Optimization. SIAM, 2003.
- [49] Philippe Al KHOURY, Guy CHAVENT, François CLÉMENT, Philippe HERVÉ et Olivier LEGRAS : Etude numérique du comportement de l'équation de transfert radiatif des milieux semi-transparentes. inversion de données spectroscopiques pour le CO_2 . Rapport technique RR INRIA 4693, 2003.
- [50] A. K. GRIFFITH et N. K. NICHOLS : Adjoint methods in data assimilation for estimating model error. Flow, Turbulence and Combustion, 65(3-4):469–488, décembre 2000.
- [51] Philippe Al KHOURY. : Algorithmes géométriques de résolution des moindres carrés non linéaires et problèmes inverses en spectroscopie des flammes. Thèse de doctorat, Paris X, 2005.
- [52] Guy CHAVENT : Nonlinear Least Squares for Inverse Problems : Theoretical Foundations and Step-by-Step Guide for Applications. Springer, mars 2010.
- [53] J. FOCHESSATTO, P. RISTORI, P. FLAMANT, M.E. MACHADO, U. SINGH et E. QUEL : Backscatter LIDAR signal simulation applied to spacecraft LIDAR instrument design. Advances in Space Research, 34(10):2227–2231, 2004.
- [54] Xiaomei LU, Yuesong JIANG, Xuguo ZHANG, Xuan WANG et Nicola SPINELLI : Two-wavelength lidar inversion algorithm for determination of aerosol extinction-to-backscatter ratio and its application to CALIPSO lidar measurements. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 112(2):320–328, janvier 2011.
- [55] H. WILLE, M. RODRIGUEZ, J. KASPIAN, D. MONDELAIN, J. YU, A. MYSYROWICZ, R. SAUERBREY, J. P. WOLF et L. WÖSTE : Teramobile : A mobile femtosecond-terawatt laser and detection system. The European Physical Journal - Applied Physics, 20(03):183–190, 2002.
- [56] Vladimir A. KOVALEV et William E. EICHINGER : Elastic Lidar : Theory, Practice, and Analysis Methods. Wiley, avril 2004.
- [57] Ulla WANDINGER : Introduction to lidar. In Dr Claus WEITKAMP, éditeur : Lidar, numéro 102 de Springer Series in Optical Sciences, pages 1–18. Springer New York, janvier 2005.
- [58] Ioan BALIN et Hubert Van den BERGH : Measurement and analysis of aerosols, cirrus-contrails, water vapor and temperature in the upper troposphere with the jungfrau-joch LIDAR system. juin 2005.
- [59] Wim Ubachs MAARTEN SNEEP : Direct measurement of the rayleigh scattering cross section in various gases. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 92 (2005) 293-310, accepted 30 July 2004.
- [60] Hans NAUS et Wim UBACHS : Experimental verification of rayleigh scattering cross sections. OPTICS LETTERS, Vol. 25, No. 5, March 1, 2000.

- [61] Rikard HEIMSTEN : Construction and Testing of a Picosecond LIDAR System. Lund University, 2004.
- [62] Luca FIORANI, Francesco COLAO, Antonio PALUCCI, Davod POREH, Alessandro AIUPPA et Gaetano GIUDICE : First-time lidar measurement of water vapor flux in a volcanic plume. Optics Communications, 284(5):1295–1298, mars 2011.
- [63] Andrea PAZMINO, Sophie GODIN, Elian WOLFRAM, Mario LAVORATO, Jacques PORTENEUVE, Eduardo QUEL et Gérard MÉGIE : Intercomparison of ozone profiles measurements by a differential absorption lidar system and satellite instruments at buenos aires, argentina. Optics and Lasers in Engineering, 40(1&2):55–65, juillet 2003.
- [64] OPTRONIS : STREAK CAMERAS, SC-10, notice.
- [65] P. WEIBRING, C. ABRAHAMSSON, M. SJÖHOLM, J. N. SMITH, H. EDNER et S. SVANBERG : Multi-component chemical analysis of gas mixtures using a continuously tuneable lidar system. Applied Physics B, 79(4):525–530, septembre 2004.

Table des figures

1	L'éolipyle d'Héron d'Alexandrie.	1
2	Le fardier de Cugnot.	2
3	Le cycle de Carnot : cycle idéal.	3
4	Schéma du projet de René Lorin de 1913.	4
I.1	Sonde à aspiration (Chauvin Arnoux) [?]	10
I.2	Schéma de principe du thermocouple (Effet Seebeck)	10
I.3	Échanges par rayonnement et convection entre le thermocouple et son environnement	11
I.4	Sonde platine en couche mince pour l'industrie automobile de chez LABFACILITY (épaisseur 2 mm et de largeur variant de 1,6 à 10 mm)	13
I.5	Schéma de principe de la diffusion Raman	18
I.6	Diagramme de niveaux d'énergie	19
I.7	Exemple de croisement de faisceau laser en Drasc	20
I.8	Schéma de fluorescence à deux niveaux	20
I.9	Exemple de résultat de LIF pour la molécule d'anisole C_7H_8O pour différentes températures et une pression d'azote de 8 Bars et une longueur d'onde d'excitation $\lambda = 266 \text{ nm}$, le signal est normalisé par rapport à la valeur maximum pour $T = 473 \text{ K}$ [15].	22
I.10	Schéma de principe du montage optique de Kurlbaum	22
I.11	Simulation de la méthode de Kurlbaum pour la disparition des raies du CO_2 à 2200 K	23
I.12	Schéma d'un lidar coaxial appliqué pour une détection à courte distance des gaz en présence	24
I.13	Comparaison des profils de température (figure de gauche) et de la fraction molaire de gaz carbonique (figure de droite) mesurés par spectroscopie d'émission et par des mesures intrusives en sortie de turboréacteur Rolls-Royce [4]	28
I.14	Schéma de principe des mesures spectrales en émission	32
I.15	Schéma de principe de la mesure conjuguée (Emission et lidar rétrodiffusé)	33
II.1	Domaines du spectre électromagnétique.	38
II.2	Direction d'émission et angle solide pour l'hémisphère de rayon unité.	39
II.3	Définition de l'angle solide.	39
II.4	Schéma du rayonnement entre le corps noir et l'enceinte noire.	41
II.5	Luminance spectrale pour 4 températures différentes.	42
II.6	Réception du rayonnement thermique par un corps réel à la température T.	43

II.7	Absorption équivalente d'un rayonnement pour deux angles solides : $d\Omega''$ et $d\Omega$.	44
II.8	Propagation de la luminance dans un milieu transparent.	45
II.9	Luminance spectrale incidente à un volume de gaz élémentaire.	46
II.10	Absorption du rayonnement par un gaz quelconque d'épaisseur d .	50
II.11	Modes normaux de vibration de l'eau	54
II.12	Absorption d'un photon par une molécule	55
II.13	Émission spontanée d'un photon	55
II.14	Émission stimulée	56
II.15	Comparaison des profils Doppler et Lorentzien d'après (II.69) et (II.71) pour $\gamma_D = \gamma_L$.	59
II.16	Schéma d'une flamme de pré-mélange type Bec-Bunsen	60
II.17	Schéma d'une flamme de diffusion	61
II.18	Évolution de la température suivant la zone de combustion	61
II.19	Schématisation de la réaction de combustion	63
II.20	Décomposition de la réaction de combustion	63
III.1	Calculs successifs de deux profils de raies et leur sommation.	73
III.2	Coefficient d'absorption monochromatique calculé avec HITEMP-10 pour un mélange homogène de 26% de H_2O et de 74% de N_2 à 2800 K et 5,5 bar.	74
III.3	Transmission calculée pour 60 cm de mélange homogène de 26% de H_2O et de 74% de N_2 à 2800 K et 5,5 bar.	74
III.4	Schéma de principe des mesures spectrales en instationnaire sur H_2O	75
III.5	Photographie et schéma de l'enceinte de combustion	76
III.6	Courbe de transmission d'une fenêtre de saphir d'épaisseur 1 mm (Source : Melles Griot).	77
III.7	Montage du capteur piézo-électrique dans la bride de sortie de la cellule.	78
III.8	Caractéristiques techniques du capteur piézo-électrique Kistler.	79
III.9	Carte National Instruments 6221 pour l'acquisition de données.	79
III.10	Principe de fonctionnement d'un réseau plan par réflexion.	81
III.11	Montage Ebert-Fastie du SOPRA UHRS F1150.	82
III.12	Recouvrement des différents ordres 1(bleu), ordre 2(vert), ordre 3(rouge) de notre spectromètre SOPRA.	84
III.13	Courbe de transmission du filtre passe bande.	84
III.14	Spectromètre SOPRA UHRS F1150 vu de côté.	85
III.15	Couplage camera-spectromètre.	86
III.16	Efficacité quantique de la camera LN/CCD 400.	87
III.17	Raies caractéristiques de la lampe Néon 6032 de chez Newport.	88
III.18	Spectre de la lampe Néon centré autour de 12195 cm^{-1} .	89
III.19	Spectre de la lampe Néon étalonné centré autour de 12195 cm^{-1} .	90
III.20	Spectres mesurés issus du corps noir de référence pour un temps d'intégration de 3,5 ms.	92
III.21	Réponse de la camera pour $\sigma = 12200,34\text{ cm}^{-1}$.	92
III.22	Modélisation de la fonction d'appareillage centrée à 12195 cm^{-1} .	94
III.23	Représentation 3D de l'ensemble des spectres acquis dans le domaine spectral $12080 - 12310\text{ cm}^{-1}$ au cours d'une déflagration.	95
III.24	Mesure de la pression (courbe verte) et retour caméra (créneaux).	96

III.25	Étude de la répétabilité des mesures pour un mélange chargé à 68% N_2 / 21% H_2 / 11% O_2 atteignant une température adiabatique de flamme de 2300 K et une pression de 15 bar pour une formation de 23% de vapeur d'eau.	96
III.26	Étude de la répétabilité des mesures pour un mélange chargé à 50% N_2 / 33% H_2 / 17% O_2 atteignant une température adiabatique de flamme de 2900 K et une pression de 9,6 bar pour une formation de 39,5% de vapeur d'eau.	97
III.27	Spectre d'émission de la vapeur d'eau pour un mélange chargé à 57% N_2 / 29% H_2 / 14% O_2 atteignant une température adiabatique de flamme de 2700 K et une formation de 29,5% de vapeur d'eau pour différentes pressions.	98
III.28	Spectre d'émission de la vapeur d'eau à une pression de 7,1 bar pour différentes températures de flamme en fin de combustion.	98
III.29	Comparaison entre la déflagration (3,3 bar - 2540 K, 27,5% de vapeur d'eau) et la simulation.	99
III.30	Comparaison entre la déflagration (14,1 bar - 2556 K, 28,3% de vapeur d'eau) et la simulation.	100
III.31	Comparaison entre la déflagration (7,1 bar - 2900 K, 39,5% de vapeur d'eau) et la simulation.	100
III.32	Comparaison entre la déflagration (11,7 bar - 2900 K, 39,5% de vapeur d'eau) et la simulation.	101
III.33	Exemple d'un spectre d'émission de la vapeur d'eau calculé à partir des coefficients A et B pour une pression de 11,3 bar et une température de 2500 K comparé à la mesure.	103
III.34	Exemple de spectre d'émission de la vapeur d'eau calculé à partir des coefficients C,D,E et F pour une pression de 4,86 bar et une température de 2942 K.	104
III.35	Schéma d'un milieu hétérogène discrétisé en N éléments homogènes et isothermes.	106
III.36	Schéma de principe de l'inversion des mesures.	109
III.37	Photo et mesure en émission de la flamme H_2/O_2	113
III.38	Profils de température et de concentration retrouvés par l'inversion.	114
III.39	Luminance mesurée comparée à la luminance retrouvée.	114
III.40	Profils de température et de concentration retrouvés par inversion comparés aux valeurs théoriques.	116
IV.1	Configuration du système étudié	122
IV.2	Diffusion Rayleigh en prenant en compte l'absorption de la vapeur d'eau.	124
IV.3	Variation de la section efficace et du coefficient de diffusion en fonction de la longueur d'onde en microns	125
IV.4	Variation du nombre de photons diffusés et rétrodiffusés en fonction de la longueur d'onde en microns	125
IV.5	Courbe de réponse des différentes barrettes de détecteurs de la photocathode de la caméra STREAK OPTRONIS	126
IV.6	Variation du nombre de photons rétrodiffusés en fonction de la longueur d'onde en microns et de la barrette de détection	126
IV.7	Schéma de principe de la simulation numérique en mode Dial	127
IV.8	Exemple de longueur d'onde absorbée λ_a et transmise λ_b	127
IV.9	Photographie et schéma de principe de la caméra Streak SC-10 [64]	130
IV.10	Schéma de principe du tube Streak et du processus de balayage	130
IV.11	Schéma de principe du laser OPO	131

IV.12	Courbe d'énergie émise en fonction de la longueur d'onde de notre laser OPO [64]	132
IV.13	Rappels de quelques données techniques du Laser OPO PG 401	132
IV.14	Schéma de principe du montage en rétrodiffusion	133
IV.15	Photographie de la flamme de diffusion H_2/Air	134
IV.16	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme verticale H_2/Air	134
IV.17	Photographie de la flamme de prémélange inclinée H_2/Air	135
IV.18	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme "inclinée" H_2/Air	135
IV.19	Photographie de la flamme de méthane issus d'un brûleur rampe linéaire	136
IV.20	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme de méthane d'un brûleur rampe linéaire	136
IV.21	Fonctionnement de la fonction FMinSearch de Matlab	137
IV.22	Profil de température de la flamme H_2/Air verticale	138
IV.23	Profil de température de la flamme H_2/Air inclinée	139
IV.24	Profil de température de la flamme de méthane sur le brûleur rampe	139
IV.25	Schéma de principe du couplage émission/rétrodiffusion	141
IV.26	Photographie de la flamme de méthane issu du brûleur rampe	142
IV.27	Photographie du montage réalisé pour la mesure en émission et rétrodiffusion simultanément	142
IV.28	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la flamme de méthane d'un brûleur rampe linéaire	143
IV.29	Profil de température retrouvé par inversion de la mesure en rétrodiffusion d'une flamme de méthane issue d'un brûleur rampe linéaire	143
IV.30	Mesure en émission de la tête de bande du CO_2	144
IV.31	Profil de température sur la ligne de visée d'une flamme de méthane issue d'un brûleur rampe linéaire	144
IV.32	Photographie de la turbine JetCat P100RX et schéma de principe d'une turbine	145
IV.33	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la turbine JetCat	146
IV.34	Profil de température retrouvé par inversion de la mesure en rétrodiffusion de la turbine JetCat	146
IV.35	Spectre en luminance de la turbine Jetcat dans la gamme $2000 - 2600 \text{ cm}^{-1}$ avec un zoom sur la tête de bande du CO_2 à droite	147
IV.36	Image visualisée par la caméra Infrarouge Cedip Orion avec le filtre CO_2	148
IV.37	Photographie symbolisant le lieu de la ligne de visée de la mesure couplée	148
IV.38	Image et signal visualisé par la caméra Streak sur la turbine JetCat	149
IV.39	Comparaison de la température et du profil retrouvés par inversion en rétrodiffusion sur la turbine JetCat en fonction des différentes mesures	149
IV.40	Profil de température de la turbine JetCat	150
IV.41	Spectre en luminance de la turbine Jetcat dans la gamme $2000 - 2600 \text{ cm}^{-1}$ avec un zoom sur la tête de bande du CO_2 à droite	150
IV.42	Profils de températures et de concentrations retrouvé par inversion des données spectroscopiques	151
IV.43	Profil de température corrigé sur la ligne de visée d'une turbine JetCat	152
IV.44	Mesure lidar d'un profil bilobé d'une flamme de méthane inclinée	157
IV.45	Profil de température corrigé sur la ligne de visée d'une turbine JetCat	158
IV.46	Précision du profil des mesures	159

Liste des tableaux

I.1	Classes et sensibilité des thermocouples	12
I.2	Tableau récapitulatif des méthodes intrusives	15
I.3	Principaux phénomènes de diffusion dans un Lidar	25
I.4	Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non intrusives actives	26
I.5	Tableau récapitulatif des méthodes de mesure non-intrusives passives	31
II.1	Réaction chimique de SO_2 avec l'air	64
III.1	Liste des paramètres contenus dans HITRAN 2012 pour chaque transition moléculaire citation [35] [36].	70
III.2	Coefficient du polynôme III.3	71
III.3	Position des raies étalons du Néon centré autour de 12195 cm^{-1}	89
III.4	Pourcentage de vapeur d'eau formée en fonction de la température.	101
III.5	Température et pression des spectres d'émission de la vapeur d'eau mesurés.	102
III.6	Exemple de tableau contenant les coefficients A et B pour $T = 2500\text{ K}$	103
IV.1	Coefficients de transmission de la vapeur d'eau pour différentes applications et faisabilité du Dial à 890 nm	128
IV.2	Coefficients de transmission de la vapeur d'eau dans pour différentes applications et faisabilité du Dial à 950 nm	129
IV.3	Tableau récapitulatif des températures mesurées en fonction de la méthode de mesure	151
IV.4	Tableau récapitulatif des températures mesurées en fonction de la méthode de mesure	158

Résumé

L'objectif de cette thèse était de développer et d'appliquer une nouvelle méthode de mesure permettant de dresser des cartographies instantanées des températures et des concentrations des diverses espèces présentes dans les gaz de combustion et aider à la détermination des performances de moteurs et mieux comprendre les mécanismes de réaction.

Pour cela, un moyen de mesure optique, non intrusif pour ne pas interagir sur le fonctionnement du moteur, a été mis au point, ce qui a permis ainsi une meilleure analyse des performances et donc une mise au point plus rapide des moteurs. De par ses caractéristiques, le système peut réaliser des mesures résolues temporellement et spatialement. Outre les investigations dans les écoulements réactifs des propulseurs à réaction, ce système de mesure peut être également utilisé ultérieurement pour la mise au point des moteurs cycliques à détonation, à allumage commandé (essence) ou par compression (diesel, HCCI). Les temps de réponse (inférieures à $10 \mu s$) du moyen de mesure sont compatibles avec les phénomènes étudiés. Cette technique de mesure peut également être embarquée sur un aéronef pour effectuer des mesures en vol.

Le but était donc de mettre au point un système optique permettant la mesure de ces différents paramètres à distance. La spectroscopie est un outil adapté à cette étude. C'est une méthode physique non intrusive qui, associée à un LIDAR (télédétection laser), permet la mesure précise et instantanée de la température et de la concentration des gaz de combustion et de connaître leur évolution temporelle. Il peut être envisagé par la suite de mesurer directement l'avancement de la combustion afin d'améliorer le rendement et par voie de conséquence diminuer les rejets de polluants.

Mots-Clés : Rayonnement - LIDAR - Méthodes inverses - Spectroscopie - Photonique instrumentale - Infrarouge

Abstract

The aim of the present PhD thesis was to develop and apply a new measurement technique allowing one to create maps of the temperature and the concentration of various species within combustion gas, to determine the performances of the engines and get a better understanding of the reaction mechanisms.

In order to do so, a non-invasive optical measurement technique was setup. This has enabled us to have better an analysis of the performances and hence, a faster adjustment of the engines. Thanks to its characteristics, the system is able to do some spatial and temporal resolved measurements. Apart from reacting flows in propellers, this measurement technique can also be used for the design of detonation and spark ignition engines or compression engines. The response times (lower than $10 \mu s$) are compatible with the phenomena under investigation. This technique can also be used in airplanes to enable on-flight measurements.

The aim was hence to setup an optical system allowing the measurement of these different parameters from a distance. Spectroscopy is a well-suited tool for this work. It is a non-intrusive physical measurement which, combined with LIDAR, allows the precise and instantaneous measurement of the temperature and the concentration of combustion gas as well as the following of their temporal evolution. It would be worth considering measuring the progress of the combustion directly so as to improve the performance and hence reduce the formation of pollutants.

Keywords : Radiation - LIDAR - Inverse techniques - Spectroscopy - Photonics instrumental - Infrared