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

Julien-Pierre OFFRET

DÉTERMINATION DES CHAMPS DE TEMPÉRATURE ET DE CONCENTRATION DANS UN JET GAZEUX PAR MESURES COUPLÉES LIDAR ET SPECTROMÉTRIQUES

Soutenance le 02 Décembre 2015 devant le jury composé de :

Pr.	Laurent CATOIRE	Rapporteur	ENSTA ParisTech
Pr.	Guillaume POLIDORI	Rapporteur	Université de Reims
Pr.	Yannick BAILLY	Co-directeur scientifique	Université de Franche-Comté
Dr.	François CLÉMENT	Examinateur	INRIA
Pr.	Philippe HERVÉ	Directeur scientifique	Université Paris Ouest
Pr.	Philippe NIKA	Examinateur	Université de Franche-Comté
MCf.	Vincent PINA	Examinateur	Université Paris Ouest
MCf.	Isabelle RANC	Examinateur	Université Paris Ouest
	Étienne STUDER	Invité	CEA Saclay

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Laboratoire d'Énergétique, Mécanique et Électromagnétisme (LEME) de l'Université Paris Ouest Nanterre la Défense dans le cadre d'une convention CIFRE avec la société LASUR.

C'est après un master en fusion nucléaire et un projet de développement d'entreprise n'ayant pas rencontré le succès attendu que le Professeur Philippe HERVÉ, mon directeur de thèse, a accepté ma candidature sur ce sujet. Je tiens donc à lui exprimer toute ma reconnaissance pour cette opportunité et pour avoir encadré ces travaux de recherche. Son optimisme quotidien fut une aide indispensable. Je remercie mon co-directeur de thèse, Monsieur le Professeur Yannick BAILLY, pour ses précieux conseils au cours de ces travaux ainsi que du matériel de laboratoire qu'il m'a permis d'utiliser. J'aimerais également souligner l'apport et la contribution de M. Audouin MOREL, gérant de la société LASUR, pour sa disponibilité, son écoute. LASUR m'a toujours permis d'acquérir le matériel dont j'avais besoin pour réaliser mes travaux de recherche.

Mes remerciements vont également vers Messieurs les Professeurs Guillaume POLIDORI et Laurent CATOIRE pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail de thèse. A Vincent PINA, directeur de l'IUT et Maître de conférence HDR, pour sa participation. Une pensée particulière à Etienne STUDER du CEA Saclay, pour la collaboration qu'il a permise avec la société LASUR et les nombreux échanges scientifiques que nous avons eus à l'égard du développement de la méthode couplée pour la mesure Na/H_2O. A Jean-Pierre MINARD, ancien responsable propulsion Statoréacteur chez MBDA, pour son accueil et l'opportunité de réaliser des mesures sur un banc statoréacteur ainsi qu'à Marc BOUCHEZ qui prend la suite de ses activités et a décidé de poursuivre la collaboration entre MBDA et le laboratoire.

Merci à François CLÉMENT pour son aide indispensable à la compréhension et amélioration du programme d'inversion de l'équation du transfert radiatif, pour sa disponibilité et la précision de ses réponses.

Ma reconnaissance à l'égard de Nicolas RAMBURE et Robin CONSEIL, alors ingénieurs de recherche pour la société LASUR, pour leurs conseils et attentive écoute durant ma première moitié de thèse. Leurs idées et connaissances ont été un réel apport. Je remercie particulièrement Jérémy LEBEDINSKY pour sa contribution aux expériences et nos échanges quotidiens. A Romain PAWELKO, pour nos discussions et son aide en conception mécanique. A Wang Xingkai pour sa disponibilité. A Dimitri BONNET pour son aide au développement du programme d'inversion des signaux Lidar et nos nombreux échanges. Éric KUHN, pour les échanges que nous avons eus pendant les deux premières années de ma thèse.

Je tiens à remercier l'ensemble des techniciens du site de Ville d'Avray pour leur contribution. En particulier, Yvon COSSIC et Ahmed LAALEM, pour leurs travaux indispensables à la bonne avancée de mes recherches.

Une pensée affectueuse va vers mes parents, ma sœur et l'ensemble de ma famille pour leur écoute et leur soutien continu. Je remercie mes amis pour leur présence, leur écoute, leur soutien. Enfin, une pensée particulière pour Anaïs, également en thèse, pour le réconfort de sa présence quotidienne, sa joie de vivre, son sourire et son soutien sans relâche.

Table des matières

Remerciements ii

Nomenclature x

Introduction 2

Chapitre I : Méthodes de mesure de températures et de concentrations dans une flamme 6

I.A Etat de l'art 8

I.A.1 Les méthodes intrusives 8

I.A.1.1 Les thermocouples 8

I.A.1.1 Les sondes en couches minces 10

I.A.1.2 Les sondes à aspiration 11

I.A.1.3 Les fibres optiques 11

I.A.1.4 Récapitulatif des méthodes intrusives 13

I.A.2 Les méthodes non-intrusives 13

I.A.2.1 Méthodes passives 13

I.A.2.2 Méthodes actives 14

I.A.2.3 Résumé des méthodes non intrusives 23

I.B Etat de l'art propre au laboratoire 24

I.C Choix de la méthode de mesure 28

Chapitre II : Éléments théoriques 30

II.A Interaction photon-particule photon-molécule 32

II.A.1 Diffusion de Mie 32

II.A.1.1 Caractérisation du phénomène 32

II.A.1.2 Section efficace 33

II.A.1.3 Libre parcours moyen 34

II.A.2 Diffusion élastique : diffusion Rayleigh 35

II.A.2.1 Caractérisation du phénomène 36

II.A.2.2 Section efficace différentielle 37

II.A.2.3 Dépendance de la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air à la température d'un volume de gaz 40

II.A.2.4 Dépendance de la section efficace de diffusion Rayleigh à la longueur d'onde 41

II.A.2.5 Coefficient de rétrodiffusion 43

II.A.2.6 Libre parcours moyen 44

II.A.3 Diffusion inélastique : diffusion Raman 44
II.A.3.1 Caractérisation du phénomène 44
II.A.3.2 Section efficace et décalage en nombre d'onde de diffusion Raman 45
II.B Rappels sur la combustion 48
II.B.1 Les flammes issues de systèmes ouverts 48
II.B.1.1 Les flammes de diffusion 49
II.B.1.2 Les flammes de pré-mélange 49
II.B.2 Equations de combustion des composés carbonés et/ou azotés 51
II.B.2.1 Réaction CH_4/O_2 52
II.B.2.2 Réaction C_3H_8/O_2 54
II.B.2.3 Réaction H_2/O_2 56
II.B.3 Température adiabatique de flamme 59
II.C Lidar (Light Detection And Ranging) 62
II.C.1 Lidar d'impulsions laser brèves d'intensité constante 63
II.C.2 Lidar avec des impulsions de durée finie 66
II.C.3 Méthode DIAL (Differential Absorption Lidar) 67
II.D Rappels sur le rayonnement thermique 70
II.D.1 Nature et définition du rayonnement thermique 70
II.D.2 Rayonnement des corps opaques 71
II.D.2.1 Rayonnement total d'une source élémentaire dans l'espace 71
II.D.2.2 Définition du corps noir 72
II.D.2.3 Luminance du corps noir 73
II.D.2.4 Caractérisation du rayonnement des corps opaques réels 74
II.D.3 Introduction au transfert radiatif dans un milieu semi-transparent non diffusant 74
II.D.3.1 Atténuation par absorption 74
II.D.3.2 Gain par émission 75
II.D.3.3 Equation du transfert radiatif 75
Chapitre III : Modèle et validation sur une flamme de méthane 76
III.A Mesure de température par Lidar Rayleigh picoseconde 78
III.A.1 Lidar d'impulsions laser brèves d'intensité constante 78
III.A.2 Impulsions laser réelles 81
III.A.3 Traitement numérique 83

III.A.4 Appareillages 87
III.A.4.1 Caméra Streak (Optronis) 87
III.A.4.2 Lasers YAG / OPO (Ekspla) 94
III.B Estimation de température et concentration par inversion des données spectrométriques 100
III.B.1 Étalonnage 100
III.B.2 Résolution du problème inverse 101
III.B.2.1 Programme de minimisation 103
III.B.2.2 Dérivation, état adjoint 103
III.B.2.3 Dérivée de la fonction coût 105
III.B.2.4 Paramétrisations 106
III.B.2.5 Analyse de sensibilité 108
III.B.2.6 Spectre d'émission de l'eau 113
III.B.2.7 Tête de bande du CO_2 113
III.B.3 Spectromètres 115
III.B.3.1 Les spectromètres à réseau 115
III.B.3.2 Les spectromètres à Transformée de Fourier 116
III.C Couplage 118
III.C.1 Traitement de la mesure Lidar 118
III.C.2 Traitement de la mesure d'émission de rayonnement 118
III.C.3 Validation du modèle 121
III.C.3.1 Répétabilité LIDAR 121
III.C.3.2 Simulations Cantera 123
III.C.3.3 Mesure couplée sur une flamme CH_4/Air 125
III.C.3.4 Conclusions sur la validation du modèle 130
Chapitre IV : Applications de la méthode couplée 132
IV.A Mesures sur flammes isolées avec la méthode LIDAR seule 134
IV.A.1 Flamme H_2/Air inclinée 134
IV.A.2 Flamme Méthane/air inclinée 135
IV.A.3 Flamme méthane/air sur brûleur rampe 137
IV.A.4 Conclusion 138
IV.B Gaz d'échappement d'un turboréacteur 140
IV.B.1 Spectre démission du CO_2 141

IV.B.2 Mesure Lidar....141
IV.B.3 Résultats....143
IV.B.4 Conclusions....149
IV.C Flamme Méthane/Air double bosse....150
IV.C.1 Spectre d'émission du CO_2....150
IV.C.2 Mesures Lidar....151
IV.C.3 Résultats....152
IV.C.4 Conclusions....155
IV.D Flamme de statoréacteur (MBDA)....156
IV.D.1 Banc de mesures....157
IV.D.2 Spécificités acoustiques de l'environnement de mesure....158
IV.D.3 Spectre d'émission....160
IV.D.4 Mesures Lidar....161
IV.D.5 Conclusion et perspectives....164
IV.E Mesures sur déflagrations H_2/Air....168
IV.E.1 Banc expérimental....168
IV.E.1.1 Laser YAG 250mJ/Pulse....170
IV.E.1.2 Purification du faisceau laser....171
IV.E.1.3 Modifications sur la cellule....173
IV.E.2 Résultats expérimentaux sur des déflagrations H_2/Air....173
IV.E.2.1 Détermination du fond continu et calcul des incertitudes....173
IV.E.2.2 Stabilité temporelle de la déflagration....175
IV.E.2.3 Profils d'émission des flammes....175
IV.E.2.4 Courbes de référence et fond continu....177
IV.E.2.5 Profils de température....180
Chapitre V : Conclusions et perspectives....186
Chapitre VI : Annexes....192
VI.A Section efficace de diffusion Rayleigh – Loi en 1/ λ^4 – Modèle de l'électron élastiquement lié.192
VI.B Comparaison des Loi de Van der Waals et gaz parfait....193
VI.C Vitesse d'une particule soumise au champ électrique d'une impulsion du laser YAG Picoseconde. 195
I.1.1. Energie d'un photon....195
VI.C.1 Transfert d'impulsion du photon à la particule....195

VI.C.2 Vitesse de la particule après le passage d'une impulsion laser.....196
VI.D Démonstration de l'équation régissant la méthode de Kurlbaum.....198
VI.E Flamme CH_4/Air sur bruleur rampe en fonction de la richesse 199
VI.F Flamme de diffusion CH_4/Air.....200
VI.G Fractions maximales en CO_2 et H_2O dans une réaction entre un alcane et l'air pour une réaction dans les proportions stœchiométriques.....201
Table des figures.....204
Liste des tableaux 214
Bibliographie 216
Résumé.....222

Nomenclature

Constantes physiques

c_0	Célérité de la lumière	$2{,}9979.10^{8}\ m.s^{-1}$
h	Constante de Planck	$6{,}6261.10^{-34}\ J.s$
k_B	Constante de Boltzmann	$1{,}3806.10^{-23}\ m^2.Kg.s^{-2}K^{-1}$
N_a	Nombre d'Avogadro	$6{,}0221.10^{23}\ molécules.mol^{-1}$
R	Constante des gaz parfaits	$8{,}3145\ J.mol^{-1}.K^{-1}$

Paramètres géométriques

x	Position	m
V	Volume	m^3
Δ	Direction	$sans\ unité\ (s.u.)$
Ω	Angle solide	sr
A	fonction d'appareillage	$selon\ l'appareillage$
L	Longueur	m
d	Epaisseur d'une couche de gaz	m
v	Vitesse	$m.s^{-1}$
$\theta\ ,\varphi$	Angles	rad

Paramètres Lidar

σ	Section efficace de diffusion Rayleigh	m^2
$\frac{d\sigma}{d\Omega}$	Section efficace différentielle de diffusion Rayleigh	$m^2.sr^{-1}$
β	Coefficient de rétrodiffusion	m^{-1}
I	Intensité signal Lidar	$W.m^2$
N	Concentration moléculaire du milieu	$molécules.m^{-3}$
$\tau_{rétrodiffusion}$	Epaisseur optique	$s.u.$

Paramètres thermodynamiques

X	Fraction molaire	$\%$
C	Concentration	$molécules.m^{-3}$
M	Masse molaire	mol
T	Température	K
P	Pression	Pa
n	Quantité de matière	mol
c_p	Capacité calorifique	$J.K^{-1}$
$h_{i,T}^0$	Enthalpie molaire	$J.mol^{-1}$
H	Enthalpie	J
Q	Echanges thermiques	J
U	Energie interne	J

Paramètres spectroscopiques

L	Luminance	$W.m^{-2}.cm$
λ	Longueur d'onde	m
υ	fréquence	Hz
σ	Nombre d'onde	cm^{-1}
ω	pulsation	$Hz.rad^{-1}$
ε	Émissivité	$s.u.$
τ	Coefficient de transmission	$s.u.$
K	Absorption	m^{-1}
S_G^N	Intensité d'absorption	$cm^{-1}.molécule.cm^{-2}$

Autres paramètres

n	Indice de réfraction	$s.u.$
η	Fraction volumique	$s.u.$
ϕ	Richesse	$s.u.$
J	Fonction coût	$carré\ de\ la\ quantité\ mesurée$

Introduction

L'objectif de ce travail de recherche est de développer une méthode de détermination de profils de température et concentration dans des gaz de combustion. Plus particulièrement, nous cherchons à mettre au point un appareillage capable de mesurer les différents points chauds et les quantités d'effluents polluants le long d'une ligne de visée. En effet, les centrales nucléaires, bien que mal connues du grand public et présentant les dangers d'une forme d'énergie concentrée (dangers perçus par le public au travers des catastrophes de Tchernobyl en 1986 et plus récemment celle de Fukushima en Mars 2011) représenteront une source d'énergie importante. Les projets de fusion nucléaire tels que ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) sur le site du CEA de Cadarache ou LMJ (Laser Méga Joule) sur le site du CEA de Bordeaux peuvent apporter des solutions à nos besoins croissants en énergie mais ne verront pas le jour avant la seconde moitié du 21ème siècle. Les réacteurs à neutrons rapides (générations IV de centrales nucléaires), toujours fondés sur la fission nucléaire, peuvent être une solution alternative avec l'extraction de jusqu'à 98% du pouvoir énergétique des combustibles nucléaires (Uranium ou plutonium) au lieu de 2% [**1**]. Les générations IV (voir le schéma de la Figure 1) pourraient avoir un fluide caloporteur de sodium au lieu de l'eau ce qui présente l'avantage de ne pas ralentir les neutrons. La contrepartie est le danger lié à l'utilisation du sodium qui brûle au contact de l'eau. C'est dans ce contexte que le CEA Saclay mène des recherches sur le sodium et notamment sur sa réaction avec l'eau. Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'un contrat entre la société LASUR et le CEA Saclay afin de développer un appareillage capable de déterminer les champs de température et concentration dans une réaction entre le sodium et l'eau.

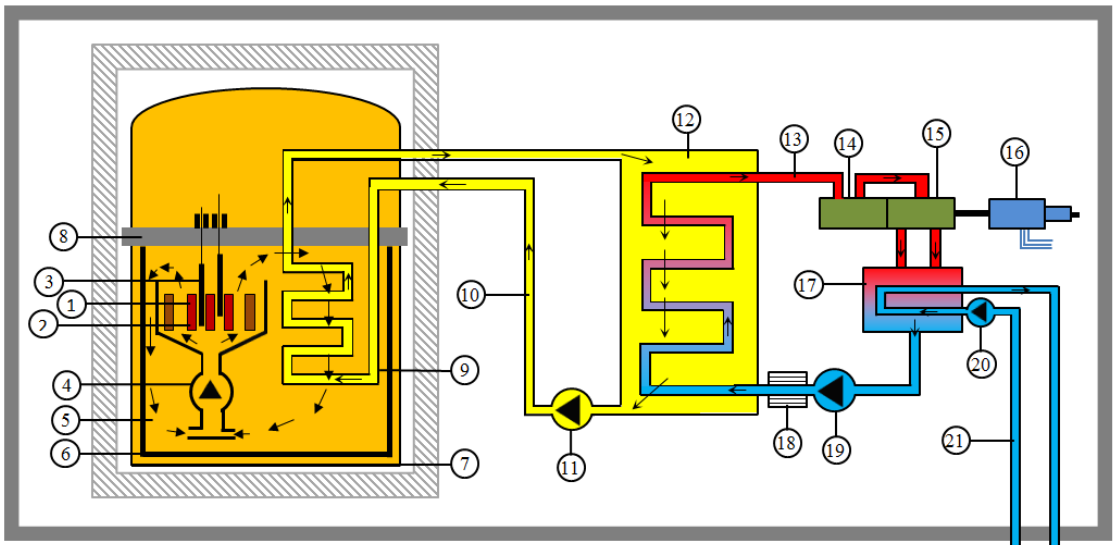


Figure 1 : Schéma de principe d'un réacteur à neutrons rapides (RNR)

Les gaz à effet de serre, les émissions de polluants et de particules et leurs conséquences sur l'environnement constituent l'un des enjeux majeurs qui incombent à l'humanité en ce début de 21ème siècle. Les prix des énergies fossiles atteignent des sommets. Les énergies alternatives peinent à obtenir

l'enthousiasme des populations. Dans ce contexte, les industriels automobiles et aéronautiques sont contraints d'innover. Ils doivent innover d'une part afin de diminuer significativement les émissions de polluants de leurs moteurs et d'autre part afin d'en augmenter les rendements. Outre les émissions de dioxyde de carbone, les combustions émettent des dioxydes d'azote (NO_x) lorsque la température dépasse les 1700°C. A titre d'exemple, le seuil d'effets irréversibles sur la santé pour une exposition pendant une heure au NO_2 est de 40ppm alors qu'il est de 800ppm pour le CO [**2**] [**3**]. Les motoristes automobiles développent par exemple les moteurs HCCI (Homogeneous Charge Compression Ignition) dans lesquels le mélange air/carburant est rendu le plus homogène possible avant d'atteindre le point d'auto-allumage. Ces moteurs diminuent les émissions de polluants, notamment des oxydes d'azote et ont de meilleurs rendements. Leur développement nécessite de nouveaux instruments de mesures, adaptés à leurs enjeux environnementaux et économiques.

Les problématiques environnementales et d'optimisation des combustions sont prises en compte dans le domaine aéronautique. L'aviation civile s'intéresse en particulier à la réduction d'émission de CO_2 et de NO_x et à leur consommation en kérosène, principal centre de coût des compagnies aériennes. Le récent brevet déposé par airbus concernant leur projet d'avion civil supersonique implique les développements de nouveaux moteurs. L'industrie aéronautique militaire s'intéresse au développement de réacteurs furtifs et performants en termes d'autonomie en vol et de vitesse de croisière. Les turboréacteurs sont limités à mach 2,5. Pour atteindre des vitesses supérieures, d'autres types de moteurs doivent être utilisés tels que les statoréacteurs (Figure 2) ou les moteurs à détonations. Ces réacteurs sont sans pièces mobiles et permettent d'atteindre des vitesses allant jusqu'à mach 7 [**4**]. L'une des difficultés de ces moteurs est liée à la résistance des matériaux puisque la température des flammes peut dépasser les 3000K. Les instruments de mesures classiques tels que les thermocouples ou encore les sondes à aspiration ne résistent pas aux températures et vitesses d'écoulement mises en jeu. Un appareillage adapté à ces conditions extrêmes et permettant de caractériser les profils de températures et concentrations est nécessaire afin d'en déterminer les paramètres d'influence. En particulier, le CO_2 est une molécule qui peut aisément être repérée par thermographie infrarouge. Une émission trop importante en CO_2 est incompatible avec la furtivité. Dans ce cadre, l'entreprise de conception de missiles MBDA collabore continument avec le laboratoire LEME depuis 1988, notamment pour la caractérisation des flammes de statoréacteurs.

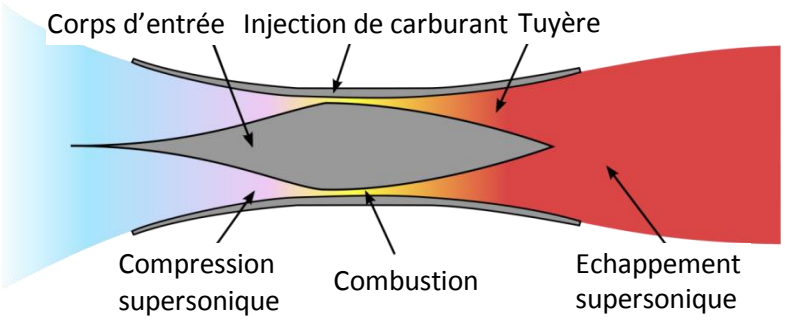


Figure 2 : Schéma de principe d'un statoréacteur

En conséquence, que ce soit l'industrie automobile, aéronautique civile et militaire ou encore l'industrie nucléaire, toutes ont des exigences accrues en diagnostics. Que ce soit dans un souci économique d'amélioration des rendements de moteurs, dans un souci de sureté pour les futures centrales nucléaires ou de défense pour le développement d'avion ou missiles furtifs et dont l'interception serait impossible grâce à des vitesses pouvant dépasser les mach 7, tous ces domaines exploratoires requièrent des outils de mesure originaux et innovants afin de répondre à leurs besoins de maitrise des processus mis en jeu. La

détermination des profils de température et concentration des principales espèces au sein des gaz émis au cœur des réactions de combustion fait partie de ces outils indispensables et nous proposons au travers de ce travail de thèse une approche originale couplant deux techniques de mesures non intrusives : la première par émission de rayonnement et la seconde par LIDAR (Light Detection And Ranging).

La méthode proposée dans ce travail de thèse est le prolongement des travaux de recherches initiés par le Professeur Jean CRABOL dans les années 60 alors directeur du laboratoire LEEE devenu aujourd'hui le LEME (Laboratoire d'Energétique de Mécanique et d'Electromagnétisme) de l'Université Paris Ouest Nanterre la Défense. Les travaux du professeur CRABOL ont été repris et les techniques améliorées par le Professeur Philippe HERVÉ lorsqu'il a hérité de la direction du laboratoire. Depuis, les relations avec le milieu industriel se sont renforcées. De nombreux projets d'applications des méthodes développées au laboratoire en conditions industrielles réelles ont été menés. Ces projets parcourent notamment le travail de thèse d'Olivier Jacquot [**5**] en 1997 sur les turbines à gaz en collaboration avec GDF et celui de Johana Vally [**6**] en 1999 sur les turboréacteurs en collaboration avec Rolls Royce. La thèse de Robin Conseil [**7**] soutenue en 2011 portait sur l'étude des gaz d'échappement d'un moteur à combustion interne (projet SIMBA en collaboration avec Faurecia et d'autres entreprises du secteur automobile). Elle a été réalisée avec le laboratoire Femto-ST de Belfort et en collaboration avec le laboratoire LEME. La dernière thèse du laboratoire sur ce sujet fut soutenue en Décembre 2013 par Jérémy Lebedinsky [**8**] dans le cadre d'un projet REI (Recherche Exploratoire et Industrielle) en collaboration avec la DGA et MBDA. L'objectif était double : la réalisation d'une base de données des coefficients d'absorption monochromatiques de l'eau à hautes températures et hautes pressions d'une part et l'initialisation des travaux de recherche sur la méthode couplée présentée ici d'autre part.

Ces thèses s'appuyaient sur la mesure du spectre d'émission du CO_2 qui entre 2380cm^{-1} et 2400cm^{-1} (Domaine appelé tête de bande du CO_2) possède un grand nombre de raies d'absorption. L'intensité de chacune des raies dépend du profil de température et de concentration en CO_2 de la colonne de gaz analysée. La méthode requière une modélisation du spectre d'émission du CO_2 en fonction des profils de pression, température et concentration. La modélisation fait appel à l'équation du transfert radiatif et aux coefficients d'absorption monochromatiques du CO_2. La détermination des profils de température et concentration est faite à partir de la mesure du spectre d'émission ou de transmission de la colonne de gaz et de l'inversion de l'équation du transfert radiatif.

Les coefficients d'absorption monochromatique sont disponibles dans des bases de données telles que HITRAN ou HITEMP mais présentent des limites de validité aux hautes pressions et températures. Une partie des thèses de Johanna VALLY [**6**] et de de Jérémy LEBEDINSKY [**8**] furent en effet consacrées à la validation et à l'extension du domaine de validité des bases de données sur les molécules de CO_2 et H_2O.

Cependant, la méthode de détermination des profils de température et concentration par l'inversion de l'équation du transfert radiatif ne permet de déterminer que des profils simples tels que des gaussiennes. Les exigences croissantes des industriels quant aux diagnostics ont poussé le laboratoire à développer une nouvelle méthode de mesure. Les éléments théoriques indispensables à sa compréhension sont présentés dans le chapitre I. L'analyse des méthodes existantes qui ont guidé le choix de la méthode présentée dans cette thèse fait l'objet du chapitre II. La méthode est décrite et validée dans le chapitre III et les résultats sont présentés dans le chapitre IV.

La méthode consiste en le couplage d'une mesure spectroscopique avec une mesure Lidar (Light Detection And Ranging) qui permet d'obtenir des profils de températures le long d'une ligne laser. La première dépend exponentiellement de la température et est par conséquent fortement sensible aux

températures élevées. Par exemple, un corps porté à 1000K verra sa luminance à 1µm augmenter de 15% pour une élévation de 1% de sa température. La seconde autorise des profils spatiaux dont la résolution spatiale dépend de la durée de l'impulsion laser mais présente des incertitudes dues à la méconnaissance du mélange gazeux traversé par l'impulsion. Le couplage des deux techniques doit permettre de compenser les failles de chacune des deux méthodes et ainsi d'obtenir des profils de températures et concentrations complexes (à extrema multiples) avec une précision de l'ordre de 1% sur les pics de température.

Chapitre I : Méthodes de mesure de températures et de concentrations dans une flamme

La première section est dédiée à l'analyse de l'état de l'art (I.A) qui nous a conduit au choix de la méthode présentée dans ce travail de thèse. Il a pour objectif de décrire les principales techniques de mesure de température et concentration afin de choisir la méthode la plus adaptée aux gaz chauds ayant des profils complexes et pouvant avoir des vitesses d'écoulement élevées. Deux grands types de mesures coexistent : les méthodes intrusives (I.A.1) et les méthodes non intrusives (I.A.2). Les premières consistent en l'introduction du capteur au sein de la zone de mesure alors que les secondes permettent de placer le capteur à l'extérieur. Les méthodes non intrusives sont passives (I.A.2.1) lorsque le seul signal analysé provient du gaz étudié et elles sont actives (I.A.2.2) lorsque le signal mesuré est issu de l'interaction entre le gaz étudié et un signal externe (impulsion laser, onde sonore,…).

Une deuxième section s'articule autour de l'état de l'art propre au laboratoire depuis les travaux du Professeur Jean CRABOL sur la tête de bande du CO_2 dans les années 60 jusqu'au présent travail de thèse.

L'ensemble de ces méthodes fait l'objet d'une comparaison en listant les avantages et inconvénients de chacune, justifiant ainsi le choix de la méthode retenue.

I.A Etat de l'art

La température est la traduction macroscopique de l'agitation thermique des atomes et molécules. Plus les particules d'un volume donné se déplaceront à des vitesses élevées et plus la température de ce volume sera importante. La température d'un volume ne peut être mesurée que si ce volume est à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire qu'il est à la fois à l'équilibre thermique, mécanique, chimique et radiatif. Autrement dit, un système est à l'équilibre thermodynamique lorsqu'il n'y a pas de flux macroscopique net d'énergie ou de matière entre le système et l'extérieur ni au sein du système. Les mesures de température et concentration (ou fraction molaire) d'une espèce en particulier peuvent être réalisées de façon intrusive (I.A.1) ou non-intrusives (I.A.2). Dans le cas de mesures non-intrusives, il convient de distinguer les méthodes passives, qui se contentent d'analyser l'information physique provenant du milieu étudié (I.A.2.1), des méthodes actives qui se fondent sur l'interaction entre une source extérieure et le milieu (I.A.2.2).

I.A.1 Les méthodes intrusives

Les méthodes intrusives utilisent des capteurs physiquement présents dans le milieu étudié. Elles sont sources de perturbation du milieu.

I.A.1.1 Les thermocouples

Les thermocouples sont les instruments de mesure de température les plus couramment utilisés. Ils sont simples d'utilisation et peu onéreux. Ils sont fondés sur l'effet Seebeck selon lequel une force électromtorice (Figure I-1, ΔV) est créée au niveau d'une soudure entre deux conducteurs différents (Figure I-1, Conducteurs A et B). Cette force électromotrice dépend de la température à laquelle la soudure est portée (Figure I-1, T_c) et de la température de référence (Figure I-1, T_{ref}). On déduit la température de la soudure à partir de T_{ref} et ΔV.

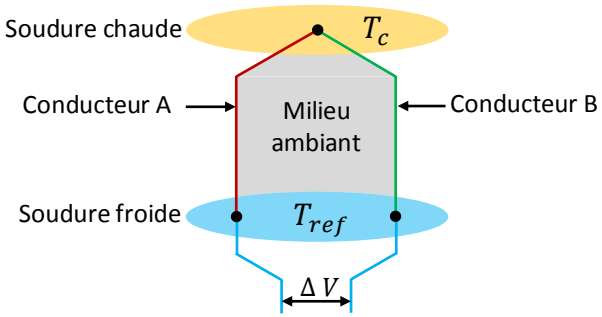


Figure I-1 : Schéma de principe d'un thermocouple

Il existe des thermocouples avec différentes plages de températures de fonctionnement et différentes sensibilités (Tableau I-1) [**9**].

Domaines d'utilisation en température des thermocouples usuels		
Code	**Sensibilité moyenne (mV/°C)**	**Domaine d'utilisation (°C)**
T	51	-200 à 370
J	55	-40 à 800
E	78,5	-270 à 870
K	41	-270 à 1270
S	11,4	-50 à 1600
R	12,9	-50 à 1600
B	10,6	0 à 1700
N	38	-270 à 1300
G/C/D	20	0 à 2600
Pt 0,1 Mo/Pt 0,5 Mo	13 à 36	0 à 1600
Ir/Rh 40% Ir	5	0 à 2100
Pt 40 % Rh/Pt 20 % Rh	3	0 à 1850
Pt/Pd	20	0 à 1500
Pt/Au	25	0 à 1000
W/Re	-	420 à 2760°C (usage intermittent)

Tableau I-1 : Domaines d'utilisation des thermocouples usuels.

Outre leurs nombreux avantages, les thermocouples présentent également des inconvénients importants. Lorsqu'ils sont sous atmosphère non neutre, ils s'oxydent et la sensibilité à la température change. Leur durée de vie est souvent limitée lorsqu'ils sont soumis à des températures supérieures à 1000K. Les thermocouples résistants à des températures très élevées sont plus gros et ont par conséquent des temps de réponse élevés. Plus généralement, les mesures par thermocouple sont sujettes aux incertitudes suivantes :

- Echanges par rayonnement avec le milieu environnant ;
- Echanges par convection entre le milieu étudié et le capteur ;
- Naissance d'un point d'arrêt sur le thermocouple dans le cadre de mesures sur des fluides en mouvement. Le thermocouple subira une élévation de température proportionnelle à la vitesse du fluide au carré.

La température d'arrêt d'un fluide en écoulement à la vitesse v est définie comme suit [**10**]:

$$\Delta \mathrm{T} = \frac{v^2}{2C_p} \qquad \textbf{Eq. I-1}$$

Où $C_p(J.K^{-1})$ est la capacité calorifique du milieu. La température T donnée par le thermocouple sera :

$$\mathrm{T} = T_F + \Delta \mathrm{T} \qquad \textbf{Eq. I-2}$$

Avec T_F la température du fluide. La Figure I-2 ci-après représente l'évolution de la température d'arrêt avec la vitesse d'écoulement pour trois gaz purs à température ambiante : l'air, l'eau et l'hydrogène.

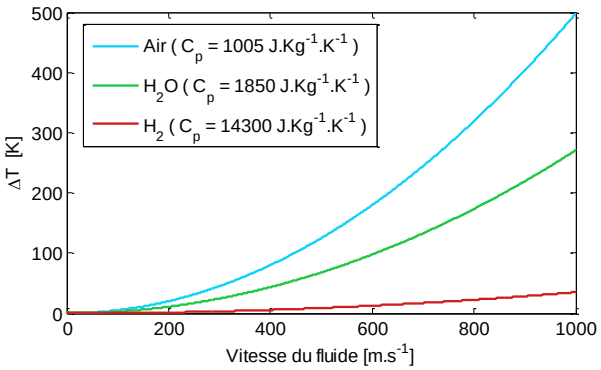


Figure I-2 : Température d'arrêt en fonction de la vitesse du jet de gaz

Pour un statoréacteur, la vitesse d'écoulement des gaz d'échappement est de l'ordre de mach 7, soit bien au-dessus de 1000m.s^{-1}. L'utilisation d'un thermocouple dans ces conditions est exclue.

Nous avons essayé d'utiliser des thermocouples mais ils ont démontré de fortes erreurs de mesure. Par exemple, des erreurs supérieures à 400K pour une flamme méthane/Air à 1800K peuvent être mesurées (voir section IV.A.2 page 135).

I.A.1.1 Les sondes en couches minces

Leur réalisation consiste à déposer une couche métallique mince sur un substrat solide. Deux principes physiques sont utilisés : la thermométrie par résistance en couche mince et le couple thermique en couche mince [**11**].

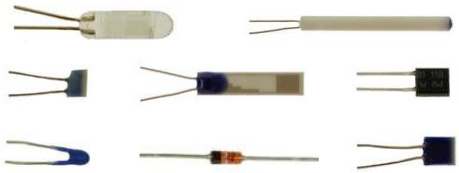


Figure I-3 : Exemples de sondes en couches minces (Société B+B Sensors)

I.A.1.1.a La thermométrie par résistance en couche mince

Les sondes thermométriques par résistance en couche mince s'appuient sur la variation de résistivité d'un matériau en fonction de sa température. Les couches fines sont en général en platine. La gamme de températures mesurables s'étend de -200°C à 1400 °C et leur temps de réponse est de l'ordre de quelques ms.

I.A.1.1.b Thermocouple en couche mince

Les thermocouples en couches minces, tels que ceux conçus par le laboratoire FEMTO-ST, fonctionnent comme les thermocouples usuels selon l'effet Seebeck. Ils ont des temps de réponse plus courts (exceptionnellement de quelques µs) que les thermocouples usuels présentés dans le chapitre I.A.1.1 mais présentent les mêmes limites (température d'arrêt, pertes par rayonnement, perturbation de l'écoulement,…).

I.A.1.2 Les sondes à aspiration

Les sondes à aspiration consistent à prélever un échantillon du gaz étudié. Elles permettent la mesure de température par un thermocouple situé à l'intérieur de la sonde et une analyse des espèces présentes par :

- Chromatographie en phase liquide ou gazeuse ;
- Spectrométrie optique ;
- Spectrométrie de masse.

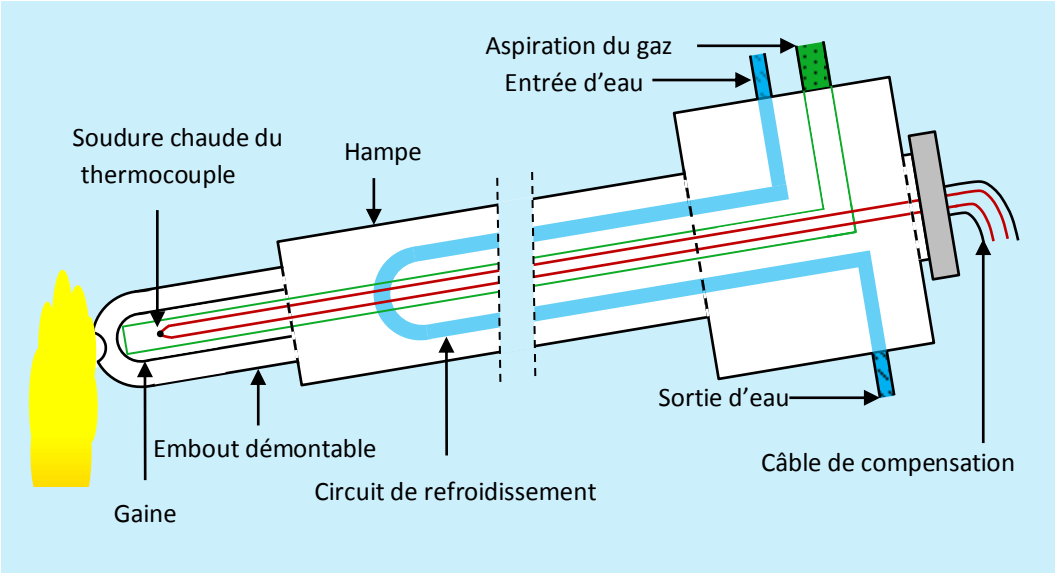


Figure I-4 : Sonde à aspiration Chauvin Arnoux

Les sondes à aspirations peuvent résister à des températures de 2000°C. Elles permettent la mesure de température, de concentrations et de granulométrie de l'échantillon prélevé [**9**].

Néanmoins, elles souffrent de plusieurs inconvénients. L'échantillon prélevé peut changer de phase ou continuer à réagir dans la canne conduisant à des changements de composition. De plus, le temps de prélèvement est long et exclut les mesures sur des phénomènes en transition. Enfin, à l'instar du thermocouple elle perturbe l'écoulement ce qui rend également son utilisation sur des jets gazeux à haute vitesse inenvisageable [**12**].

I.A.1.3 Les fibres optiques

Les fibres optiques permettent de déporter les appareillages de mesure. La zone de mesure peut être fortement perturbée et peut présenter des risques d'endommagement de l'appareillage en raison des fortes températures, des vibrations acoustiques et/ou mécaniques ou encore de la composition chimique des gaz (flamme de statoréacteur ou gaz d'échappement d'un turboréacteur par exemples). La fibre optique permet de mettre à l'écart de la zone de mesure le système d'acquisition, en particulier vers de la pyrométrie ou spectroscopie optique. Elles sont insensibles aux champs électriques et magnétiques et présentent une bonne résistance aux agents chimiques corrosifs que l'on peut trouver dans les réactions étudiées. Il existe deux types de mesures par fibre optique [**13**] :

I.A.1.3.a Les *capteurs intrinsèques*

Pour ces capteurs, les fibres optiques sont un élément actif de la mesure. Il existe par exemple des fibres optiques à effet Raman. Les molécules constitutives de la fibre optique sont excitées par un rayonnement monochromatique λ_0 et émettent un rayonnement Stokes $\lambda_0 + \lambda_S$ et Anti-Stokes $\lambda_0 - \lambda_{AS}$, caractéristiques

de la diffusion Raman. Le rapport des intensités des raies Stokes et Anti-Stokes fournit une information sur la température du milieu selon la relation suivante :

$$\mathrm{R}(T) = \left(\frac{\lambda_S}{\lambda_{AS}}\right)^4 \exp\left[\frac{h\upsilon}{k_B T}\right] \qquad \textbf{Eq. I-3}$$

Avec :

- υ la fréquence [Hz] ;
- T la température [K] ;
- λ_S et λ_{AS} les longueurs d'onde Stokes et Anti-Stokes respectivement [m] ;
- k_B la constante de Boltzmann [J.K^{-1}] ;
- h la constante de Planck [m^2.Kg.s^{-1}].

Les fibres optiques à effet Raman sont actuellement limitées à des températures comprises entre 700 et 800K.

I.A.1.3.b Les capteurs extrinsèques

Les capteurs extrinsèques utilisent les fibres optiques comme vecteurs de l'information physique. Le système de mesure est placé en bout de fibre. Il existe différents types de capteurs extrinsèques et parmi eux :

- Les mesures par photoluminescence de terres rares qui utilisent l'effet thermométrique de la photoluminescence d'un élément spécifique. (Températures maximales de mesure : 250°C)
- Les mesures par décroissance de fluorescence fondée sur la mesure du temps de décroissance. (Température maximale de mesure : 1200°C)
- Les mesures par micro-corps noir en bout de fibre. Ce capteur est fondé sur l'analyse du rayonnement émis par un micro-corps noir situé sur l'extrémité de la fibre plongée dans la zone de mesure. Ce capteur est parfois appelé pyromètre à contact. (Température maximale de mesure : 4000°C) ;
- Les mesures par spectrométrie. La spectrométrie permet par exemple d'effectuer des mesures sur le radical OH, produit transitoire de la réaction H_2/Air notamment [**14**].

Les méthodes par fibres optiques sont adaptées aux mesures dans des flammes mais présentent plusieurs inconvénients. Elles ne s'appliquent qu'à des phénomènes stationnaires. Chaque fibre optique est conçue pour une utilisation particulière. Enfin, les problèmes de perturbations de la mesure introduits dans le chapitre I.A.1.1 sur les thermocouples est le même pour les fibres optiques [**15**].

I.A.1.4 Récapitulatif des méthodes intrusives

Méthode	Processus physique	Avantages	Inconvénients
Thermocouples	Effet Seebeck	Simplicité, coût	Erreur de mesure, température limite, temps de réponse.
Sondes à aspiration	Couplage effet Seebeck / spectrométrie ou chromatographie	Simplicité, coût	Erreur de mesure, température limite, mesure locale, temps de prélèvement
Sondes en couche mince	Résistivité du matériau en fonction de la température	Bonne tenue mécanique	Fragilité, temps de réponse
Thermocouples en couche mince	Effet Seebeck	Bonne tenue mécanique	Fragilité, temps de réponse.
fibres optiques	Détecteurs à l'extrémité de fibre optique	Analyse déportée	Conception particulière à chaque utilisation

I.A.2 Les méthodes non-intrusives

Les méthodes de mesures non-intrusives utilisent la propagation d'une information (onde électromagnétique ou onde acoustique par exemple). Ces méthodes ne perturbent pas le milieu étudié et permettent des temps de mesure plus courts. Il existe deux catégories de mesures non intrusives :

- **Les méthodes passives** reposent sur l'analyse directe du milieu (par exemple son émission de rayonnement) ;
- **Les méthodes actives** nécessitent l'utilisation d'une source externe (par exemple un faisceau laser ou une onde sonore) et reposent sur l'analyse des effets de la source sur le milieu.

Dans la suite, nous ne présenterons que les méthodes adaptées à l'étude des gaz de combustion et ferons abstraction des suies et autres particules.

I.A.2.1 Méthodes passives

Les méthodes passives sont optiques et ne perturbent pas le milieu étudié. Elles ne nécessitent pas de sources externes. Elles se fondent sur l'émission de rayonnement intrinsèque du milieu analysé pour déduire des profils de température et/ou concentration. Elles permettent des mesures de températures élevées à partir d'un signal mesuré intégré le long de la ligne de visée et dépend d'un grand nombre de paramètres. L'inversion est indispensable et difficile.

I.A.2.1.a Mesures par spectroscopie d'émission

L'émission spectrale de rayonnement d'un gaz dépend du nombre d'onde $\sigma[cm^{-1}]$, du profil de température, des profils de concentration des espèces émettant à σ, de la pression P, de l'épaisseur de la colonne de gaz étudiée et du coefficient d'absorption monochromatique. Ces paramètres sont liés par l'équation du transfert radiatif qui sera introduite au sein du chapitre II.C page 70. Cette relation prend en compte les termes sources de rayonnement ainsi que l'absorption des couches de gaz avale successives.

Des profils simples de température et de concentration (profils gaussiens en particulier) peuvent être obtenus à partir des spectres d'émission de la flamme via un programme d'inversion de l'équation du transfert radiatif. Le programme d'inversion IDS (Inversion de Données Spectroscopiques) réalisé en collaboration entre le laboratoire LEME et l'INRIA (Institut National de Recherche en Informatique et en Automatique) s'articule autour de la minimisation itérative de la différence entre la mesure spectrale et le résultat d'un modèle théorique simulé [**16**] (présenté au chapitre III.A). Les coefficients d'absorption

monochromatiques sont nécessaires et obtenus via les bases de données HITRAN ou HITEMP erronées aux hautes pressions et hautes températures. Pour les hautes pressions, il convient de réaliser de nouvelles bases de données pour les molécules présentes dans le mélange étudié. C'est ce qui a été réalisé sur l'eau et le CO_2 au laboratoire LEME [**8**] [**17**]. Les spectres d'émission doivent être d'une résolution d'au moins 0,5cm^{-1} pour le CO_2 pour permettre l'analyse des raies d'émission. C'est ce que Johanna VALLY a démontré dans sa thèse [**6**]. Entre 2380cm^{-1} et 2400cm^{-1} (tête de bande du CO_2), la molécule de CO_2 présente un effet thermométrique important.

Les phénomènes courts ou transitoires peuvent être étudiés via un spectromètre à réseau. Il suffit pour cela de focaliser le rayonnement émis pas la colonne de gaz sur la fente d'entrée du spectromètre. Les mesures peuvent alors être effectuées en des temps très courts jusqu'à la microseconde selon la sensibilité du détecteur et l'intensité du rayonnement émis.

Pour les phénomènes stables, un spectromètre à transformée de Fourier peut être utilisé. Cela confère à la mesure spectrale une excellente résolution spectrale pouvant être de 0,125cm^{-1} sur une large bande. Il nous permet donc d'étudier, à partir d'une seule mesure, plusieurs molécules tant que leurs domaines spectraux ne couvre pas le domaine spectral d'autres molécules.

I.A.2.2 Méthodes actives

Les méthodes actives s'articulent autour de l'interaction photon-matière. Les processus de diffusion, élastiques ou non, d'absorption ou d'émission dépendent des caractéristiques physiques du milieu d'interaction. Pour que la méthode soit valable il faut une source externe adaptée et connaitre les lois régissant l'interaction entre le milieu étudié et ce qui provient de la source externe (photons, ondes acoustiques,…).

Les paragraphes suivants présentent les principales méthodes actives non intrusives.

I.A.2.2.a Les thermomètres à ultrasons

Les thermomètres à ultrasons ont un domaine d'utilisation très large. Ils permettent de mesurer des températures de volumes de gaz entre 1800K et 15000K. Ils s'appuient sur la dépendance à la température du milieu de propagation de la vitesse des ultrasons. En connaissant la distance entre l'émetteur et le récepteur et la masse molaire du gaz, il est possible de calculer la température à partir de la loi issue des travaux de Lynnworth et Carnevale [**18**] :

$$\mathrm{v} = \sqrt{\frac{\gamma R T}{M}} \qquad \text{Eq. I-4}$$

Avec v la vitesse de propagation de l'onde ultrasonique [m.s^{-1}], γ le coefficient isentropique du milieu [s.u.], $R = 8{,}3144621$ la constante des gaz parfaits [J.mol^{-1}.K^{-1}], T la température [K] et M la masse molaire du milieu de propagation [g.mol^{-1}].

Cette technique est très adaptée aux températures élevées puisque elle permet des mesures de températures jusqu'à 15000K. Cependant, deux difficultés émergent :

- Le signal est intégré sur le long de la colonne de propagation de l'onde ultrasonique ;
- Elle dépend de la composition du gaz au travers de sa masse molaire.

Cette méthode, adaptée aux températures élevées et simple à mettre en œuvre, ne permet pas d'établir des profils complexes de températures et nécessite un étalonnage sur le milieu étudié ou de connaitre la composition du mélange.

I.A.2.2.b Mesures par spectrométrie d'absorption

Deux mesures de transmission du rayonnement d'un corps noir sont réalisées. Une première mesure sans le gaz étudié et une seconde avec le volume de gaz étudié. Le rapport entre le signal reçu sans le gaz et le signal avec le gaz donne la transmission du milieu. La source est modulée pour éliminer les bruits de mesure. Le coefficient d'absorption dépend de la température et de la concentration. Cette méthode est beaucoup moins sensible à T que la méthode en émission qui dépend exponentiellement de T et est de sensibilité équivalente à la concentration. Elle ne permet donc pas d'obtenir des profils complexes de température ou concentration (par exemple à deux maxima). Les évolutions technologiques en matière de laser accordables et diodes laser accordables sont sources d'application de cette méthode. En effet, la source laser doit balayer un domaine spectral restreint avec une résolution spectrale particulièrement fine. Un seul détecteur permet en quelques minutes d'obtenir un spectre d'absorption du gaz étudié. Le domaine spectral choisi est crucial puisque la molécule étudiée en dépend. En particulier, les raies d'absorptions doivent couvrir le domaine d'absorption de la seule molécule étudiée. La détermination de la température se fait à partir du rapport de l'intensité de deux raies (σ_1 et σ_2). En considérant l'élargissement collisionnel et en négligeant l'élargissement Doppler, la température est déterminée à partir de la relation suivante [**19**]:

$$T = \frac{T_0}{1 - \frac{k_B T_0}{hc(E_{i1} - E_{i2})} ln\left(\frac{ln(\tau_{\sigma_1}) S^N_{\sigma_2}(T_0) \gamma_{L_1}}{ln(\tau_{\sigma_2}) S^N_{\sigma_1}(T_0) \gamma_{L_2}}\right)} \qquad \textbf{Eq. I-5}$$

Avec :

- $\gamma_L = \gamma_{L_0} \frac{P}{P_0} \sqrt{\frac{T_0}{T}}$ $[cm^{-1}]$ la demi-largeur à mi-hauteur de la raie ;
- $E_i [cm^{-1}]$ le niveau d'énergie bas de la transition ;
- S^N_σ $[cm^{-1}.molecules.cm^{-2}]$ l'intensité d'absorption ;
- $\tau_\sigma [s.u.]$ le coefficient de transmission à σ.

Cette relation n'est valable que dans l'hypothèse de :

$$\frac{|\sigma_1 - \sigma_2|}{\sigma_1} \ll 1 \qquad \textbf{Eq. I-6}$$

A partir des coefficients d'absorption monochromatiques que l'on trouve dans des bases de données telles que HITRAN ou HITEMP, il est possible de déterminer la concentration de l'espèce étudiée par le moyen d'un programme d'inversion avec en entrée d'inversion le spectre d'absorption. La Figure I-5 représente à titre d'exemple le spectre d'absorption de la tête de bande du CO_2 pour des températures de 400K, 800K et 1100K.

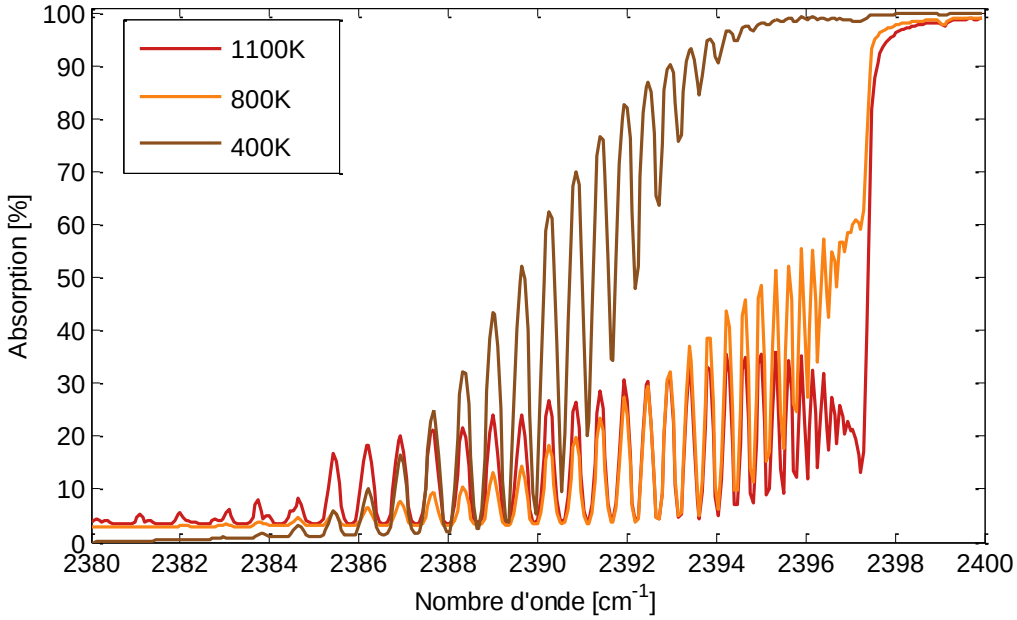


Figure I-5 : Exemples de spectres d'absorption du CO_2 à T = 1100K, T = 800K et T = 400K.

L'inconvénient majeur de cette méthode est l'utilisation d'une source externe placée à l'arrière de la zone de mesure ce qui implique un accès à cette zone. Elle est toutefois adaptée au tube à choc sur lequel le laboratoire travaille.

I.A.2.2.c Mesure par diffusion élastique : diffusion Rayleigh

Il s'agit dans ce paragraphe de décrire comment la diffusion Rayleigh peut être utilisée afin de déterminer les profils de températures d'un milieu gazeux [**20**]. Les processus physiques régissant la diffusion Rayleigh seront décrits au chapitre II.A.2. Dans ce chapitre, nous verrons que la section efficace de diffusion Rayleigh suit une loi en $1/\lambda^4$ et dépend de la polarisation du signal incident et de l'angle d'observation du signal diffusé. Pour une configuration donnée, le signal diffusé dépendra du mélange gazeux, chaque espèce ayant une section efficace de diffusion différente (par exemple, le dihydrogène à une section efficace de 24% de celle de l'air alors que l'octane a une section efficace environ 68 fois supérieure à celle de l'air. Cette méthode appliquée seule peut donc conduire à des incertitudes sur la température supérieures à 20%. Pour un mélange gazeux donné, le signal diffusé dépendra de la concentration du milieu selon la relation suivante [**21**] :

$$S_d \propto A(x) \times N(x)\sigma(\lambda) \qquad \textbf{Eq. I-7}$$

Avec $A(x)$ une fonction dépendante de l'appareillage, de la configuration optique du banc et du signal incident, $N(x)$ la concentration au point d'abscisse x [molécules.m^{-3}] et $\sigma(\lambda)$ la section efficace de diffusion [m²] à la longueur d'onde du signal incident λ [m].

Or, pour des flammes à pression ambiante, la loi des gaz parfait s'applique.

$$N(x) = \frac{P(x)}{k_B T(x)} \qquad \textbf{Eq. I-8}$$

Avec k_B la constante de Boltzmann, $T(x)$ la température [K] et P(x) la pression [Pa].

Le signal diffusé est donc inversement proportionnel à la température :

$$S_d \propto A(x) \times \sigma(\lambda) \times \frac{P(x)}{k_B T(x)} \qquad \textbf{Eq. I-9}$$

Cette méthode permet la détermination de profils de températures avec des résolutions inférieures au millimètre jusqu'au kilomètre selon la configuration choisie. En rétrodiffusion, la résolution sera dépendante de la durée de l'impulsion laser alors qu'en diffusion latérale elle sera dépendante du détecteur [**22**]. Trois difficultés sont à prendre en compte [**23**]:

- Cette méthode est inapplicable directement en présence de particules car le signal diffusé sur les particules supplante le signal diffusé par les molécules et atomes ;
- Le signal diffusé est très faible et nécessite l'utilisation d'un laser avec des impulsions de fortes énergies. En configuration de mesure en rétrodiffusion, une impulsion laser de 30ps permettra une résolution spatiale de 4,5mm, une impulsion de 100fs permettra une résolution spatiale de 15µm et une impulsion laser de 3 ns permettra une résolution spatiale de 45cm. Or, les lasers délivrant des impulsions courtes et énergétiques sont encore rares et très coûteux ;
- Le signal diffusé dépend du mélange gazeux qui, dans une combustion, n'est pas connu en chaque point et en chaque instant. Une incertitude émerge donc.

La diffusion élastique Rayleigh constitue donc une méthode à fort potentiel puisqu'elle ne perturbe pas le milieu et permet des résolutions spatiales fines avec un appareillage situé à un seul endroit. Cependant, utiliser cette technique seule peut conduire à d'importantes incertitudes si la composition du milieu n'est pas connue [**24**] [**25**].

I.A.2.2.d Mesures par diffusion inélastique : Diffusion Raman

La diffusion Raman est un processus non linéaire qui dépend de la molécule sur laquelle le photon est diffusé. Cette dépendance est tant au niveau de la probabilité d'interaction (section efficace de diffusion Raman) qu'au niveau de la longueur d'onde du photon diffusé (voir chapitre II.A.3). En mesurant le signal diffusé sur l'ensemble des longueurs d'onde présentes dans le spectre de diffusion, la diffusion Raman peut être utilisée dans les mêmes configurations que la diffusion Rayleigh pour obtenir des profils de température dans des milieux gazeux [**26**]. Cependant, l'intérêt majeur de cette méthode réside dans la possibilité d'analyser la température et la concentration de chacune des espèces présentes indépendamment les unes des autres [**27**]. En effet, la longueur d'onde du signal diffusé subit un décalage par rapport au signal incident propre à chaque espèce. En choisissant un filtre adapté à la molécule que l'on cherche à analyser, il est possible d'obtenir sa concentration le long de la ligne laser.

Une des principales difficultés liées à l'utilisation de cette méthode est la faiblesse du signal diffusé, environ 1000 fois inférieur à celui de la diffusion Rayleigh. Comme pour la diffusion Rayleigh, la présence de particules dans le milieu analysé rend cette méthode inapplicable. L'analyse d'une espèce en particulier est pré conditionnée par l'existence d'un filtre spectral suffisamment résolu pour n'avoir le signal diffusé que de l'espèce analysée. De plus, des phénomènes de fluorescence induite par le laser peuvent avoir pour conséquence de masquer les signaux issus de la diffusion Raman.

Pour pallier à ces difficultés, la technique de la Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente a été développée…

I.A.2.2.e Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente (DRASC)

La DRASC permet d'augmenter le signal diffusé d'un facteur 5 à 10. Elle repose sur l'excitation simultanée du milieu étudié par deux ondes planes colinéaires de fréquences ω_L (fréquence du laser de pompe) et ω_S (fréquence Stokes). Elle met en jeu 4 photons et peut être décrite en deux étapes [**28**] (voir Figure I-6). Pour que la première étape soit réalisée, la différence $\omega_R = \omega_L - \omega_S$ doit correspondre à la fréquence de résonnance vibrationnelle de la molécule. Si cette étape est vérifiée, la seconde étape fait intervenir un troisième photon à la fréquence ω_L. Celui-ci excite la molécule qui émet un quatrième photon à la fréquence anti-Stokes $\omega_{AS} = (\omega_L - \omega_S) + \omega_L$ [**29**].

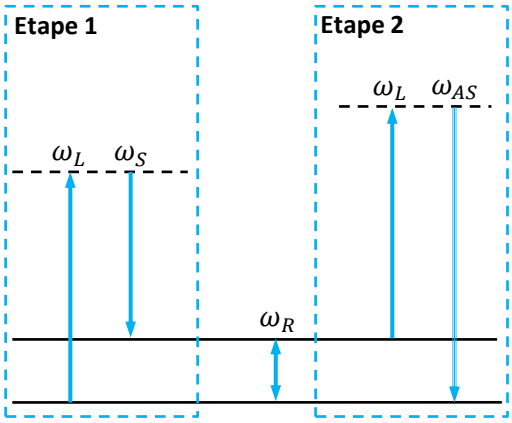


Figure I-6 : Diagramme de niveaux d'énergie mis en œuvre pour la DRASC

En faisant varier la fréquence ω_S, il est possible d'effectuer des mesures de concentration sur l'ensemble des espèces présentes dans le milieu réactionnel en connaissant la position des raies de chacune de ces espèces (la Figure I-7 présente la cartographie de température d'une flamme H_2/Air obtenue par la méthode de la DRASC).

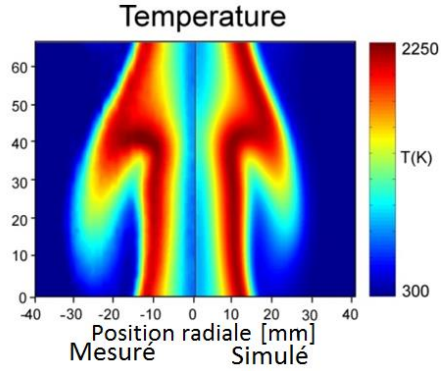


Figure I-7 : Mesure de température d'une flamme hydrogène/air par la méthode DRASC

Cette méthode est forte de sa capacité à mesurer les concentrations des différentes espèces et la température au sein de la région sondée [**30**]. Cependant, les résultats sont traités à partir de spectres issus de bases de données qui ne couvrent pas toutes les molécules et peuvent souffrir d'incertitudes aux hautes températures ou hautes pressions. Enfin, les faisceaux laser incidents doivent se croiser sur un petit volume. Cette méthode n'est donc pas compatible avec des écoulements trop perturbés qui impliquent des changements d'indice et donc un désalignement des faisceaux laser.

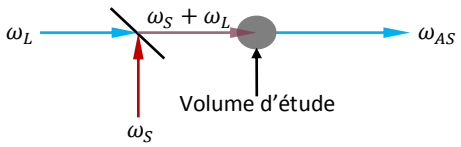


Figure I-8 : Schéma de principe d'un banc de mesure DRASC

I.A.2.2.f 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 passe alors du niveau d'énergie fondamental à un niveau supérieur. Ce dernier est instable et la molécule se désexcite pour revenir à l'état fondamental. Lorsque le niveau d'énergie passe par un état intermédiaire métastable avant de revenir à l'état fondamental, on parle de phosphorescence. Alors que la fluorescence met en jeu des temps de relaxation de l'ordre de 10^{-10} - 10^{-7}s, la phosphorescence concerne des temps de 10^{-6} à 1s. [**31**]

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

- **Emission stimulée :** pour s'affranchir de ce signal, il faut observer le phénomène dans une direction différente de l'axe du laser ;
- **Quenching :** dans le cas des flammes, à hautes pressions et températures, les molécules peuvent se désexciter par collisions avec les autres molécules. Dans ce cas la molécule revient à son état fondamental sans rayonner. La proportion du signal issu du Quenching dans le signal total peut-être très élevée si la concentration ou la pression est élevée. Les niveaux critiques de pression et concentration dépendent de la molécule fluorescente utilisée et doivent donc faire l'objet d'une étude particulière [**32**] ;
- **Fluorescence**

La Figure I-9 représente les différents phénomènes mis en jeu lors d'une mesure par la méthode de la LIF.

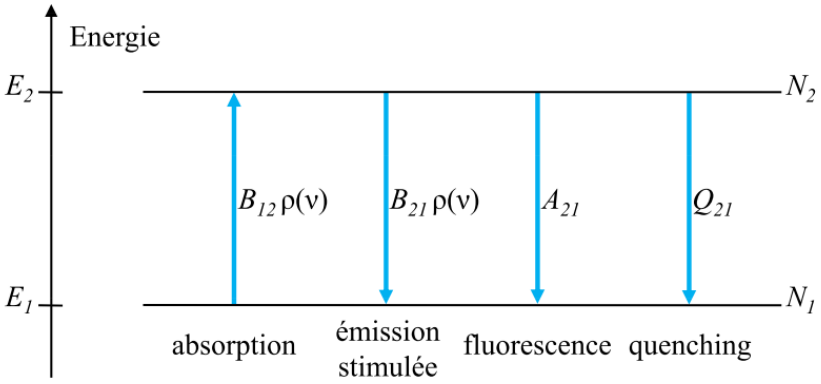


Figure I-9 : Pompage et retour à l'état fondamental d'une molécule fluorescente.

B_{12} $[cm^3.J^{-1}.s^{-2}]$ est le coefficient d'Einstein pour l'absorption de la transition 1 vers 2.

B_{21} $[cm^3.J^{-1}.s^{-2}]$ est le coefficient d'Einstein de l'émission stimulée de la transition 2 vers 1.

A_{21} $[s^{-1}]$ est le coefficient d'Einstein relatif à l'émission spontanée.

Q_{21} $[s^{-1}]$ est le taux de quenching

Q_{21} est difficilement quantifiable car il dépend de la température, de la pression, de la molécule et il existe peu d'études 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 [**33**].

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, NH2, NO_2 ;
- les molécules de CO, CO_2 et I_2.

La Figure I-10 est une cartographie présentée à titre d'exemple d'une mesure de concentration en NO au sein d'une flamme hydrogène/air par la méthode de la LIF.

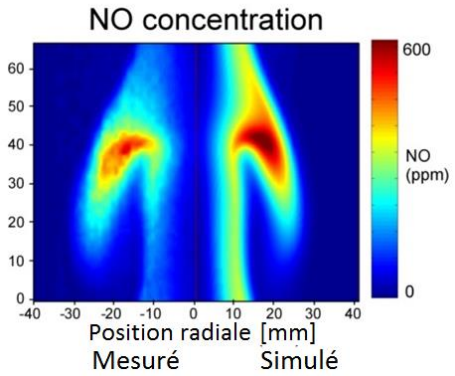


Figure I-10 : Mesure en NO par méthode LIF au sein d'une flamme hydrogène air (même flamme qu'à la Figure I-7)

Un autre avantage de cette méthode est que le signal collecté est de forte intensité. Mais elle peut être limitée dans le cas de flammes à hautes pressions. En raison de nombreux chocs entre les molécules, le signal peut être masqué par le quenching. Les niveaux d'énergie des photons émis par le laser doivent être égaux aux niveaux d'énergie des molécules mises en jeu dans la combustion. De plus, les temps de relaxation sont compris entre 100ps et 600ns ce qui est incompatible avec une résolution spatiale millimétrique qui requière un temps caractéristique de quelques dizaines de picosecondes maximum. Par exemple l'anisole, molécule fluorescente utilisée comme traceur, a un temps de relaxation de l'ordre 19ns et le toluène à un temps de relaxation de 581ns. La Figure I-11 ci-après présente l'effet thermométrique sur l'intensité de fluorescence du CO_2 à pression atmosphérique en fonction de la longueur d'onde [**34**]. Le laboratoire collabore avec l'institut Jean le Rond d'Alembert, laboratoire CNRS associé à l'Université Pierre et Marie Curie dirigé par le Professeur Philippe GUIBERT sur des mesures de température par fluorescence. Cependant, cette molécule n'est pas utilisable ici car les températures maximales mesurables sont trop basses.

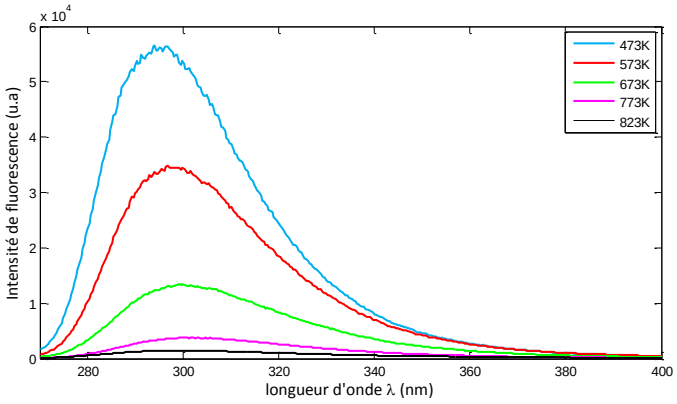


Figure I-11 : Effet de la température sur l'intensité du signal de fluorescence émis par la molécule de CO_2.

I.A.2.2.g Méthode de Kurlbaum (renversement des raies)

La méthode de Kurlbaum [**35**] de mesure de température, qui date du début du 20ème siècle, s'appuie sur la loi de Kirchhoff selon laquelle les coefficients monochromatiques d'absorption et d'émission sont égaux lorsque le système étudié est à l'équilibre thermodynamique. Une source (Corps noir typiquement) à une température T_s excite les molécules du volume étudié (Figure I-12). Si la source n'émet aucun rayonnement, le spectre obtenu sera constitué par les raies d'émission du gaz. Si la source est à une température supérieure à la température du gaz, le rayonnement sera en partie absorbé par le volume étudié et le spectre sera un spectre d'absorption. Si la température du corps noir est égale à celle du gaz, alors aucune raie n'apparaitra et le spectre obtenu suivra la loi de Planck [**9**].

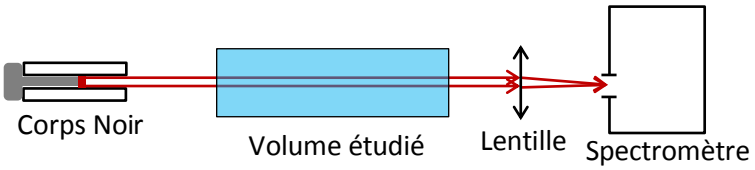


Figure I-12 : Schéma de principe du montage optique de Kurlbaum

L'énergie spectrale reçue par le spectromètre est définie selon la relation suivante (voir démonstration en annexe chapitre VI.D, page 198) :

$$L_\sigma = L_\sigma^o(T_g) + \tau_g \left(L_\sigma^o(T_s) - L_\sigma^o(T_g) \right) \qquad \textbf{Eq. I-10}$$

Avec L_σ $[W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm]$ la luminance mesurée par le spectromètre au nombre d'onde $\sigma[cm^{-1}]$, $L_\sigma^o(T_g)$ la luminance du corps noir à la température $T_g[K]$, $L_\sigma^o(T_s)$ la luminance du corps noir à la température T_s et T_g la température du gaz et de la source respectivement (Voir Figure I-13, [**8**]).

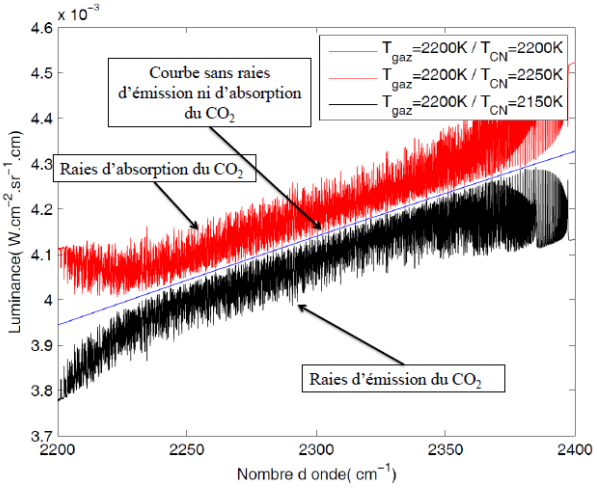


Figure I-13 : Simulation de la méthode de Kurlbaum. Disparition des raies du CO_2.

Cette méthode présente l'avantage de sa simplicité de mise en œuvre. Cependant, elle requiert un milieu étudié homogène en température ce qui est rarement le cas. Si le milieu n'est pas homogène, elle donne la valeur de la température la plus élevée. De plus, pour obtenir la disparition des raies, il est nécessaire de faire varier la température de la source ce qui exclut les mesures sur des phénomènes variant rapidement.

I.A.2.3 Résumé des méthodes non intrusives

	Méthode	Processus physique	Avantages	Inconvénients
Méthode passive	Spectroscopie d'émission	Emission naturelle du rayonnement	Appareillage simple	Mesure intégrée, inversion de l'équation du transfert radiatif
	Spectrométrie d'absorption	Absorption naturelle d'un gaz	Appareillage simple	Source externe, mesure intégrée, inversion de l'équation du transfert radiatif
Méthode active	Thermomètre à ultrasons	Propagation des ultrasons	Appareillage simple Températures élevées	Mesure intégrée, dépend de la composition du mélange
	Diffusion Rayleigh	Diffusion élastique incohérente des photons sur des particules petites devant λ	Résolution spatiale, appareillage simple	Signal faible, diffusions parasites, coût, discrimination des espèces impossible
	Diffusion Raman Spontanée (DRS)	Diffusion inélastique incohérente	Concentration des espèces, appareillage simple	Signal faible, interférence avec la fluorescence, coût
	Diffusion Raman Anti Stokes Cohérente (DRASC)	Diffusion inélastique cohérente des photons	Mesure localisée, signal plus intense que pour la DRS	Interférence, nécessité d'un milieu sans variation d'indice au cours du temps, appareillage complexe et onéreux
	Fluorescence induite par laser	Diffusion inélastique incohérente	Signal intense, résolution spatiale, imagerie	Risque de saturation, terme de quenching, temps de décroissance, Coût
	Kurlbaum	Absorption et transmission des gaz. Renversement des raies.	Signal intense, appareillage simple	Temps de mesure, température maximale dépendante de la température atteignable par la source, mesure de la température maximale.

I.B Etat de l'art propre au laboratoire

La détermination de température et concentration de jets gazeux est un sujet qui s'est inscrit dans les thèmes de recherche du laboratoire à l'époque du Professeur Jean CRABOL, fondateur du L.E.E.E. (Laboratoire Énergie et Économie d'Énergie). Dans les années 1960, il établit la loi liant la température maximale d'une colonne de gaz avec le rapport des luminances émises par le CO_2 au niveau de deux pics d'émission centrés à 2397,1cm^{-1} et 2385cm^{-1} que l'on appelle J_1 et J_2 (voir Figure I-14) [**36**] :

$$T = \frac{944}{ln\left(2\frac{J_1}{J_2}\right)} \qquad \textbf{Eq. I-11}$$

Cette méthode permet d'obtenir la valeur de la température maximale du jet gazeux à partir de deux mesures.

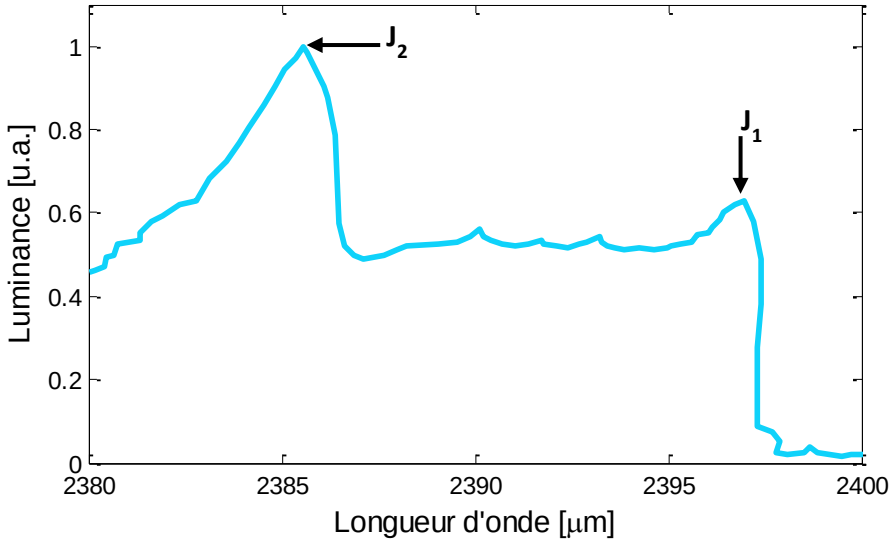


Figure I-14 : Exemple de tête de bande du CO_2 obtenue dans les années 60 par le Pr. CRABOL sur une flamme de gaz naturel à T = 1173K.

En 1988, le Professeur Philippe HERVÉ devient directeur du L.E.E.E. et a dirigé les thèses suivantes. D'abord la thèse d'Olivier JACQUOT dans le cadre d'une thèse avec Alcatel-Alsthom en utilisant directement la méthode du Professeur CRABOL (Eq. I-11) sur une turbine à gaz et sur un statoréacteur en collaboration avec l'Aérospatiale (aujourd'hui MBDA) dont les relations se poursuivent encore. Cette méthode présentait deux limites : elle ne s'appliquait qu'à des jets transparents et c'est la température maximale de la colonne de gaz visée qui est obtenue.

L'objectif suivant était de pouvoir déterminer des profils de températures. Pour cela, le jet gazeux était décomposé en typiquement 10 couches cylindriques concentriques (géométrie en pelure d'oignon). Une série de mesures de l'émission de rayonnement en J_1 (2397,1cm^{-1}), J_3 (2386,2cm^{-1}) et J_4 (2381,6cm^{-1}) était réalisée selon plusieurs lignes de visée et le profil de température était reconstitué couche après couche (voir Figure I-15). Le profil de température obtenu (Figure I-16) montre un résultat de cette méthode sur une flamme avec une part de pré mélange et une part de diffusion dont les profils types présentent des pics de température aux extrémités de la flamme.

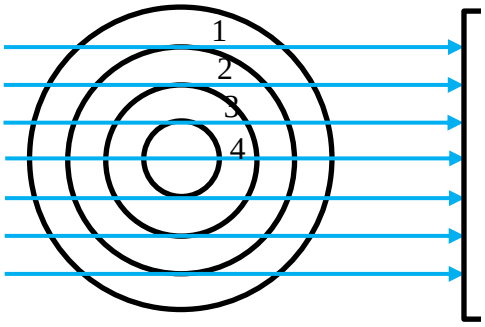


Figure I-15 : Décomposition en pelure d'oignon d'une flamme à symétrie cylindrique afin d'en déterminer couche après couche le profil de température.

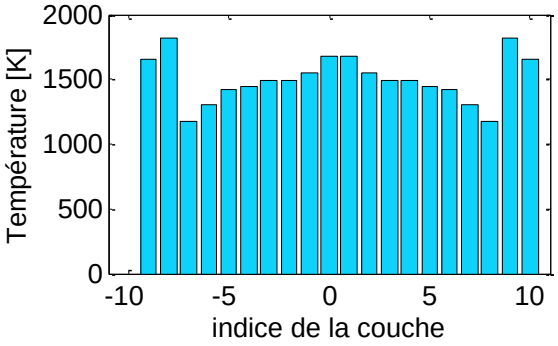


Figure I-16 : Profil de température d'une flamme de bec Mecker.

La température de la couche 1 est obtenue par l'analyse des signaux en J_1, J_3 et J_4 par inversion du modèle direct, liant la température maximale aux luminances en ces trois longueurs d'onde. La température de la couche 2 est obtenue en soustrayant le signal spectral obtenu en couches 1 et ainsi de suite (voir thèse de Jiang HUI réalisée dans le cadre d'une étude pour GDF) [**37**]. La limite de la technique d'inversion est due au fait que les des erreurs commises en chaque couche s'accumulent et deviennent très importantes lorsque l'on s'approche de la couche la plus intérieure. La méthode est limitée aux jets à symétrie cylindrique.

La modélisation de la tête de bande du CO_2 fut ensuite réalisée par Dominique FOURNET dans le cadre de son travail de thèse [**38**]. Il s'est intéressé aussi dans le cadre des statoréacteurs (programme CHAMOIS de MBDA) hydrogène/air au spectre de l'eau. Il avait développé un système de mesures à 3 longueurs d'ondes avec des mesures croisées orthogonales à l'axe du jet du statoréacteur. L'inversion du système à 16 axes de visées et à 3 longueurs d'onde (48 mesures) converge facilement (voir Figure I-17).

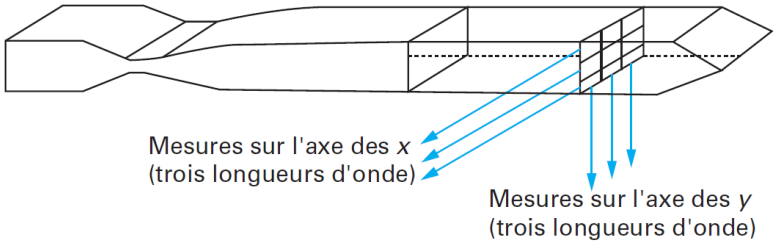


Figure I-17 : Mesure par émission de rayonnement croisée [38]

Les trois longueurs d'onde ont été choisies de telle sorte que leurs intensités de rayonnement en ces trois longueurs d'onde ne soient pas linéairement dépendantes de la température (Figure II-16). Autrement dit, que ces trois réponses en température constituent une base orthogonale (on verra plus que ce sera notre souci dans l'inversion du spectre d'émission de la tête de bande du CO_2). La concentration est éliminée en faisant les rapports des longueurs d'onde.

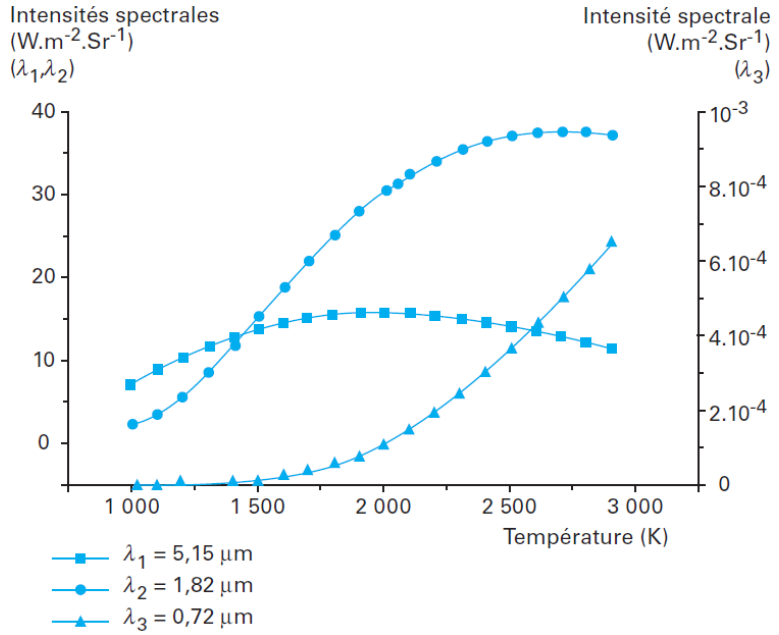


Figure I-18 : exemple de choix de trois raies pour une étude à partir du spectre de l'eau [9]

Des essais ont été réalisés sur le banc d'un statoréacteur mais les industriels, pour des raisons d'encombrement et d'accessibilité, optent pour des systèmes avec une seule ligne de visée. C'est ce qu'a développé Johanna Vally [**6**] en utilisant cette modélisation pour inverser l'équation de transfert de rayonnement sur le domaine de la tête de bande du CO_2 sur une ligne de visée. Elle a appliqué la méthode sur le banc d'essai d'un prototype d'une turbine à gaz sur le site de Farnborough de Rolls Royce. La turbine était alimentée en méthane. Les mesures d'émission de rayonnement ont été comparées indépendamment par des mesures intrusives effectuées par l'organisme anglais correspondant à l'ONERA Français. Les résultats sont présentés en Figure I-19. Le spectre d'émission du CO_2 était ensuite utilisé en référence à l'inversion de l'équation du transfert radiatif en cherchant un profil gaussien en température et concentration.

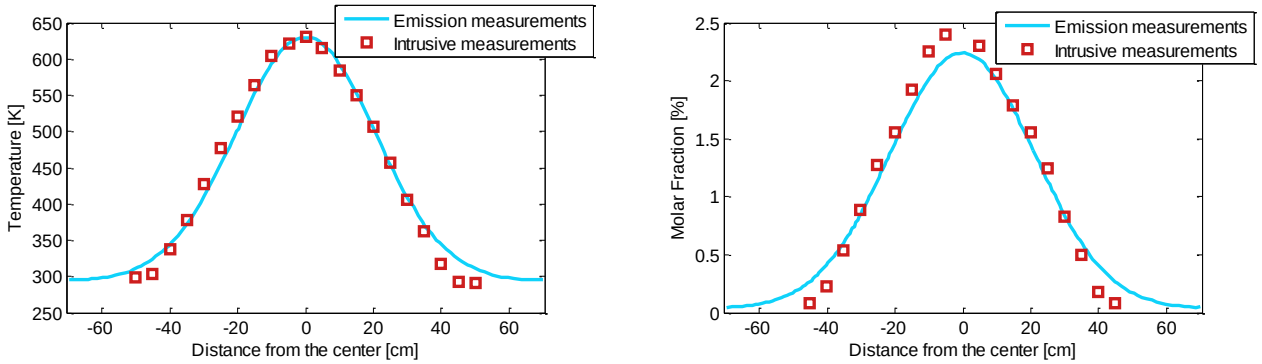


Figure I-19 : Température et fraction molaire mesurées sur un turboréacteur Rolls Royce. Comparaison entre mesure spectrale et intrusive.

Philippe ALKHOURY, doctorant et agrégé de mathématiques, a développé l'outil mathématique d'inversion, aidé par François CLÉMENT (Chercheur à l'I.N.R.I.A. – Institut National de Recherche en Informatique et Automatique) et a permis de connaitre les limites de la méthode [**39**]. Cette limite est définie par la courbe de la Figure I-20 qui nous permet de déterminer le nombre de paramètres identifiables sur la température et la concentration en fonction du bruit de la mesure. Ici, pour un bruit de 1% la méthode

permet de déterminer jusqu'à 6 paramètres. Ces paramètres peuvent par exemple permettre de définir un profil gaussien en température et concentration avec la largeur à mi-hauteur, l'amplitude et la valeur à l'infini. La position spatiale du maximum étant connue.

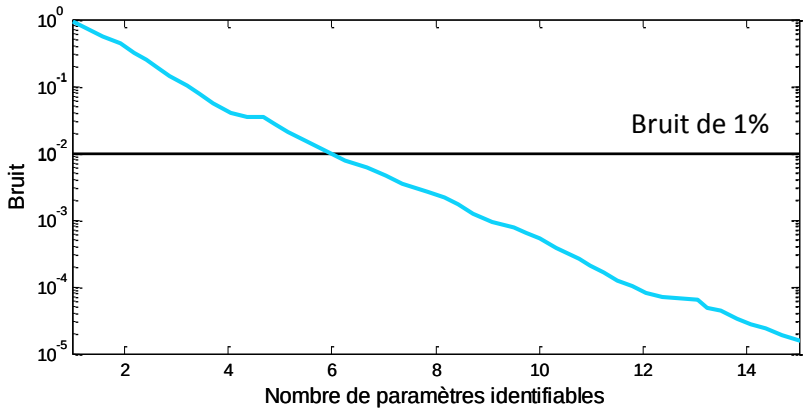


Figure I-20 : Nombre de paramètres identifiables en fonction du bruit de la mesure. Pour un bruit de 1%, il y a 6 paramètres identifiables [7].

Dans le cadre du programme RAPIERE (faisant suite au programme CHAMOIS), en collaboration avec MBDA, Pascale CHELIN a vérifié par l'expérience les bases de données HITRAN et HITEMP des coefficients d'absorption monochromatique de l'eau pour des températures supérieures à 2000K et des pressions comprises entre 2 et 40bars [**40**]. En particulier, elle a mis évidence des différences significatives entre certaines raie d'émission mesurées et celles issues des bases de données HITRAN et HITEMP.

Pour les hautes valeurs de températures et pressions, les bases de données (HITRAN et HITEMP) se sont avérées contenir des erreurs et Jérémy LEBEDINSY a réalisé une base de données expérimentales sur l'eau pour des températures de 1000 à 3000K et pour des pressions de 1 à 40bars entre 12000 et 12500cm^{-1} [**8**].

Afin de pouvoir déterminer des profils de température et concentration avec plus de 6 paramètres (comme par exemple pour des flammes présentant plusieurs pics de température) le laboratoire a choisi de développer une méthode non intrusive couplant l'émission de rayonnement avec un Lidar (méthode brevetée [**41**]). Le dépôt de ce brevet à fait l'objet d'une étude bibliographique approfondie sur les techniques similaires existantes et rien dans le domaine en est sorti. Depuis, les études bibliographiques montrent que rien dans le domaine n'a été publié, venant confirmer le caractère original de la méthode. En 2009, le programme REI CELEP (Caractérisation par Emission et LIDAR d'Ecoulements de Propulseurs) de la DGA (Direction Générale de l'Armement), porté par notre laboratoire LEME avec la participation de l'ONERA, FEMTO et l'institut Jean le Rond d'Alembert, est lancé dans le but de développer l'appareillage.

Le travail de thèse présenté ici débute en 2012 dans le cadre d'un projet initié par le CEA Saclay visant à déterminer les profils de température et concentration dans une flamme sodium/eau. Dans le même temps, les études sur le banc d'essai d'un statoréacteur se poursuivent avec MBDA. L'objectif est double : mesurer la température de paroi interne du statoréacteur (Voir thèse de Lorris NAVELLO [**42**]) et appliquer la méthode couplée à la flamme du statoréacteur.

La réception du laser nécessaire à la méthode couplée a eu lieu début 2013 et a permis une série de mesures en collaboration avec Jérémy LEBEDINSKY sur un turboréacteur de modélisme compatible avec la sécurité du laboratoire [**8**]. Dans le cadre de ce travail, des essais ont été effectués chez MBDA sur un statoréacteur (voir section IV.C).

I.C Choix de la méthode de mesure

Les deux sections précédentes présentent les différentes méthodes de mesure de température et concentration dans des gaz. L'objectif de cette étude est de déterminer des profils de température et concentration avec une précision satisfaisante, typiquement de quelques pourcents sur la température et d'une dizaine de pourcents sur la concentration. L'optimisation du polyptyque : coût, précision de la mesure, résolution spatiale et temps de mesure nécessite le couplage d'au moins deux des méthodes présentées car chacune d'entre elles ne permet pas de satisfaire ces quatre exigences. Les méthodes intrusives sont simples et peu coûteuses mais perturbent le milieu et ne permettent pas de mesures rapides. Les méthodes non intrusives passives ne perturbent pas le milieu et peuvent être rapides mais sont intégrées et ne donnent pas accès aux profils spatiaux. Quant aux méthodes non intrusives actives, elles ne perturbent pas le milieu, sont rapides mais présentent des incertitudes de mesure dues à la méconnaissance du mélange et peuvent être très coûteuses. Elles peuvent s'avérer également très complexes à mettre en œuvre, les rendant inutilisables en milieu industriels comme la DRASC par exemple.

Pour cette étude, initiée par le programme REI CELEP introduit au paragraphe précédent, le laboratoire a retenu deux méthodes que l'on couple afin de bénéficier de l'avantage de chacune d'entre elle et dont le procédé a été breveté par le Professeur Philippe HERVÉ [**41**]. La méthode couplée proposée s'appuie sur la diffusion Rayleigh mise en œuvre dans le cadre d'un LIDAR d'une part et d'une mesure spectrale d'émission de rayonnement d'autre part. La première autorise la résolution spatiale et la seconde la précision sur la température maximale atteinte selon l'axe de visée. Le couplage des deux permet des temps de mesures rapides. Le coût global est important par comparaison aux méthodes intrusives mais les innovations technologiques en cours, tant sur les lasers que sur les caméras et détecteurs rapides, permettra à court terme de les réduire drastiquement.

Le principe de notre méthode est résumé par le schéma de la Figure I-21 ci-après. Il consiste en la mise en œuvre simultanée d'une mesure LIDAR-Rayleigh effectuée à partir d'un laser délivrant des impulsions courtes de 30ps à 532nm (4,5mm de résolution spatiale en rétrodiffusion) et d'une caméra Streak (2ps de résolution temporelle). Un spectromètre à transformée de Fourier permet la mesure spectrale de l'émission de rayonnement avec une résolution maximum de 0,125cm^{-1}.

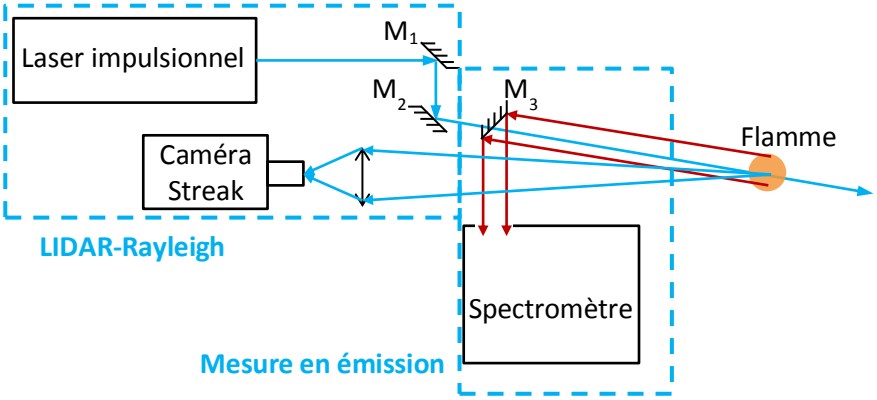


Figure I-21 : Schéma du montage type de notre méthode couplée LIDAR-Rayleigh/émission de rayonnement

Deux problématiques apparaissent à l'étape du post traitement :

- L'inversion de l'équation du transfert radiatif à partir de la mesure du spectre d'émission ;
- Le couplage de la mesure LIDAR-Rayleigh et de la mesure de spectre.

Le chapitre III ci-après présente dans le détail la méthode couplée ainsi que les outils développés afin de s'affranchir des deux problématiques introduites plus haut.

Les premiers essais de mesures couplées ont été menés en commun avec Jérémy LEBEDINSKY [**8**] qui s'occupait de la paramétrisation de l'appareillage pour la mesure spectrale alors que je configurais l'appareillage de la mesure Lidar. Deux mesures ont été réalisées en collaboration :

- Une mesure sur une flamme Méthane/air continue de 15cm de long ;
- Une mesure sur les gaz d'échappement d'un petit turboréacteur (modèle JetCat 100px).

Les résultats obtenus sur les gaz d'échappement du petit turboréacteur avec le traitement décrit au chapitre III sont présentés au chapitre IV.

Chapitre II : Éléments théoriques

Le chapitre II présente les éléments théoriques utilisés pour le développement de la méthode présentée dans ce travail de thèse. Il commence par les principales interactions photon-matière et développe en particulier les lois physiques régissant la diffusion Rayleigh, au cœur de la mesure Lidar (II.A) Il introduit des rappels sur la combustion avec notamment les différents types de flammes et la définition de la température adiabatique de flamme (II.B). La technique Lidar fait l'objet du troisième paragraphe (II.C). Enfin, nous faisons un rappel sur le rayonnement thermique, paragraphe propre à la mesure en émission de rayonnement (II.C).

II.A Interaction photon-particule photon-molécule

Les principaux processus d'interaction photon-particule sont présentés dans ce chapitre. Les particules considérées ne sont pas chargées et les photons sont dans des gammes de longueur d'onde allant du proche UV au proche IR. Le Tableau I-1 ci-dessous présente les indicatrices de diffusion types en fonction de l'interaction considérée allant de la diffusion Rayleigh jusqu'à l'optique géométrique en passant par la diffusion de Mie et celle de Fraunhofer.

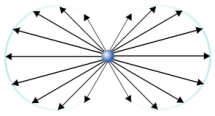
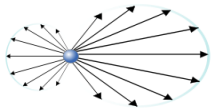
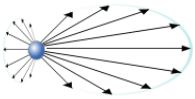
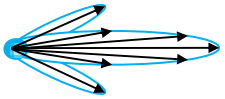
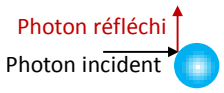
Théorie de la diffusion de Mie				
$\lambda \gg d$	$\lambda \approx d$	$\lambda < d$	$\lambda \ll d$	$\lambda \ll d$
Approximation de Rayleigh 	Situation intermédiaire entre Rayleigh et Mie 	Diffusion de Mie 	Diffusion de Fraunhofer 	Optique géométrique 

Tableau II-1 : Indicatrices de diffusion Rayleigh-Mie [43]

II.A.1 Diffusion de Mie

La théorie de la diffusion de Mie décrit d'une façon exhaustive les processus de diffusion de photons sur des particules sphériques de toutes dimensions. Cependant, elle est communément utilisée pour des particules dont le rayon est compris entre 0,1 et 10 fois la longueur d'onde. Pour des particules ou des objets de dimensions très grandes devant la longueur d'onde incidente, ce sont les lois de la diffusion de Franhofer ou de l'optique géométrique qui s'appliquent. Dans le cas d'une particule de rayon inférieur à 10% de la longueur d'onde, il convient d'utiliser la loi de diffusion décrite par Rayleigh. Dans la suite nous considèrerons des particules sphériques.

Le paramètre de taille x, central pour la description de la diffusion de Mie, est défini comme suit :

$$x = \frac{2\pi n r}{\lambda} \qquad \textbf{Eq. II-1}$$

Avec r le rayon de la particule, n l'indice de réfraction du milieu dans lequel l'onde incidente se propage et λ la longueur d'onde incidente.

II.A.1.1 Caractérisation du phénomène

Lorsqu'une onde électromagnétique plane de longueur d'onde λ arrive à la surface d'une particule, les rayons lumineux qui la constituent peuvent être réfléchis, réfractés deux fois, réfractés puis réfléchis puis réfractés, réfractés puis réfléchis deux fois puis réfractés, diffractés, etc… (voir Figure II-1) [**44**].

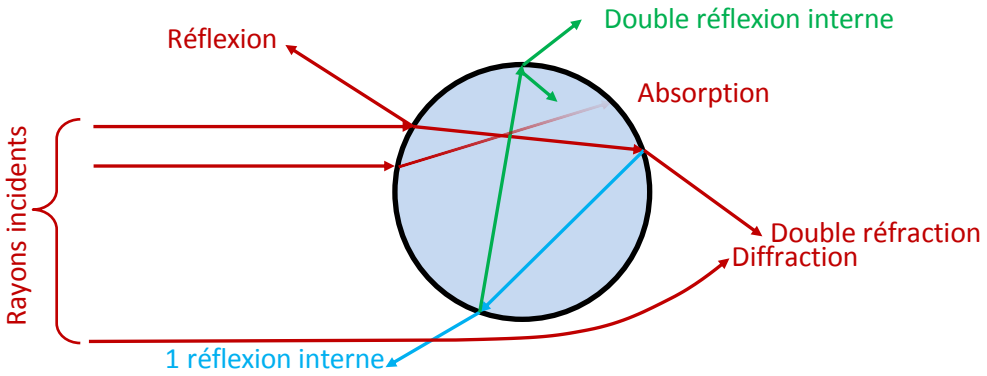


Figure II-1 : Processus de la diffusion de Mie

La théorie de la diffusion de Mie tient compte de l'ensemble de ces processus.

II.A.1.2 Section efficace

Le paramètre clé de l'interaction photon-particule est la section efficace de diffusion, homogène à une surface. La section efficace traduit une probabilité d'interaction entre la particule et le photon. A partir de l'équation d'onde et des équations de Maxwell, Gustave Mie fut le premier en 1908 à fournir une solution analytique au problème de propagation d'une onde plane au travers d'une sphère.

La section efficace de diffusion de Mie en fonction de l'angle de diffusion θ qui en dérive est donnée par [**45**] [**46**] [**44**] :

$$\sigma_{\text{Mie}} = \frac{|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2}{2k^2} \qquad \textbf{Eq. II-2}$$

avec :

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{2n+1}{n(n+1)}\right) [a_n(x,n)\pi_n(\cos\theta) + b_n(x,n)\tau_n(\cos\theta)]$$
$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{2n+1}{n(n+1)}\right) [b_n(x,n)\pi_n(\cos\theta) + a_n(x,n)\tau_n(\cos\theta)] \qquad \textbf{Eq. II-3}$$

Et avec,

$$a_n = \frac{\mu m^2 j_n(mx)[x j_n(x)]' - \mu_1 j_n(x)[mx j_n(mx)]'}{\mu m^2 j_n(mx)\left[x h_n^{(1)}(x)\right]' - \mu_1 h_n^{(1)}(x)[mx j_n(mx)]'} \qquad \textbf{Eq. II-4}$$

$$b_n = \frac{\mu_1 j_n(mx)[x j_n(x)]' - \mu j_n(x)[mx j_n(mx)]'}{\mu_1 j_n(mx)\left[x h_n^{(1)}(x)\right]' - \mu h_n^{(1)}(x)[mx j_n(mx)]'}$$

Où j_n sont les fonctions de Bessel sphériques de première espèce, $h_n^{(1)}$ sont les fonctions de Hankel sphérique, μ_1 et μ les perméabilités magnétiques de la particule et du milieu environnant, respectivement.

Et π_n et τ_n sont définies par :

$$\begin{cases} \pi_0 = 0 \\ \pi_n = 1 \\ \pi_n(\theta) = \dfrac{2n-1}{n-1}\cos\theta\,.\,\pi_{n-1} - \dfrac{n}{n-1}\pi_{n-2} \\ n\cos\theta\,.\,\pi_n - (n-1)\pi_{n-1} \end{cases}$$ **Eq. II-5**

Par exemple, pour une particule d'eau d'indice complexe $n = 1{,}33 + 1{,}25.10^{-7}j$ [**46**] nous obtenons la section efficace de rétrodiffusion en fonction du paramètre de taille de la Figure II-2 via le programme de simulation de diffusion de Mie réalisé par Christian Mätzler de l'Institut de physique de Berne et disponible en ligne [**47**].

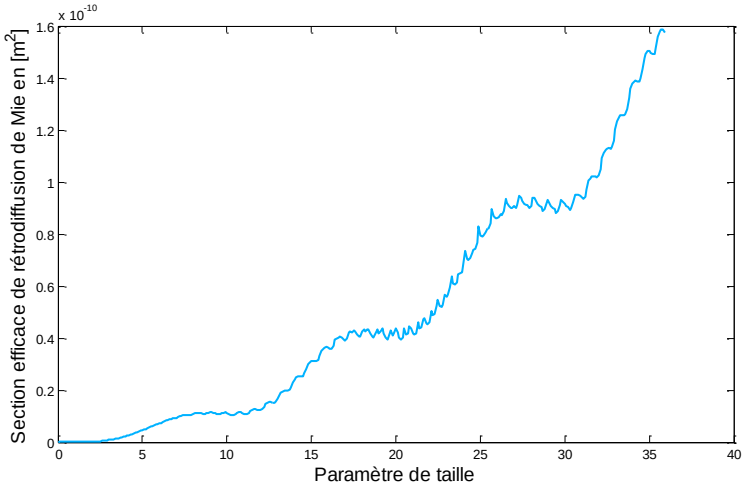


Figure II-2 : Section efficace de rétrodiffusion de Mie sur une particule sphérique d'eau pour une onde incidente de longueur d'onde de 800nm.

II.A.1.3 Libre parcours moyen

On définit le libre parcours moyen de diffusions de Mie par la distance moyenne parcourue par un photon entre deux interactions :

$$l = \frac{1}{N\sigma}$$ **Eq. II-6**

avec *N,* densité en particules (m^{-3}) et σ, section efficace de diffusion de Mie (m^2).

Application : On fait l'hypothèse que le signal issu de la diffusion Rayleigh sera détectable si le libre parcours moyen de diffusion de Mie l pour l'ensemble des particules présentes est supérieur ou égal à la longueur de colonne de gaz analysée d, soit :

$$\frac{1}{N\sigma} \geq d$$ **Eq. II-7**

On définit la fraction volumique de particules par la relation :

$$\eta = \frac{4}{3}\pi r^3 N$$ **Eq. II-8**

Avec r, le rayon de la particule (m) et N, le nombre de particules par unité de volume (m^{-3}).

A partir des relations des équations Eq. I-7 et Eq. I-8, on obtient :

$$\eta \leq \frac{4}{3}\frac{\pi r^3}{\sigma(r)d} \qquad \textbf{Eq. II-9}$$

En combinant cette relation avec celle de l'équation Eq. II-1, on obtient :

$$\eta \leq \frac{1}{6\pi^2}\frac{x^3\lambda^3}{d\sigma(x)} \qquad \textbf{Eq. II-10}$$

Dans notre hypothèse, la diffusion Rayleigh sera observable si la fraction volumique en particule pour un rayon de particule donné est inférieure à $\frac{1}{6\pi^2}\frac{x^3\lambda^3}{d\sigma(x)}$.

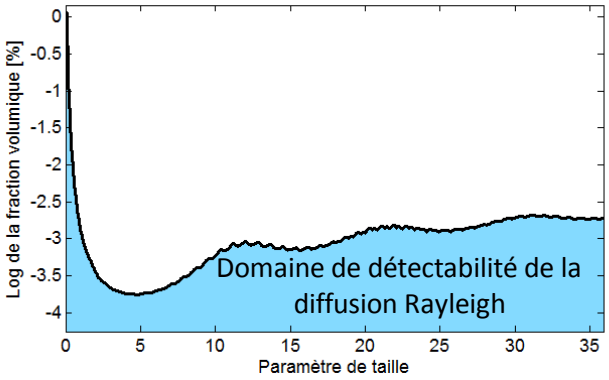


Figure II-3 : Domaine de détectabilité de la diffusion Rayleigh selon la fraction volumique des particules et du paramètre de taille pour une longueur d'onde de 532nm et une colonne de gaz analysée sur 30cm. Echelle logarithmique en ordonnées.

Dans une atmosphère normale, la fraction volumique en particules est inférieure au seuil critique et la diffusion Rayleigh peut être observée [**48**].

II.A.2 Diffusion élastique : diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh de la lumière s'inscrit dans le cadre des diffusions élastiques, c'est-à-dire que la longueur de l'onde émise est égale à celle de l'onde diffusée. Elle est valable pour des paramètres de taille défini par $x < 0{,}63$ (ce qui correspond à des particules dont le rayon est inférieur à 10% de la longueur d'onde). Elle est un cas particulier de la diffusion de Mie décrivant le signal diffusé sur une particule sphérique quel que soit son rayon. La section efficace de diffusion Rayleigh dépend de la particule éclairée au travers de son indice de réfraction et de l'onde incidente au travers d'une proportionnalité à l'inverse de la puissance quatrième de la longueur d'onde. *Comment décrire le phénomène ?*

Le phénomène de diffusion Rayleigh se caractérise par l'interaction entre un signal lumineux et une molécule. Deux approches sont possibles, la première fait référence à l'électromagnétisme (paragraphe II.A.2.1.a) alors que la seconde fait référence à la mécanique quantique (paragraphe II.A.2.1.b).

II.A.2.1 Caractérisation du phénomène

II.A.2.1.a Approche électromagnétique

On considère ici une onde électromagnétique incidente décrite par un champ magnétique et électrique de longueur d'onde λ. La condition $r < 0.1\lambda$ s'illustre par le fait qu'à chaque instant *t*, la molécule est plongée dans un champ électrique homogène au sein de la particule. On va alors considérer la création d'un moment dipolaire provoqué par le déplacement différencié du centre de gravité des charges électriques, positives et négatives [**49**] [**50**]. La molécule rayonnera comme une antenne dipolaire (voir Figure II-4) en réémettant dans toutes les directions une onde de même longueur que celle incidente.

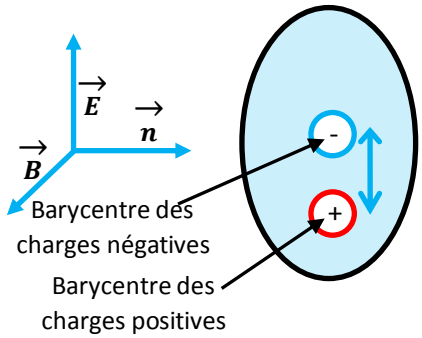


Figure II-4 : Approche électromagnétique de la diffusion Rayleigh. Rayonnement dipolaire.

II.A.2.1.b Approche quantique

L'approche quantique s'articule autour de l'interaction entre un photon de pulsation ω et une molécule (voir Figure II-5). L'énergie du photon $\hbar\omega$ est absorbée par la molécule conduisant le système global (photon + molécule) à une énergie $\boldsymbol{E_a + \hbar\omega}$. Simultanément, un photon d'énergie $\boldsymbol{\hbar\omega}$ est émis conduisant le système « molécule » à l'énergie $\boldsymbol{E_a}$. Notons que les conditions de Rayleigh ne sont réunies qu'aux basses énergies, soit $\boldsymbol{\hbar\omega \ll E_I, |E_b - E_a|}$ où E_I est l'énergie d'ionisation et $|E_b - E_a|$ la différence d'énergie entre les niveaux *a* et *b* [**51**]. *a* peut-être aussi bien le niveau fondamental qu'un niveau excité. Nous sommes en diffusion résonante lorsque la ligne pointillée est confondue avec celle du niveau b.

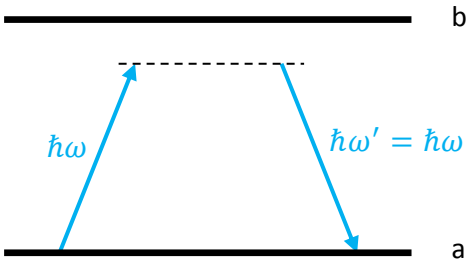


Figure II-5 : Approche quantique de la diffusion Rayleigh. Niveaux d'énergie.

La Figure II-6 ci-dessous est une représentation schématique des différentes transitions pouvant opérer au sein d'une molécule.

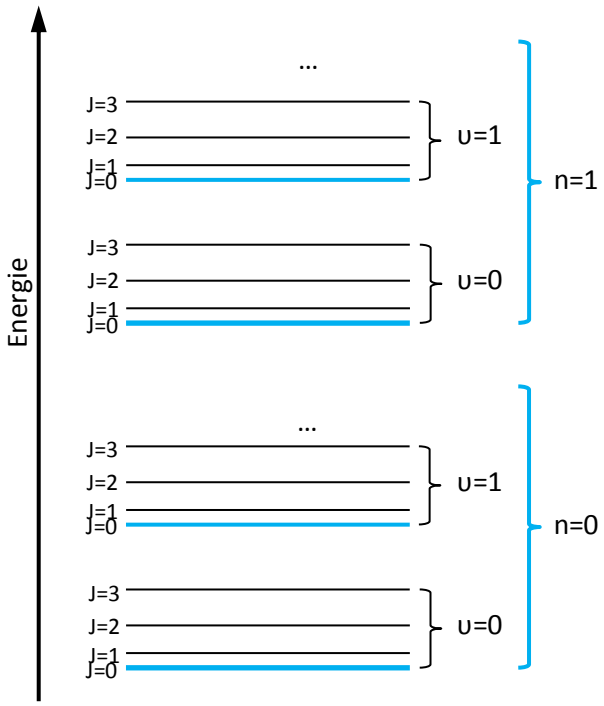


Figure II-6 : Transitions électroniques et de rotation-vibration. n : niveaux électroniques, υ : niveaux vibrationnels, J : niveaux rotationnels

La section efficace de diffusion se définit au travers de la probabilité d'interaction entre le photon et la molécule et est de l'ordre de 10^{-26} cm².

II.A.2.2 Section efficace différentielle

La section efficace différentielle de diffusion Rayleigh $\sigma_\theta(\lambda)\ [cm^2.sr^{-1}]$ en fonction de l'angle solide Ω est communément définie comme suit [**20**] [**52**] [**53**] :

$$\frac{d\sigma_\theta(\lambda)}{d\Omega} = \frac{9\pi^2}{\lambda^4 N^2} \cdot \frac{(n(\lambda)^2-1)^2}{(n(\lambda)^2+2)^2} \cdot \sin^2(\theta) \cdot \left(\frac{3}{3-4\alpha}\right) \qquad \textbf{Eq. II-11}$$

Avec $\lambda\ [m]$ la longueur d'onde, $N\ [molécules.m^{-3}]$ le nombre de molécules par unité de volume, $n(\lambda)\ [sans\ unité]$ l'indice de réfraction du milieu en fonction de la longueur d'onde, θ l'angle entre le rayon diffusé et la polarisation de la lumière incidente, $\alpha\ [sans\ unité]$ le facteur de dépolarisation de l'espèce considérée et Ω [sr] l'angle solide.

Le facteur $\left(\frac{3}{3-4\alpha}\right)$ permet de tenir compte de l'anisotropie des particules [**54**]. Le facteur de dépolarisation α (appelé parfois le facteur de King) peut varier de 0 pour des particules isotropes (atomes, molécules de méthane par exemples) à 0,15 pour des particules fortement anisotropes [**20**]. Pour des molécules telles que H_2O, CO_2, H_2, N_2, CO, O_2, et beaucoup d'autres, le facteur de dépolarisation conduit à une augmentation de la section efficace de diffusion inférieure à 5% [**55**]. **Nous négligerons donc ce facteur de correction dans la suite.**

De plus, la définition de la section efficace différentielle ci-dessus (Eq. II-11) tient compte des effets de champs électrostatiques locaux via le facteur de Lorentz-Lorenz ou Clausius-Mossotti [**56**]. Dans le cadre de la diffusion Rayleigh, le rayon des particules (molécules, atomes) diffusantes est très inférieur à la longueur

d'onde. Par conséquent, à la pression atmosphérique, une sphère de rayon λ contient un grand nombre de particules. Chaque molécule est exposée à un champ électrique dû à la diffusion du champ électrique incident sur un grand nombre de molécules voisines. Les champs sont presque en phase et l'étude statistique de ces champs donne la formule de Lorentz-Lorenz [**44**] :

$$4\pi\alpha N = \frac{3(n^2-1)}{n^2+2} \qquad \textbf{Eq. II-12}$$

Cependant, la contribution du facteur de Lorentz-Lorenz est inférieure à 0,035% pour la majorité des gaz ($n(\lambda) \approx 1$) comme le montre la Figure II-7.

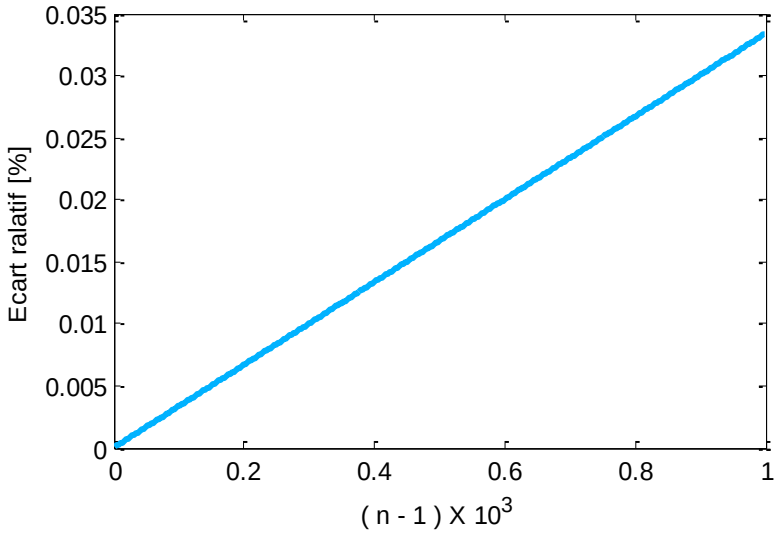


Figure II-7 : Ecart relatif sur la section efficace de diffusion différentielle entre la prise en compte du facteur de Lorentz-Lorenz ou non en fonction de l'indice de réfraction

La formule de la section efficace différentielle de diffusion Rayleigh peut alors se simplifier :

$$\frac{d\sigma(\lambda)}{d\Omega} = \frac{4\pi^2(n(\lambda)-1)^2}{\lambda^4 N^2} \cdot sin^2(\theta) \qquad \textbf{Eq. II-13}$$

Cette définition de la section efficace différentielle de diffusion Rayleigh Eq. II-13 nous renseigne sur la forme des profils de diffusion en fonction de l'angle entre le rayon incident et la polarisation de la lumière incidente :

- Si l'observateur se place dans un plan orthogonal à la polarisation de la lumière incidente ($\theta = \frac{\pi}{2}$), alors le profil de diffusion est maximal et indépendant de l'angle entre le rayon incident et le rayon diffusé (voir Figure II-8 (a)).
- Si l'observateur se place dans le plan de la polarisation incidente, alors le profil de diffusion sera dépendant de l'angle entre le champ électrique et le rayon diffusé. En particulier, l'intensité diffusée sera maximale dans la direction du rayon incident et nulle dans une direction perpendiculaire (voir Figure II-8 (b)).

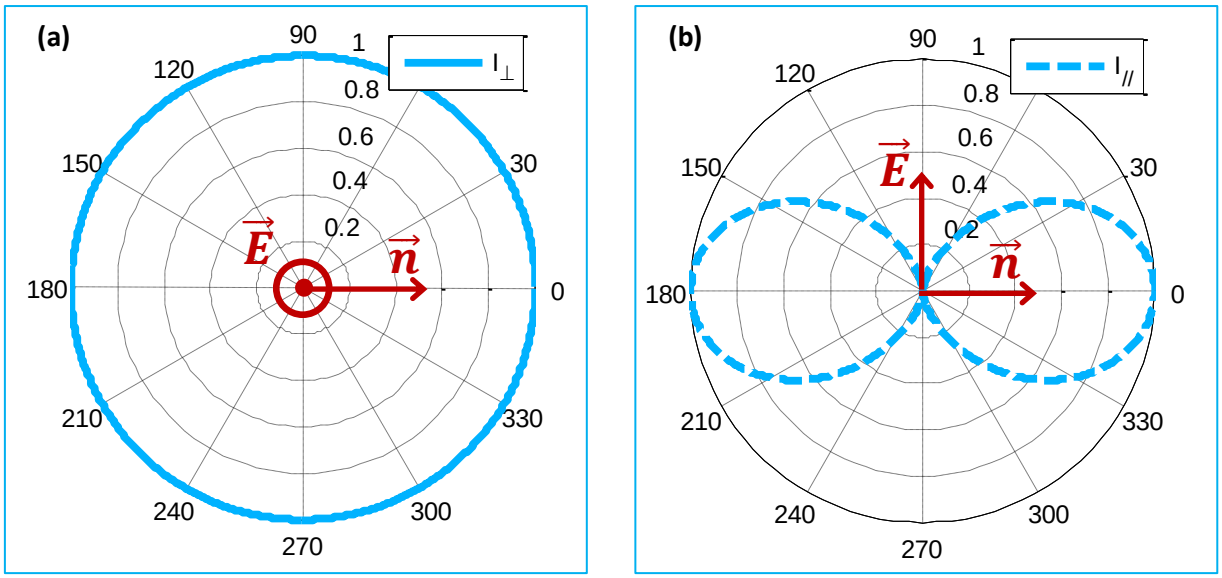


Figure II-8 : Profil de section efficace angulaire de diffusion Rayleigh en fonction du plan d'observation du signal diffusé. Le vecteur $\vec{n}$ indique le sens de propagation du rayon incident. La figure (a) place l'observateur dans un plan orthogonal au champ électrique incident. La figure (b) place l'observateur dans le plan du champ électrique incident.

Dans le cas d'une lumière incidente naturelle, le profil de diffusion sera la moyenne des deux profils présentés ci-dessus Figure II-9.

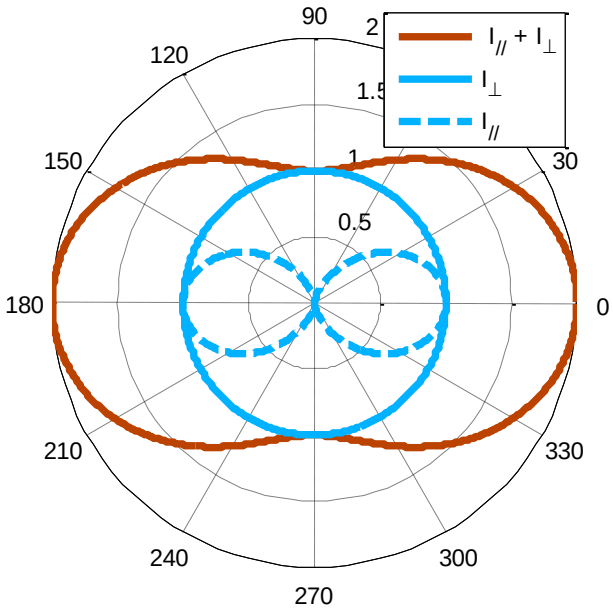


Figure II-9: Profil de diffusion en fonction de l'angle entre le rayon incident et le rayon diffusé pour une lumière incidente naturelle.

Cette caractéristique est importante puisque les lasers utilisés dans ce travail de thèse sont polarisés linéairement. Il faudra donc faire en sorte que la polarisation du laser ne soit pas colinéaire avec la direction d'observation (droite entre le point de diffusion et la caméra).

En intégrant sur tout l'espace la section efficace différentielle nous obtenons la section efficace de diffusion totale [3] [4] :

$$\sigma(\lambda) = \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} \sigma_\theta(\lambda) sin(\theta) d\varphi d\theta$$

$$\sigma(\lambda) = \frac{32\pi^3 (n(\lambda)-1)^2}{3\lambda^4 N^2} \qquad \textbf{Eq. II-14}$$

Enfin, il est utile de considérer la section efficace de diffusion relative à l'air σ_i^r :

$$\sigma_i^r(\lambda) = \frac{\frac{d\sigma_i(\lambda)}{d\Omega}}{\frac{d\sigma_{air}(\lambda)}{d\Omega}} \qquad \textbf{Eq. II-15}$$

Soit finalement

$$\sigma_i^r(\lambda) = \frac{(n_i(\lambda)-1)^2}{(n_{air}(\lambda)-1)^2} \qquad \textbf{Eq. II-16}$$

II.A.2.3 Dépendance de la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air à la température d'un volume de gaz

La section efficace différentielle de diffusion Rayleigh dépend du carré du nombre de particules par unité de volume. A faible pression, cette dépendance peut être reliée par la loi des gaz parfaits à la température T du gaz (Voir le paragraphe VI.B en annexe pour la justification du choix de la loi des gaz parfait) :

$$N = \frac{P}{k_B T} \qquad \textbf{Eq. II-17}$$

Avec $P\ [Pa]$ la pression, $k_B\ [m^2.Kg.s^{-2}.K^{-1}]$ la constante de Boltzmann, $T\ [K]$ la température et $N\ [molécules.m^{-3}]$ la concentration en molécules.

D'autre part, l'indice de réfraction d'un gaz parfait est lié à la température par la loi de Gladstone-Dale :

$$(n-1)T = KP \qquad \textbf{Eq. II-18}$$

Avec $P\ [Pa]$ la pression, $T\ [K]$ la température et $n\ [sans\ unité]$ l'indice de réfraction et $K\ [m^{-1}Kg^{-1}s^2K]$ une constante.

Il vient que le rapport $\frac{(n(\lambda)-1)^2}{N^2}$ dans l'équation Eq. II-13 est indépendant de la température et de la pression.

Toutefois, ce raisonnement s'applique du point de vue macroscopique. Du point de vue de la molécule, une augmentation de la température du gaz influe sur ses modes de vibration-rotation. Ses niveaux d'énergies rotationnels et vibrationnels sont statistiquement supérieurs et conduisent à une augmentation de la section efficace de diffusion. Cependant, on montre que pour une molécule de méthane, l'augmentation de la section efficace est de l'ordre de $2.10^{-5}\%$ par Kelvin [**20**], soit une élévation de 4% environ entre 300K et 2000K. Pour des molécules simples, la variation de section efficace est essentiellement due à l'étirement centrifuge et n'est pas susceptible d'augmenter plus que pour la molécule de méthane [**57**].

II.A.2.4 Dépendance de la section efficace de diffusion Rayleigh à la longueur d'onde

La section efficace différentielle de diffusion Rayleigh présente une dépendance en $1/\lambda^4$ à la longueur d'onde λ. La longueur d'onde joue-t-elle un rôle considérable sur la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air ?

Dans sa thèse portant sur les techniques lasers pour les diagnostics de combustions, Johan Zetterberg de l'Université de Lund en Suède [**58**] a listé la section efficace différentielle de diffusion Rayleigh ainsi que la section efficace relative à l'air des principales espèces mises en jeu dans une combustion Hydrocarbure/Air ou Hydrogène/Air à 254nm. Nous cherchons à savoir si l'application de la loi en $1/\lambda^4$ suffit à définir les sections efficaces à différentes longueurs d'ondes à partir de celles à 254nm.

Les différences de sections efficaces proviennent à la fois du facteur de dépolarisation et de l'indice de réfraction. Comme nous l'avons vu au début du chapitre II.A.2.2, la correction liée au facteur d'anisotropie est négligeable. Nous nous intéressons donc ici à l'influence de la longueur d'onde sur la section efficace de diffusion relative à l'air. En d'autres termes, si σ_ξ et σ_{air} sont les sections efficaces de diffusion Rayleigh pour une longueur d'onde λ pour une espèce ξ, le rapport $\sigma_\xi / \sigma_{air}$ est-il dépendant de la longueur d'onde ?

L'indice de réfraction d'un air sec standard en fonction du nombre d'onde est défini comme suit [**59**] :

$$n_{air}(\upsilon) = 1 + 10^{-8}\left(\frac{5791817}{238.0185 - \upsilon^2} + \frac{167909}{57.362 - \upsilon^2}\right) \qquad \textbf{Eq. II-19}$$

Avec $n_{air}[sans\ unité]$ l'indice de réfraction et υ $[cm^{-1}]$ le nombre d'onde.

L'indice de réfraction de l'oxygène en fonction du nombre d'onde est défini comme suit [**52**] :

$$n_{O_2}(\upsilon) = 1 + 10^{-8}\left(A + \frac{B}{40{,}9 - \upsilon^2}\right) \qquad \textbf{Eq. II-20}$$

Avec $n_{O_2}[sans\ unité]$ l'indice de réfraction, υ $[\mu m^{-1}]$ le nombre d'onde et

$$\left.\begin{array}{c} A = 21351{,}1 \quad B = 218567{,}0 \quad si\ \lambda > 546\ nm \\ A = 20564{,}8 \quad B = 248089{,}9 \quad si\ 546\ nm > \lambda > 288\ nm \\ A = 22120{,}4 \quad B = 203187{,}6 \quad si\ 288\ nm > \lambda > 221\ nm \\ A = 23796{,}7 \quad B = 168988{,}4 \quad si\ 221\ nm > \lambda \end{array}\right\}$$

L'indice de réfraction de l'azote en fonction du nombre d'onde est défini comme suit [**60**] :

$$n_{N_2}(\upsilon) = 1 + 68{,}5520.10^{-6} + \frac{32431{,}57.10^{-6}}{144 - \upsilon^2} \qquad \textbf{Eq. II-21}$$

Avec $n_{N_2}[sans\ unité]$ l'indice de réfraction et υ $[\mu m^{-1}]$ le nombre d'onde.

La Figure II-10 et la Figure II-11 ci-dessous correspondent à l'erreur relative $e(\lambda)$ [%] entre la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air pour $250nm < \lambda < 800nm$ et la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air à $254nm$.

$$e(\lambda) = 100\frac{\sigma_i^r(\lambda) - \sigma_{air}^r(\lambda)}{\sigma_{air}^r(\lambda)} \qquad \textbf{Eq. II-22}$$

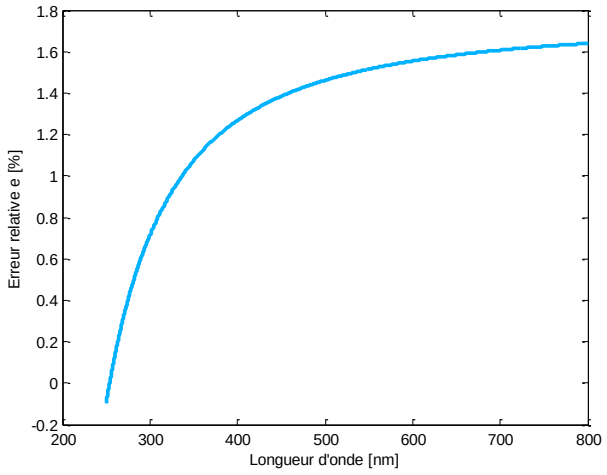


Figure II-10 : Ecart relatif entre la section efficace de diffusion Rayleigh de l'azote relative à l'air en fonction de la longueur d'onde par rapport à la section efficace de l'azote relative à l'air à 254nm

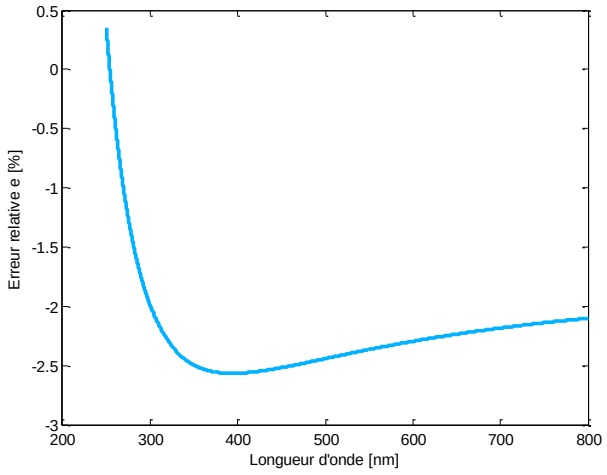


Figure II-11 : Ecart relatif entre la section efficace de diffusion Rayleigh de l'oxygène relative à l'air en fonction de la longueur d'onde par rapport à la section efficace de l'oxygène relative à l'air à 254nm

Ces deux figures mettent en avant la faible dépendance de la section efficace de diffusion Rayleigh relative à l'air de l'oxygène et de l'azote à la longueur d'onde. A $532nm$ nous obtenons une erreur relative de 1,5% pour l'azote et -2,4% pour l'oxygène. Par extension, nous utiliserons dans la suite les sections efficaces relatives à l'air listées dans la thèse de Johan Zetterberg [**58**] (voir Tableau II-2).

CONCLUSION :

De ce chapitre, nous pouvons déduire plusieurs éléments :

- La section efficace de diffusion Rayleigh varie comme l'inverse de la puissance quatrième de la longueur d'onde ;
- Elle dépend de la molécule considérée et peut être reliée à une grandeur macroscopique, l'indice de réfraction ;
- Le facteur de correction qui incombe au facteur de dépolarisation des molécules anisotropes peut-être négligé ;
- Les effets thermométriques sur la section efficace seront également négligés ;
- L'intensité diffusée est maximale dans le plan orthogonal à la polarisation de la lumière incidente et contenant le rayon incident. Elle est nulle dans la direction de polarisation de la lumière incidente ;

La loi en $1/\lambda^4$ caractéristique de la section efficace de diffusion Rayleigh est un critère important de choix du laser car le signal diffusé augmentera très rapidement avec la baisse de la longueur d'onde. Par exemple, le signal diffusé pour un faisceau incident de l'longueur d'onde 266nm sera 256 fois plus intense qu'un signal diffusé à une longueur d'onde de 1064nm.

Des travaux ont été réalisés afin de déterminer numériquement les sections efficaces de diffusion Rayleigh [**61**]. Bien que présentant une incertitude inférieure à 10%, ce travail n'a pour le moment été validé que pour un petit nombre de molécules (CH_4, H_2 et H_2O). Par conséquent, nous considérerons dans la suite de ce travail les sections efficaces de diffusion Rayleigh du Tableau II-2 ci-après. Ce tableau liste les sections efficaces relatives à l'air à 532nm des espèces principales mises en jeu dans une réaction de combustion.

Espèce	Section efficace de diffusion Rayleigh relative l'air	Section efficaces de rétrodiffusion Rayleigh à 532nm ($cm^2.sr^{-1}$)
H	0,06	1.35E-27
O	0,23	5.12E-27
N	0,26	5.81E-27
C	0,35	7.97E-27
H_2	**0,24**	5.35E-27
OH	0,52	1.17E-26
CO	1,42	3.21E-26
N_2O	3,16	7.18E-26
NH_3	2,11	4.93E-26
NO	1,09	2.46E-26
O_2	**0,91**	2.06E-26
H_2O	**0,93**	2.10E-26
CO_2	**2,38**	5.39E-26
N_2	**1,02**	2.33E-26
Air	**1,00**	2.27E-26
CH_4	**2,39**	5.41E-26
C_2H_2	4,94	1.12E-25
C_2H_4	7,35	1.66E-25
C_2H_6	7,23	1.64E-25
C_3H_6	15,84	3.60E-25
C_3H_8	**14,88**	3.37E-25
C_7H_{16}	55,79	1.20E-24
C_8H_{18}	67,68	1.53E-24

Tableau II-2 : Liste des sections efficaces de diffusion Rayleigh relatives à l'air avec en bleu celles que nous utiliserons dans cette thèse

Les incertitudes associées aux sections efficaces du Tableau II-2 ci-dessus sont difficiles à calculer car sont extraites de travaux réalisées à différentes périodes, par différents laboratoires et par des méthodes différentes. Par exemples, la section efficace de l'air a été calculée par Bates et al. en 1984 à partir de l'indice de réfraction de l'air et en prenant en compte le facteur de correction de King [**52**] alors que celle du CO_2 a été calculée à partir de l'indice de réfraction lui-même mesuré par interférométrie UV par Bideau-Mehu et al. en 1973 [**62**]. Finalement, le Tableau II-2 permet d'avoir un ordre de grandeur des sections efficaces de diffusion Rayleigh et ajoute une incertitude supplémentaire à la méthode LIDAR, ce qui confirme la nécessité du couplage de cette mesure avec une mesure en émission de rayonnement.

II.A.2.5 Coefficient de rétrodiffusion

Le coefficient de rétrodiffusion représente la proportion de photons rétrodiffusés par unité de longueur du milieu diffusant. Ce coefficient est donné en fonction de la densité moléculaire et de la section efficace selon la relation suivante [**53**] :

$$\beta(\lambda, x) = N(x)\sigma_{retrodiffusion}(\lambda) \qquad \textbf{Eq. II-23}$$

Avec $\beta\ [m^{-1}]$, $N\ [m^{-3}]$ et $\sigma\ [m^2]$

L'épaisseur optique de diffusion de Rayleigh est, pour une épaisseur de gaz *d*, la proportion de photons rétrodiffusés. L'épaisseur optique de rétrodiffusion est donnée par la relation suivante :

$$\tau_{rétrodiffusion}(\lambda, d) = \int_0^d \beta(\lambda, x)dx \qquad \text{Eq. II-24}$$

Avec $\tau_{rétrodiffusion}[sans\ unité]$

A noter que le coefficient $\tau_{rétrodiffusion}$ renvoie à l'épaisseur optique dans le cadre du LIDAR et τ renvoie au coefficient de transmission dans le cadre de la spectroscopie.

II.A.2.6 Libre parcours moyen

On définit le libre parcours moyen de diffusion Rayleigh par la distance moyenne parcourue par un photon entre deux interactions :

$$l = \frac{1}{n\sigma} \qquad \text{Eq. II-25}$$

avec *n* densité moléculaire et σ la section efficace de diffusion Rayleigh. Pour *n* = 2,54.10^{19} molécule.cm^{-3} et $\sigma = 10^{-27}cm^2$ (ordre de grandeur de la section efficace de diffusion Rayleigh) on trouve $l \approx 2{,}94.10^5 m$. Cette longueur est très supérieure aux distances caractéristiques dans notre problème. On considérera donc que les photons diffusés ne subissent qu'une diffusion Rayleigh au plus.

II.A.3 Diffusion inélastique : diffusion Raman

II.A.3.1 Caractérisation du phénomène

Lorsqu'un photon $h\upsilon_0$ excite une molécule, cette dernière peut absorber le photon et se retrouver à un niveau d'énergie supérieur instable. La molécule va donc très rapidement (en moins d'une picoseconde) redescendre en énergie et émettre un photon d'énergie $h\upsilon_R$ différente de $h\upsilon_0$. C'est la diffusion Raman.

La diffusion Raman se caractérise par un signal diffusé à deux longueurs d'onde différentes de la longueur d'onde du photon incident (voir les équations Eq. II-26 et Eq. II-27 ainsi que la Figure II-12 ci-après) :

Diffusion Raman Anti-Stokes $\qquad h\upsilon_R = h\upsilon_0 + h\upsilon_S \qquad$ **Eq. II-26**

Diffusion Raman Stokes $\qquad h\upsilon_R = h\upsilon_0 - h\upsilon_S \qquad$ **Eq. II-27**

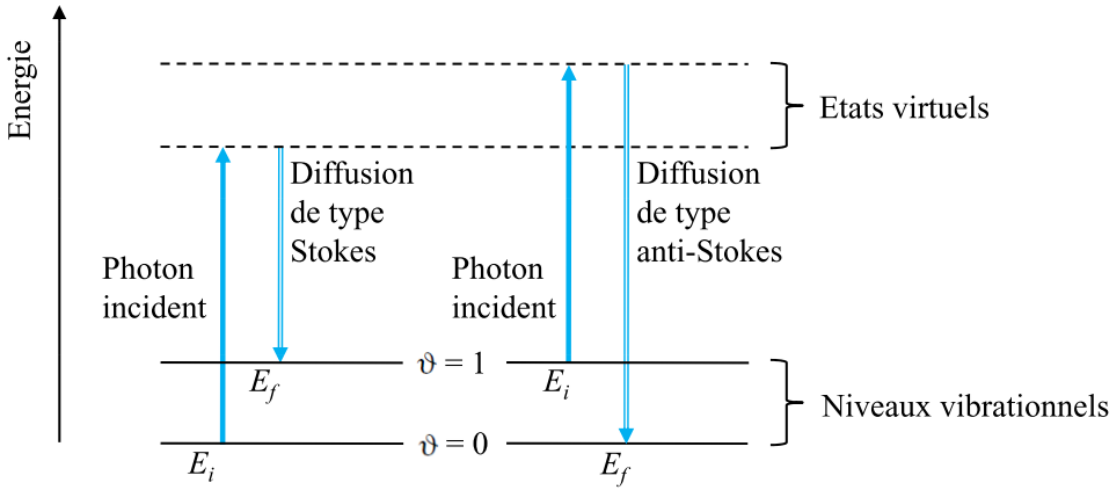


Figure II-12 : Diagramme d'énergie de la diffusion Raman.

Dans les conditions standards de température et pression, le niveau $\upsilon = 0$ est statistiquement le plus peuplé. Par conséquent, la probabilité d'une transition de type Stokes est plus probable qu'une transition de type Anti-Stokes. Ceci se traduit par des raies d'intensités différentes.

II.A.3.2 Section efficace et décalage en nombre d'onde de diffusion Raman

Le phénomène de diffusion Raman est caractérisé par deux grandeurs principales :

- le décalage en longueur d'onde observé entre la longueur d'onde excitatrice et la longueur d'onde diffusée ;
- la section efficace de diffusion Raman.

Ces deux grandeurs dépendent de la molécule étudiée. Le décalage en longueur d'onde est utile pour la détection et la détermination de concentrations d'espèces en particulier. Ce décalage ne dépend pas de la longueur d'onde excitatrice. La section efficace de diffusion Raman dépend quant à elle de la longueur d'onde du photon incident. Le Tableau II-3 ci-après donne quelques exemples de décalages et sections efficaces pour l'hydrogène, l'azote, l'oxygène, le monoxyde de carbone et le dioxyde de carbone [**27**].

Molécule	**Décalage Raman (cm^{-1})**	**Section efficaces de diffusion Raman en fonction de la longueur d'onde d'excitation ($cm^2.sr^{-1}$)**	
		355 nm	532 nm
H_2	4156	9.66E-30	1.43E-30
N_2	2331	2.31E-30	3.97E-31
O_2	1555	2.31E-30	3.91E-31
CO	2143	2.08E-30	3.63E-31
CO_2	1285 1388	1.62E-30 2.31E-30	1.62E-30 4.71E-31

Tableau II-3 : exemples de décalages et sections efficaces de diffusion Raman pour 355nm et 532nm.

On remarque que les sections efficaces de diffusion Raman sont nettement inférieures à celle de la diffusion Rayleigh. Par exemple, la section efficace de diffusion Raman de l'hydrogène est environ 3750 fois inférieure à celle de sa diffusion Rayleigh à 532nm. Le matériel choisi pour ce travail de thèse ne permet

donc pas une analyse des gaz par diffusion Raman puisque le nombre de photons rétrodiffusé sera sous le seuil de détection de la caméra Streak.

La Figure II-13 ci-après est un exemple de spectre Raman. Il est extrait d'un article publié par MAGNOTTI G. et al. en Avril 2015 [**63**].

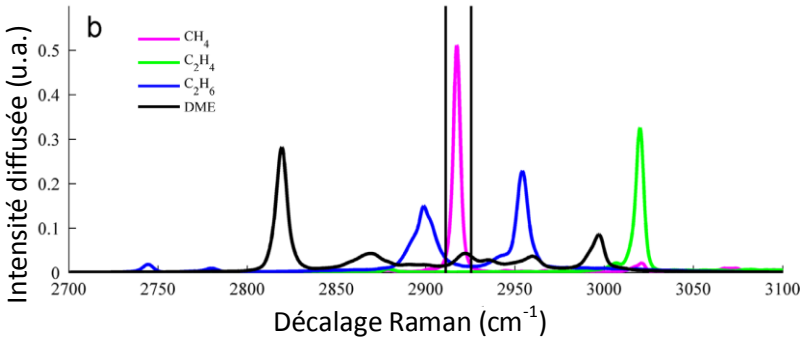


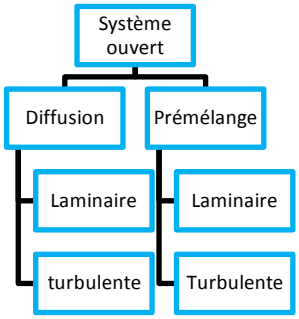
Figure II-13 : Spectres du décalage Raman du méthane, éthylène, éthane et Diméthyle éther.

Cet exemple de spectre met en évidence l'intérêt de la méthode Raman pour la détection de gaz spécifiques dans un mélange de gaz.

II.B Rappels sur la combustion

Les réactions de combustion sont régies par des processus complexes qui sont développés dans des branches aussi variées que la thermodynamique, la mécanique des fluides, le transfert de chaleur ou encore la chimie. Elles sont le fruit de réactions chimiques entre un comburant (un agent oxydant, souvent l'oxygène mais peut être l'ozone, O_3, le peroxyde d'hydrogène, H_2O_2, etc…) et un combustible (un agent réducteur, souvent des composés carbonés comme les hydrocarbures ou le dihydrogène). Les réactions chimiques de combustion sont exothermiques (elles dégagent de la chaleur) et sont accompagnées d'émissions de rayonnement (UV, Visible, IR) [**64**].

Il convient de distinguer les combustions issues de systèmes ouverts (II.B.1), les flammes continues (bec bunsen, bec Meker, bougie,…) des combustions issues de systèmes fermés (combustion dans une chambre de moteur de voiture, bombe,…).



Chacun des deux types de flammes est subdivisé en deux types. Les flammes issues de systèmes ouverts peuvent être de diffusion (II.B.1.0) ou de pré-mélange (II.B.1.2). Pour ces deux cas, selon la vitesse de l'écoulement, sa dimension et sa viscosité, la flamme peut être microfluidique, laminaire, transitoire ou turbulente. Le Reynolds (R_e) est un nombre sans dimension qui permet de connaitre le régime d'une flamme en fonction de ces trois paramètres. Il est défini selon la relation suivante [**65**]:

$$R_e = \frac{VL}{\nu} \qquad \textbf{Eq. II-28}$$

Avec $V\ [m.s^{-1}]$ la vitesse caractéristique du fluide, $L[m]$ sa dimension caractéristique et $\nu[m^2.s^{-1}]$ sa viscosité cinématique et quantifie sa propension à retenir les particules qui le constitue.

Pour les flammes issues de systèmes fermés, il existe deux modes de transfert de chaleur : la **déflagration**, lorsque la pression diminue après le passage du front de flamme et la **détonation**, lorsque la pression augmente après le passage du front de flamme. Nous ne traitons ici que des flammes d'écoulement laminaires issues de systèmes ouverts.

II.B.1 Les flammes issues de systèmes ouverts

Les flammes issues de systèmes ouverts peuvent êtres laminaires ou turbulentes et stationnaires ou transitoires. Nous ne traiterons au sein de ce paragraphe que les systèmes ouverts stationnaires et laminaires. Il existe deux principaux types de flammes fonctionnant en systèmes ouverts : les flammes de diffusion et les flammes de pré-mélange.

II.B.1.1 Les flammes de diffusion

Dans les flammes de diffusion, la combustion se produit au même endroit et au même moment que le mélange entre le combustible et le comburant (Figure II-15). Ces réactions ont un rendement énergétique inférieur à celui des flammes de pré-mélange puisque le comburant doit être apporté à la zone de réaction par diffusion moléculaire. Cependant, elles présentent deux intérêts : la simplicité et la sécurité [**65**]. La simplicité car il suffit d'injecter le combustible dans de l'air sans mélange préalable des réactifs. La sécurité car dans le cadre d'une flamme de pré-mélange, le front de flamme peut dans certaines conditions remonter la gaine d'injection et dans le pire des scénarios catastrophe, atteindre les bouteilles de réactifs. La Figure II-14 ci-après est un schéma simplifié d'une flamme de diffusion.

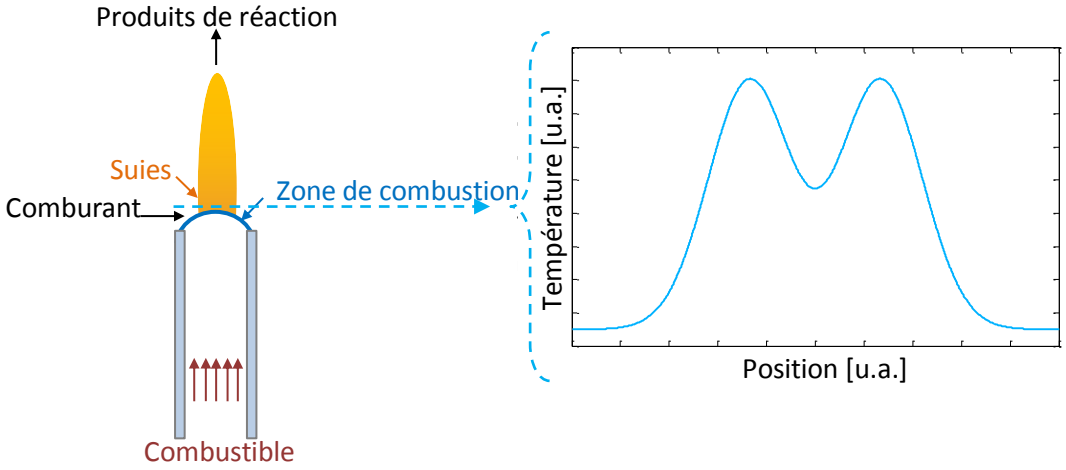


Figure II-14 : Schéma d'une flamme de diffusion avec son profil de température caractéristique associé.

Les photos ci-après et ont été prises sur une flamme de diffusion de méthane (Figure II-15) et de dihydrogène (Figure II-16). La flamme de diffusion de méthane fait clairement apparaitre le front de flamme avec d'un côté les gaz imbrulés et de l'autre les produits de réaction.

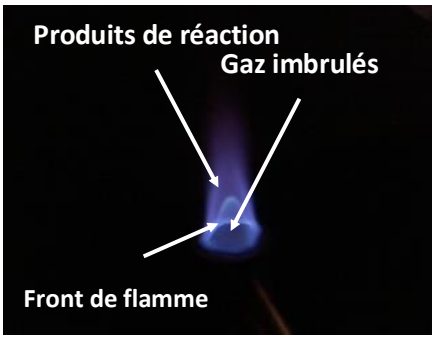




Figure II-15 : Flamme de diffusion laminaire CH_4/Air

Figure II-16 : Flamme de diffusion laminaire H_2/Air

II.B.1.2 Les flammes de pré-mélange

Dans les flammes de pré-mélange, le comburant et le combustible ont préalablement été mélangés lors du passage du front de flamme (voir Figure II-17). Elles présentent l'avantage d'avoir un meilleur rendement énergétique que celui des flammes de diffusion mais comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent,

sont plus dangereuses à mettre en œuvre à cause du risque de voir le front de flamme remonter la gaine d'injection du pré-mélange.

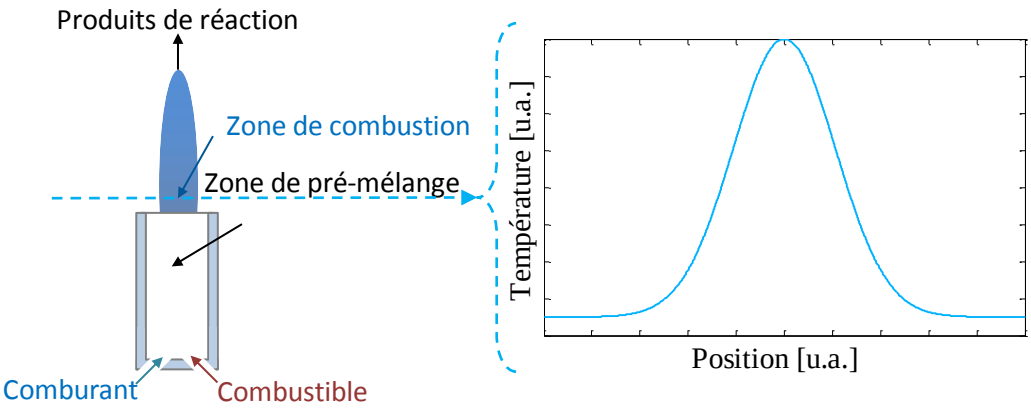


Figure II-17 : Schéma d'une flamme de pré-mélange avec son profil de température caractéristique associé.

Les Figure II-18 et Figure II-19 sont des photos de flammes de pré-mélange de méthane/Air et H_2/Air respectivement. La zone des gaz imbrulés disparait laissant place à une zone de combustion étendue.



Figure II-18 : Flamme de pré-mélange laminaire CH_4/Air

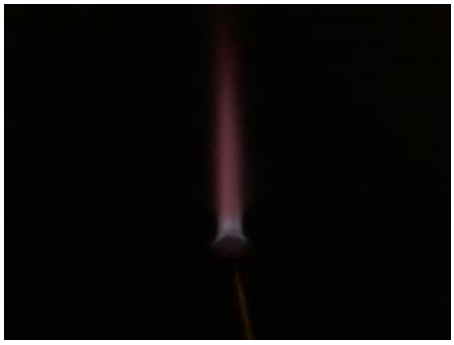


Figure II-19 : Flamme de pré-mélange laminaire H_2/Air

Le front de flamme est le siège de réactions chimiques. Dans le cas d'une flamme de diffusion, il sépare le combustible du comburant. Dans le cas d'une flamme de pré-mélange, les réactifs (Combustible + Comburant) s'écoulent en amont du front de flamme. Des réactions chimiques y ont leur siège et avec elles la diminution, au fur et à mesure que l'on progresse dans le front de flamme, de la concentration des réactifs et l'augmentation des produits. Les produits, situés en aval du front de flamme, sont le résultat de réactions chimiques intermédiaires entre des espèces intermédiaires telles que le radical OH (voir Figure II-20 [**64**] ainsi que l'exemple de la réaction H_2/O_2 présenté à la section II.B.2.3.a page 56).

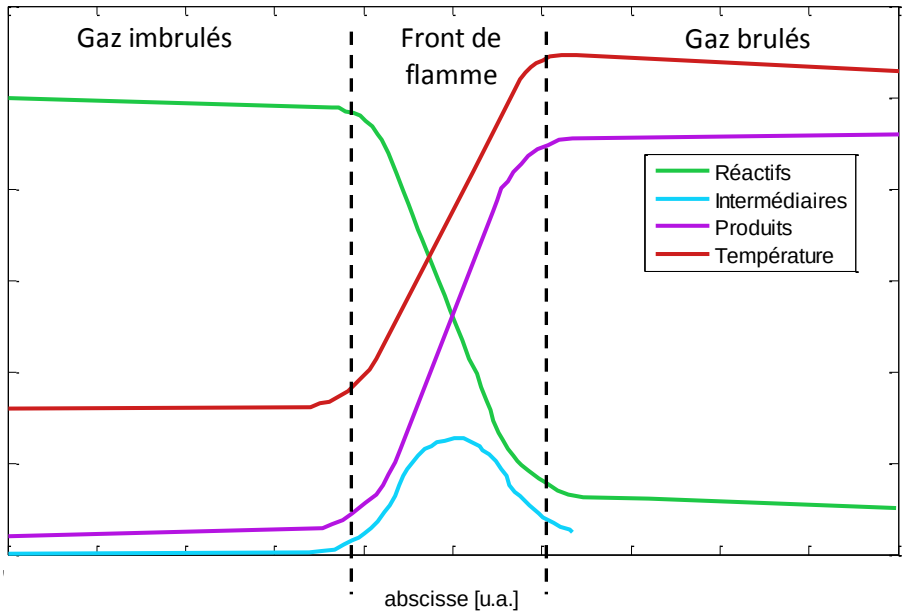


Figure II-20 : Concentrations et température types au travers un front de flamme d'écoulement laminaire (flammes de diffusion ou de pré-mélange)

II.B.2 Equations de combustion des composés carbonés et/ou azotés

Pour un combustible de formule chimique $C_xH_yO_zN_t$ réagissant avec un air standard (21% d'oxygène et 79% d'azote), l'équation de la réaction dans les proportions stœchiométriques est donnée par [**66**] :

$$C_xH_yO_zN_t + \left(x + \frac{y}{4} + \frac{z}{2}\right).(O_2 + 3{,}76.N_2) \rightarrow x.CO_2 + \frac{y}{2}H_2O + \left(\frac{t}{2} + 3{,}76.\left(x + \frac{y}{4} + \frac{z}{2}\right)\right).N_2$$

Eq. II-29

Certains combustibles contiennent de l'azote et/ou de l'oxygène (Tableau II-4).

Nom du combustible	Formule chimique brute	
Méthanol	$CH_3 - OH$	
Nitrométhane	CH_3NO_2	Explosifs
Tétranitrométhane	CN_2O_8	
Trinitrotoluène (TNT)	$C_7H_5N_3O_6$	

Tableau II-4 : Exemple de combustibles contenant de l'oxygène et/ou de l'azote

La formule de l'équation Eq. II-29 est valable pour des réactions dans les proportions stœchiométriques. Pour les autres configurations, il convient t'introduire le coefficient de richesse ϕ (ou rapport d'équivalence). Ce coefficient indique si on est excès de combustible ($\phi > 1$) ou en excès de comburant ($\phi < 1$).

$$\phi = \frac{\left(\frac{n_{combustible}}{n_{Comburant}}\right)_m}{\left(\frac{n_{Combustible}}{n_{Comburant}}\right)_{st}} = \frac{\left(\frac{\varphi_{combustible}}{\varphi_{Comburant}}\right)_m}{\left(\frac{\varphi_{Combustible}}{\varphi_{Comburant}}\right)_{st}} \quad \text{Eq. II-30}$$

Avec m = mélange étudié, st = proportions stœchiométriques, n la quantité de matière (mole) et φ le débit (l.min^{-1}).

Prenons quelques exemples de réactions de combustions. Pour les trois exemples ci-après nous prenons une concentration en O_2 dans l'air de 20% et en N_2 de 80%.

II.B.2.1 Réaction CH_4/O_2

L'équation de la réaction entre le méthane et l'oxygène dans les proportions stœchiométriques s'écrit :

$$CH_4 + 2O_2 = 2H_2O + CO_2 \quad \text{Eq. II-31}$$

Considérons une fraction molaire X_{CH_4} en hydrogène et X_{Air} en Air dans le milieu réactionnel.

$$X_{CH_4} + X_{Air} = 1 \quad \text{Eq. II-32}$$

Bilan des réactifs :

$$X_{CH_4}CH_4 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

$$= X_{CH_4}(CH_4 + 2O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) - 2X_{CH_4}O_2$$

Bilan des produits :

$$X_{CH_4}(2H_2O + CO_2 - 2O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

Equation de la réaction :

$$X_{CH_4}CH_4 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) = X_{CH_4}(2H_2O + CO_2 - 2O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) \quad \text{Eq. II-33}$$

Considérons désormais l'équation de la réaction en terme de sections efficaces des molécules relatives à la section efface de l'air ($\sigma_{Air} = 1$). On obtient :

$$X_{CH_4}\sigma_{CH_4} + X_{Air}\sigma_{Air} \leftrightarrow X_{CH_4}(2\sigma_{H_2O} + \sigma_{CO_2} - 2\sigma_{O_2}) + X_{Air}\sigma_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 2{,}39X_{CH_4} + X_{Air} \leftrightarrow X_{CH_4}(2 \times 0{,}93 + 2{,}38 - 2 \times 0{,}91) + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 2{,}39X_{CH_4} + X_{Air} \leftrightarrow 2{,}42X_{CH_4} + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow \mathbf{1 + 1{,}39X_{CH_4} \leftrightarrow 1 + 1{,}42X_{CH_4}} \quad \text{Eq. II-34}$$

Dans les conditions d'inflammabilité (5%-15%) [67] :

	Pour la limite inf. d'inflammabilité	Pour la limite sup. d'inflammabilité
Réactifs	$1{,}07\sigma_{Air}$	$1{,}21\sigma_{Air}$
Produits	$1{,}07\sigma_{Air}$	$1{,}21\sigma_{Air}$

Dans le cadre d'une réaction CH_4/Air, on remarque que la section efficace entre l'avancement initial et l'avancement final est quasi constante (voir Figure II-21).

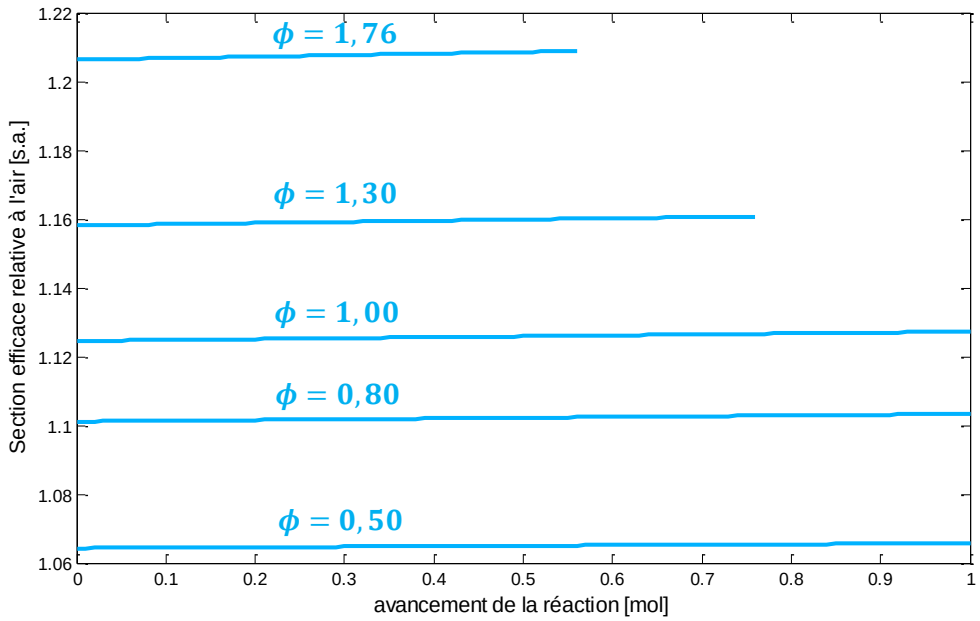


Figure II-21 : Section efficace relative à l'air en fonction de l'avancement de la réaction Méthane/Air et de la richesse initiale (ϕ) dans les limites d'inflammabilité

Le graphe Figure II-22 représente l'écart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'avancement initial et l'avancement final. Celui-ci est négligeable quelle que soit la richesse initiale du mélange.

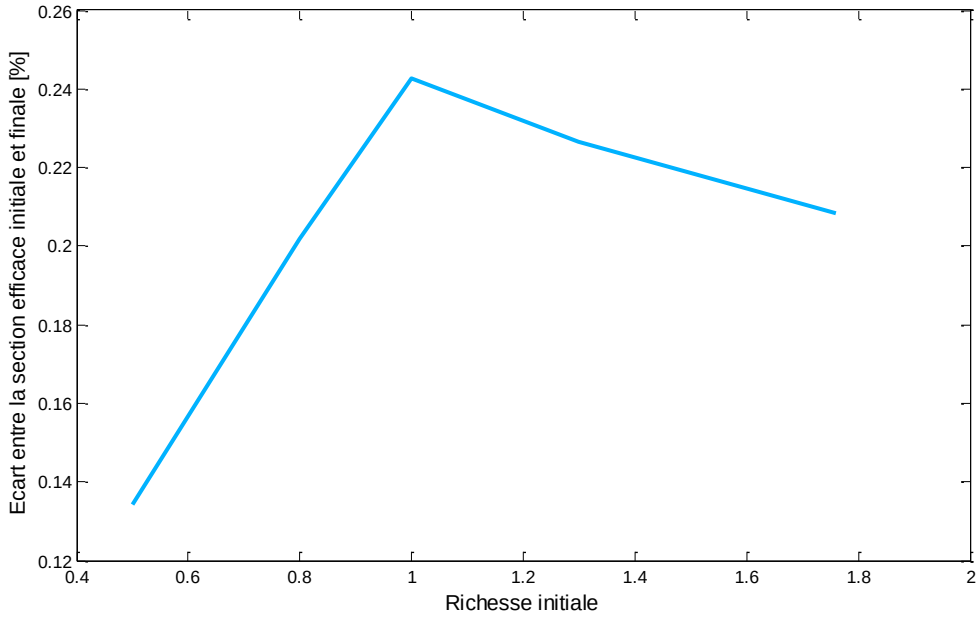


Figure II-22 : Ecart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'avancement initial et l'avancement final

La réaction de combustion entre le méthane et l'air est donc très favorable à l'utilisation de la méthode LIDAR.

II.B.2.2 Réaction C_3H_8/O_2

L'équation de la réaction entre le propane et l'oxygène dans les proportions stœchiométriques s'écrit :

$$C_3H_8 + 5O_2 = 4H_2O + 3CO_2 \qquad \textbf{Eq. II-35}$$

Considérons une fraction molaire $X_{C_3H_8}$ en propane et X_{Air} en Air dans le milieu réactionnel.

$$X_{C_3H_8} + X_{Air} = 1 \qquad \textbf{Eq. II-36}$$

Bilan des réactifs :

$$X_{C_3H_8}C_3H_8 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

$$= X_{C_3H_8}(C_3H_8 + 5O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) - 5X_{C_3H_8}O_2$$

Bilan des produits :

$$X_{C_3H_8}(4H_2O + 3CO_2 - 5O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

Equation de la réaction :

$$X_{C_3H_8}C_3H_8 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) = X_{C_3H_8}(4H_2O + 3CO_2 - 5O_2) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

Considérons désormais l'équation de la réaction en terme de sections efficaces des molécules relatives à la section efface de l'air ($\sigma_{Air} = 1$). On obtient :

$$X_{C_3H_8}\sigma_{C_3H_8} + X_{Air}\sigma_{Air} \leftrightarrow X_{C_3H_8}\left(4\sigma_{H_2O} + 3\sigma_{CO_2} - 5\sigma_{O_2}\right) + X_{Air}\sigma_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 14{,}88X_{C_3H_8} + X_{Air} \leftrightarrow X_{C_3H_8}(4 \times 0{,}93 + 3 \times 2{,}38 - 5 \times 0{,}91) + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 14{,}88X_{C_3H_8} + X_{Air} \leftrightarrow 6{,}31X_{C_3H_8} + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow \mathbf{1 + 13{,}88}\boldsymbol{X_{C_3H_8}} \leftrightarrow \mathbf{1 + 5{,}31}\boldsymbol{X_{C_3H_8}}$$

Dans les conditions d'inflammabilité (2,25%-9,4%) [67] :

	Pour la limite inf. d'inflammabilité	Pour la limite sup. d'inflammabilité
Réactifs	$1{,}35\sigma_{Air}$	$2{,}30\sigma_{Air}$
Produits	$1{,}14\sigma_{Air}$	$1{,}50\sigma_{Air}$

Dans le cadre d'une réaction C_3H_8 /Air, on remarque que la différence de section efficace entre l'avancement initial et l'avancement final est importante (voir Figure II-23).

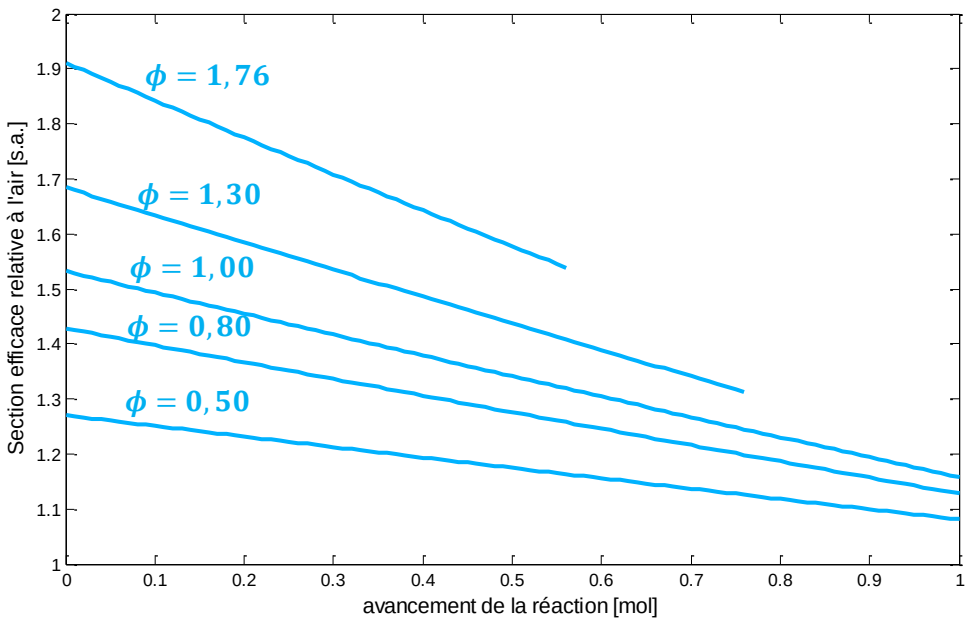


Figure II-23 : Section efficace relative à l'air en fonction de l'avancement de la réaction Méthane/Air et de la richesse initiale (ϕ) dans les limites d'inflammabilité

Le graphe Figure II-24 représente l'écart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'avancement initial et l'avancement final. Celui-ci est compris entre approximativement 15% et 25%.

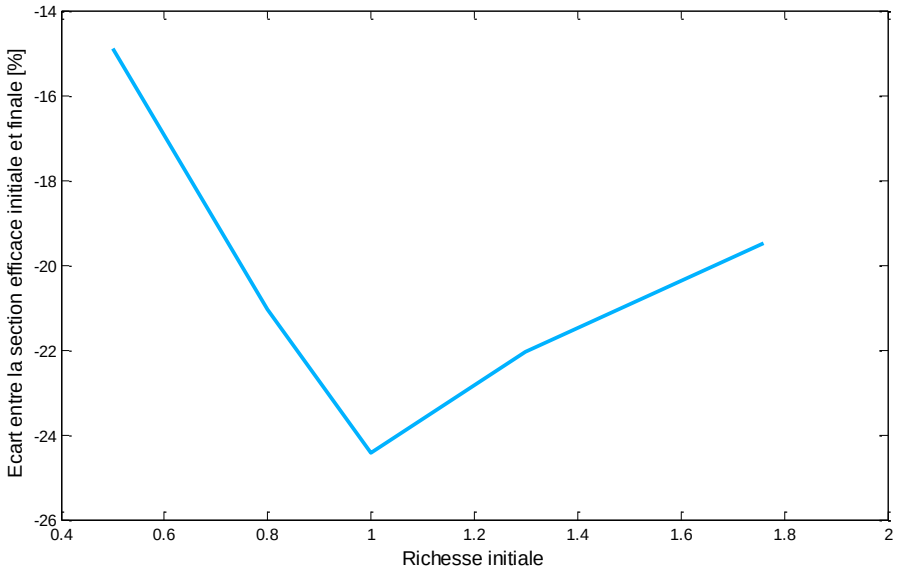


Figure II-24 : Ecart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'avancement initial et l'avancement final

Cet important écart est un facteur qui conditionne la méthode de mesure de température et concentration qui sera choisie (voir Chapitre I :)

II.B.2.3 Réaction H_2/O_2

La réaction de combustion entre l'hydrogène et l'oxygène est complexe. Avant de former des molécules d'eau, les espèces subissent un grand nombre de transformations intermédiaires. Nous commençons par présenter brièvement les réactions chimiques intermédiaires (II.B.2.3.a) puis faisons l'analyse de la section efficace de diffusion Rayleigh au cours de la transformation (II.B.2.3.b).

II.B.2.3.a Réactions intermédiaires

La réaction Hydrogène/Oxygène est une réaction en chaine. L'équation chimique bilan est :

$$2H_2 + O_2 \Longrightarrow 2H_2O \qquad \textbf{Eq. II-37}$$

Cependant, avant d'obtenir de l'eau en produit final, un grand nombre d'espèces cohabitent et réagissent.

Voici les différentes étapes de la réaction H_2/O_2 [**64**]:

$H_2 + O_2 \Longrightarrow 2OH^{\cdot}$ } Initiation

$OH^{\cdot} + H_2 \Longrightarrow H_2O + H^{\cdot}$ } Propagation en ligne (1 radical → 1 radical)

$H^{\cdot} + O_2 \Longrightarrow OH^{\cdot} + H^{\cdot}$} Propagation ramifiée (1 radical → 2 radicaux)

$O^{\cdot} + H_2 \Longrightarrow OH^{\cdot} + H^{\cdot}$} Idem

Recombinaison des radicaux :

$H^{\cdot} + H^{\cdot} + M \Longrightarrow H_2 + M$

$H_2 + OH^{\cdot} + M \Longrightarrow H_2O + M$

II.B.2.3.b Evolution de la section efficace en début et fin de réaction

L'équation de la réaction entre le dihydrogène (H_2) et l'oxygène (O_2) dans les proportions stœchiométriques s'écrit :

$$H_2 + \frac{1}{2}O_2 = H_2O$$

Considérons une fraction molaire X_{H_2} en hydrogène et X_{Air} en Air dans le milieu réactionnel.

$$X_{H_2} + X_{Air} = 1 \qquad \textbf{Eq. II-38}$$

Bilan des réactifs :

$$X_{H_2}H_2 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

$$= X_{H_2}\left(H_2 + \frac{1}{2}O_2\right) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) - X_{H_2}\frac{1}{2}O_2$$

Bilan des produits :

$$X_{H_2}\left(H_2O - \frac{1}{2}O_2\right) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

Equation de la réaction :

$$X_{H_2}H_2 + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right) \leftrightarrow X_{H_2}\left(H_2O - \frac{1}{2}O_2\right) + X_{Air}\left(\frac{4}{5}N_2 + \frac{1}{5}O_2\right)$$

Considérons désormais l'équation de la réaction en terme de sections efficaces des molécules relatives à la section efface de l'air ($\sigma_{Air} = 1$). On obtient :

$$X_{H_2}\sigma_{H_2} + X_{Air}\sigma_{Air} \leftrightarrow X_{H_2}\left(\sigma_{H_2O} - \frac{1}{2}\sigma_{O_2}\right) + X_{Air}\sigma_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 0{,}24X_{H_2} + X_{Air} \leftrightarrow X_{H_2}\left(0{,}93 - \frac{1}{2}0{,}91\right) + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow 0{,}24X_{H_2} + X_{Air} \leftrightarrow 0{,}48X_{H_2} + X_{Air}$$

$$\Leftrightarrow \mathbf{1 - 0{,}76X_{H_2} \leftrightarrow 1 - 0{,}52X_{H_2}}$$

Dans les conditions d'inflammabilité (4%-74,5%) :

	Pour la limite inf. d'inflammabilité	Pour la limite sup. d'inflammabilité
Réactifs	$0{,}97\sigma_{Air}$	$0{,}43\sigma_{Air}$
Produits	$0{,}98\sigma_{Air}$	$0{,}61\sigma_{Air}$

Dans le cadre d'une réaction H_2/Air, on remarque que l'écart de section efficace entre l'avancement initial et l'avancement final s'accroit avec la richesse du mélange initial. Lorsque l'on se situe proche de la limite inférieure de la richesse (Voir Figure II-25). A partir d'une richesse de 0,4, on a un écart de plus de 10% entre la section efficace relative à l'air au début de la réaction et à la fin.

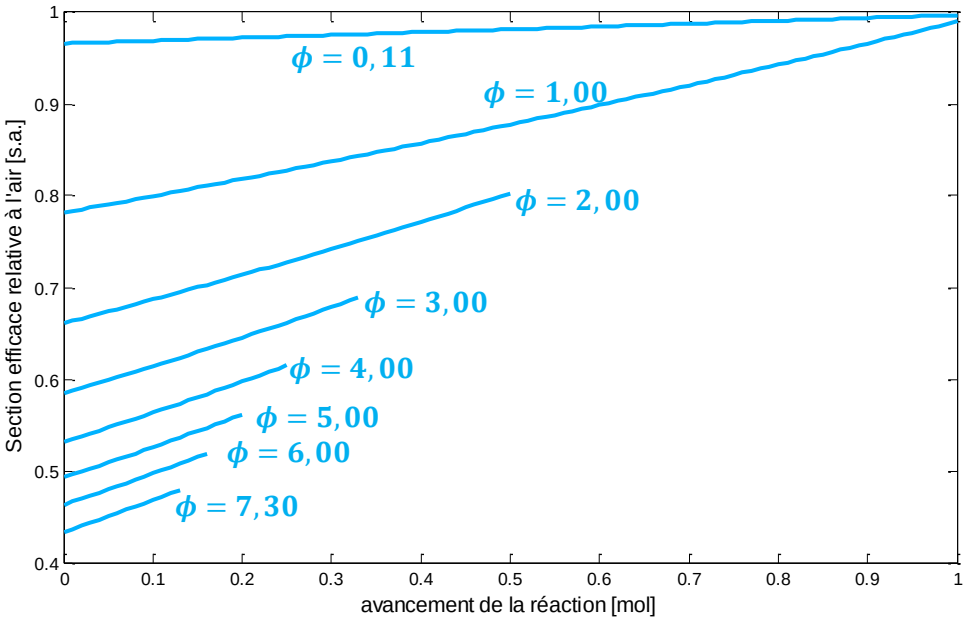


Figure II-25 : Section efficace relative à l'air en fonction de l'avancement de la réaction Hydrogène/Air et de la richesse initiale (ϕ) dans les limites d'inflammabilité

Le graphe Figure II-26 représente l'écart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'avancement initial et l'avancement final. Celui-ci est de l'ordre de 4-5% aux faibles richesses et possède un maximum autour de stœchiométrie. Aux richesses croissantes et supérieures à 1, l'écart diminue mais reste supérieur à 10%.

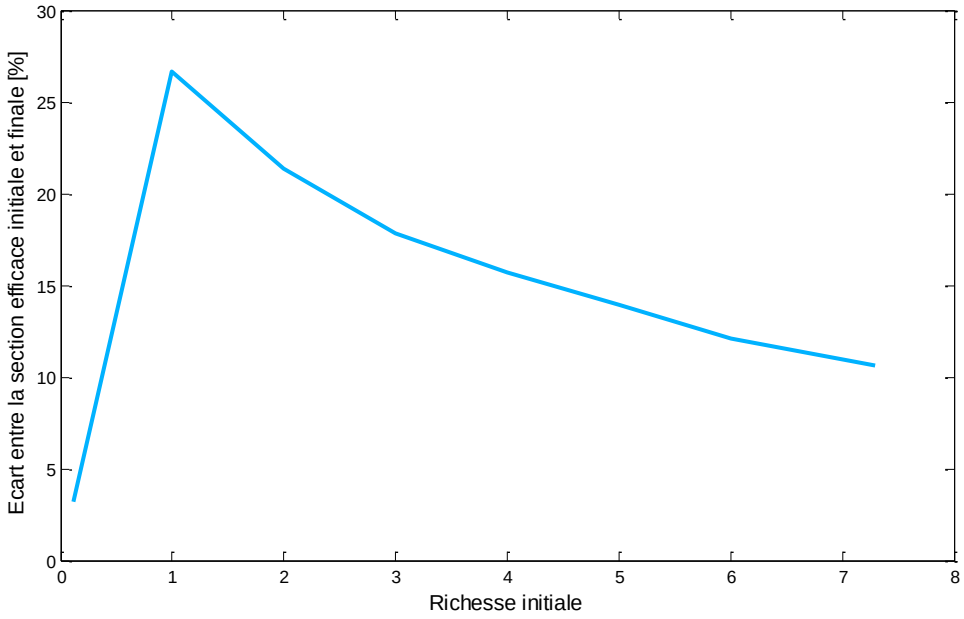


Figure II-26 : Ecart relatif des sections efficaces moyennes du milieu réactionnel entre l'instant initial et l'avancement final

CONCLUSIONS : ce que l'on conclut du bilan des sections efficaces de rétrodiffusion Rayleigh pour ces trois réactions est que la réaction méthane/air est une réaction de choix pour réaliser des essais de mesures. L'erreur induite par la méconnaissance du mélange est située entre 7% et 20% selon l'avancement de la réaction initialement dans des proportions stœchiométriques. En revanche, l'erreur commise dans le cadre de la réaction propane/air est comprise entre 14% et 130%. L'erreur pour la réaction hydrogène/air est comprise entre 2% et 57%. A moins de connaitre le mélange gazeux dans lequel nous plaçons la colonne de mesure, une mesure en émission s'avère indispensable afin de lever l'incertitude qui incombe à la méconnaissance de la composition du mélange.

II.B.3 Température adiabatique de flamme

La température adiabatique de flamme correspond à la température maximale atteignable par un système sans transfert de chaleur avec le milieu extérieur.

Considérons une réaction de combustion adiabatique isobare (à pression constante) dont l'équation de la réaction est définie comme suit :

$$\sum_i \left[n_i^{initial} \cdot A_i\right] = \sum_i \left[n_i^{final} \cdot A_i\right] \qquad \text{Eq. II-39}$$

Avec n_i la quantité de matière à l'état initial ou final et A_i la i^{ème} espèce prise en compte.

Le système est fermé et suit le processus de transformation suivant :

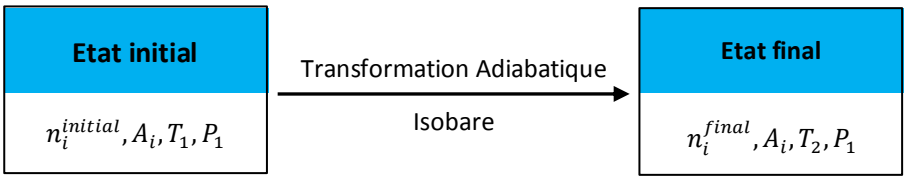


Figure II-27 : Processus de transformation adiabatique isobare

L'enthalpie H est une fonction d'état qui correspond à l'énergie totale d'un système. En particulier, elle est la somme de l'énergie interne du système et du travail exercé afin de compenser les forces de pression du milieu extérieur.

$$H = U + PV \qquad \text{Eq. II-40}$$

Avec U l'énergie interne, P la pression et V le volume.

Ce qui donne sous sa forme différentielle la relation suivante :

$$dH = dU + PdV + VdP \qquad \text{Eq. II-41}$$

L'énergie interne d'un système est définie par la relation suivante avec Q la somme des échanges thermiques entre le système et le milieu extérieur :

$$dU = \delta Q - PdV \qquad \text{Eq. II-42}$$

Ce qui conduit à la relation :

$$dH = \delta Q + VdP \qquad \text{Eq. II-43}$$

Or, pour une réaction adiabatique, $\delta Q = 0$ et pour une réaction isobare, $dP = 0$. Finalement, nous obtenons

$$dH = 0 \qquad \text{Eq. II-44}$$

L'enthalpie est une fonction d'état. Ainsi, sa variation ne dépend que des états initial et final. Nous pouvons donc décomposer le processus en deux processus faisant apparaitre un état intermédiaire pour lequel la composition est la composition finale à la température initiale (voir Figure II-28).

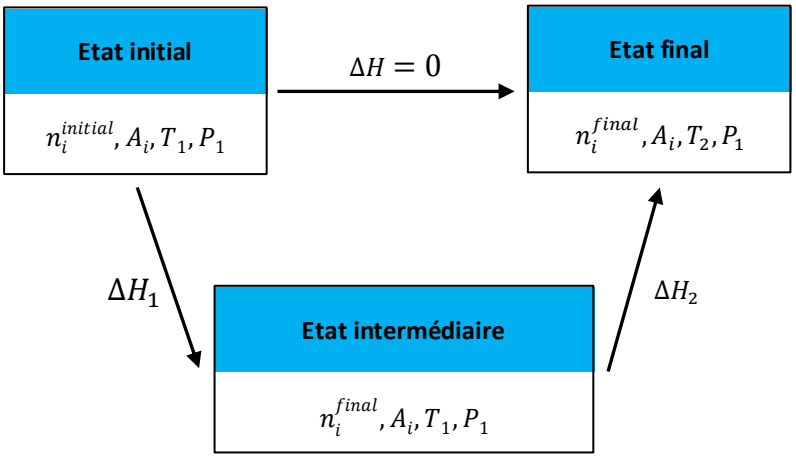


Figure II-28 : Processus de transformation adiabatique isobare avec état intermédiaire

La décomposition de la transition d'un état initial vers un état final via un état intermédiaire se traduit par la relation suivante (Eq. II-45) :

$$\Delta H = \Delta H_1 + \Delta H_2 \qquad \text{Eq. II-45}$$

Nous avons d'une part :

$$\Delta H_1 = \sum_i \left(n_{i,T}^{final} - n_{i,T}^{initial}\right) \cdot h_{i,T}^0 \qquad \text{Eq. II-46}$$

Avec $h_{i,T}^0$ l'enthalpie molaire standard du corps pur A_i à la température T. Et d'autre part :

$$\Delta H_2 = \int_{T_1}^{T_2} \sum_i n_i^{final} \cdot C_{p,i}(T)\, dT \qquad \text{Eq. II-47}$$

Avec $C_{p,i}(T)$ la capacité thermique de l'espèce A_i à la température T.

Finalement, T_2 est déterminée à partir des enthalpies de formation des différentes espèces misent en jeu et des capacités thermiques des espèces présentes à l'état final en fonction de la température en résolvant l'équation suivante (Eq. II-48) :

$$\sum_i \left(n_{i,T}^{final} - n_{i,T}^{initial}\right) \cdot h_{i,T}^0 + \int_{T_1}^{T_2} \sum_i n_i^{final} \cdot C_{p,i}(T)\, dT = 0 \qquad \text{Eq. II-48}$$

Le tableau ci-dessous donne quelques exemples de températures de flammes adiabatiques à pression atmosphérique constante :

Combustible	Comburant	Température adiabatique [K]
Hydrogène	Air	2399
Hydrogène	Oxygène	3105
Méthane	Air	2248
Méthane	Oxygène	3085
Propane	Air	2294
Propane	Oxygène	3123
Butane	Air	2294
Acétylène	Air	2329
Acétylène	Oxygène	3324

Tableau II-5 : Exemples de températures adiabatiques de flammes à pression constante (Obtenus par simulation Gaseq [68])

Les températures adiabatiques servent de référence maximum aux mesures réalisées sur les flammes expérimentales de la suite de ce travail et en particulier les flammes H_2/Air et CH_4/Air.

II.C Lidar (Light Detection And Ranging)

Le terme Lidar renvoie soit à la technique de mesure fondée sur la détection temporelle de photons soit à l'appareillage mettant en œuvre cette même technique. Dans la suite nous utiliserons le terme Lidar pour désigner indifféremment la technique ou l'appareillage. Dans ce paragraphe, la cible (le milieu sondé) des Lidars sera diffuse (atomes, molécules, particules). Le Lidar peut être utilisé avec différents phénomènes physiques d'interaction : diffusion Rayleigh [**58**], diffusion Raman [**69**], Diffusion de Mie [**70**] … (Voir Tableau II-6).

Interaction	Cible	Caractéristiques
Diffusion de Mie	Particules de taille supérieure à 1/10 de la longueur d'onde	Instantané, élastique
Fluorescence	Particules, molécules, atomes fluorescents	Retardé (environ 19ns pour l'anisole par exemple), inélastique
Diffusion Rayleigh	Particules, molécules, atomes de taille inférieure à 1/10 de la longueur d'onde	Instantané, élastique
Diffusion Raman	Particules, molécules, atomes inférieure à 1/10 de la longueur d'onde	Instantané, inélastique

Tableau II-6 : Principaux processus d'interaction photon-matière des systèmes Lidar

Le Lidar est donc une technique fondée sur l'interaction photon-matière et sur l'analyse temporelle des photons issus de cette même interaction. En d'autres termes, une impulsion laser est émise et à chaque instant t_a se trouve à une position x_a le long de la ligne de visée. Les photons de l'impulsion laser interagissent avec le milieu. Une partie des photons issus de l'interaction est rétrodiffusée et sera détectée à l'instant $t_a + \Delta t$ avec $\Delta t = \frac{L}{c}$ (Figure II-29).

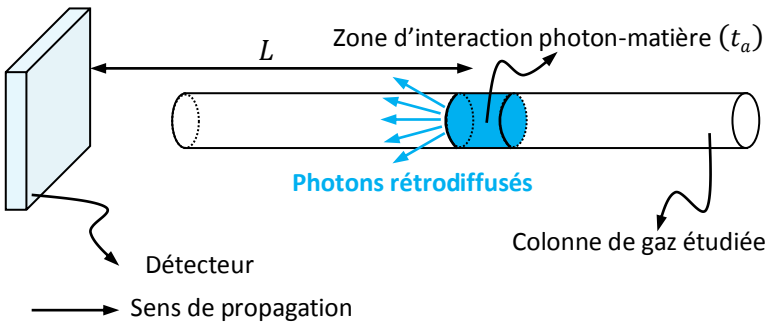


Figure II-29 : Schéma de principe d'un système LIDAR

Quel formalisme mathématique associer au Lidar dans le cas d'impulsions laser brèves (paragraphe II.C.1) et dans le cas d'impulsions laser réelles (paragraphe II.C.2) ?

II.C.1 Lidar d'impulsions laser brèves d'intensité constante

Nous considérons dans ce paragraphe une impulsion laser constante de longueur égale à celle d'une période d'oscillation de l'onde émise à un instant $t = 0$. Dans le cas d'une longueur d'onde à 532nm, cela équivaux à une durée d'impulsion de 1,77fs (voir Figure II-30).

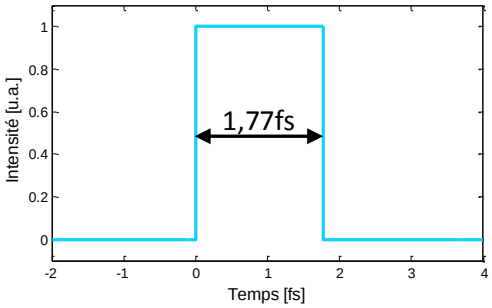


Figure II-30 : impulsion laser constante de durée égale à une période d'oscillation pour un laser centré à 532nm.

Le milieu de propagation est dilué et on suppose la vitesse de propagation des photons égale à la célérité de la lumière dans le vide ($c_0 = 2{,}99792.10^8 m.s^{-1}$). A chaque instant t_i, une fraction des photons de l'impulsion laser sera rétrodiffusée. Ils seront détectés à un instant $t = 2\frac{x_i}{c_0}$ (voir Figure II-31).

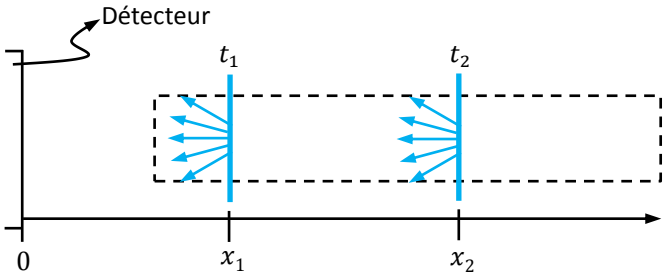


Figure II-31 : Schéma de principe de diffusion selon la position et le temps.

Le signal mesuré par le détecteur à un instant t proviendra de la position $x = \frac{ct}{2}$ sur la ligne de visée laser. Ce signal dépend de l'impulsion laser émise I_0, de l'angle solide $\Omega(x)$, de la transmission aller/retour du milieu entre le détecteur et le point x, du coefficient de rétrodiffusion lui-même dépendant du mélange gazeux. Dans le cas d'une impulsion laser de longueur négligeable face aux dimensions caractéristiques de l'expérience (dimensions du jet gazeux, dimensions du front de flamme,…), l'angle solide, le coefficient de rétrodiffusion, la fonction d'appareillage et le coefficient de transmission sont considérés comme étant homogènes sur toute la longueur de l'impulsion laser. L'équation Lidar s'écrit alors comme suit [**71**]:

$$I_d(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \tau^2\big(\lambda, x = 0 \rightarrow x(t)\big) \times \beta(\lambda, x) \times \lambda \qquad \textbf{Eq. II-49}$$

$I_d(x)$: Signal Lidar reçu par la caméra Streak ;

I_0 : Signal laser incident ;

A : Fonction d'appareillage ;

Ω : Angle Solide de réception ;

$\beta(x) = \sum_i[\beta_i(\lambda, x)]$: Coefficient de rétrodiffusion du mélange gazeux contenant *n* espèces, *i* désignant une espèce particulière ;

$\beta_i(\lambda, x) = N(x)X_i\sigma_i(\lambda)$: Coefficient de rétrodiffusion de l'espèce *i*. N est la densité moléculaire en x, X_i est la fraction molaire de l'espèce *i* et σ_i la section efficace de diffusion Rayleigh (voir Eq. II-14).

$\tau(\lambda, a \to x) = exp\left[-\int_a^x \sum_i K_i\,(x')\,dx'\right]$: Facteur de transmission du milieu étudié entre $x' = a$ et $x' = x$. A noter que ce facteur est négligeable dans le visible et l'infrarouge [3].

A partir des bases de données des coefficients d'absorption de H_2O, CO_2 et CH_4, nous calculons les facteurs de transmission de ces gaz entre 400nm et 1000nm pour différentes températures et fractions molaires.

La Figure II-32 présente les facteurs de transmission de l'eau entre 400nm et 1000nm à 20°C pour des fractions molaires en H_2O de 5%, 50% et 100%.

La Figure II-33 présente les facteurs de transmission de l'eau entre 400nm et 1000nm à 2000°C pour des fractions molaires en H_2O de 5%, 50% et 100%.

La Figure II-34 présente les facteurs de transmission du CO_2 entre 400nm et 1000nm à 20°C et 2000°C pour une fraction molaire de 100%.

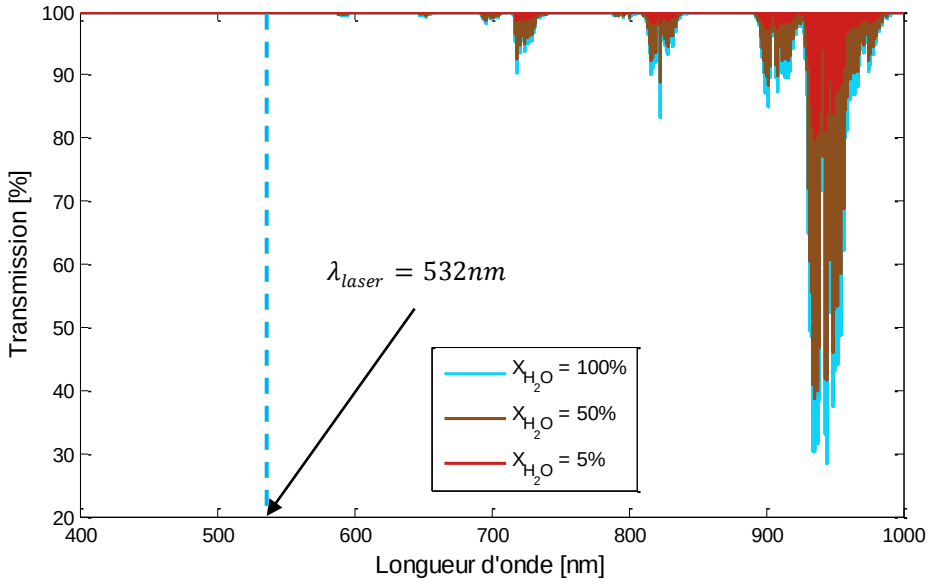


Figure II-32 : Facteur de transmission de H_2O à 20°C

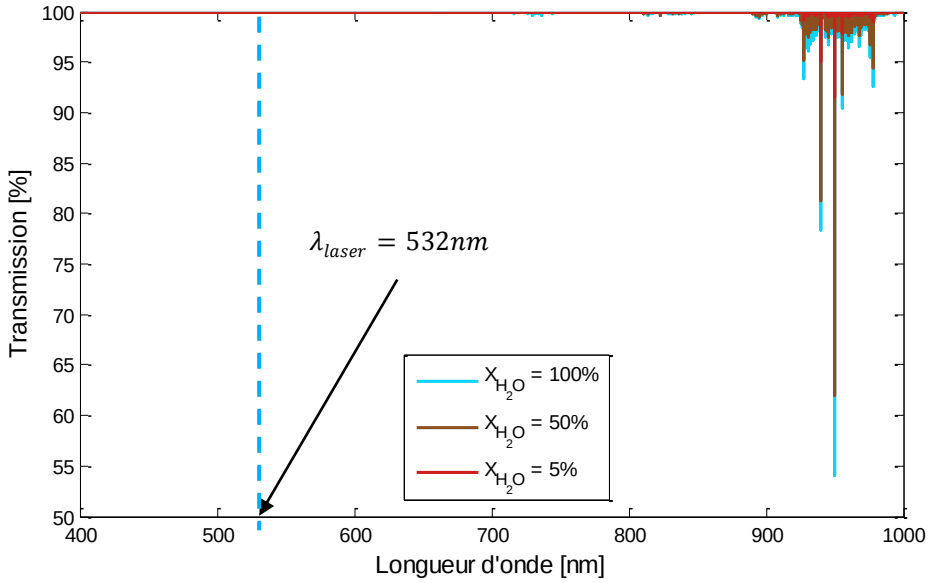


Figure II-33 : Facteur de transmission de H_2O à 2000°C

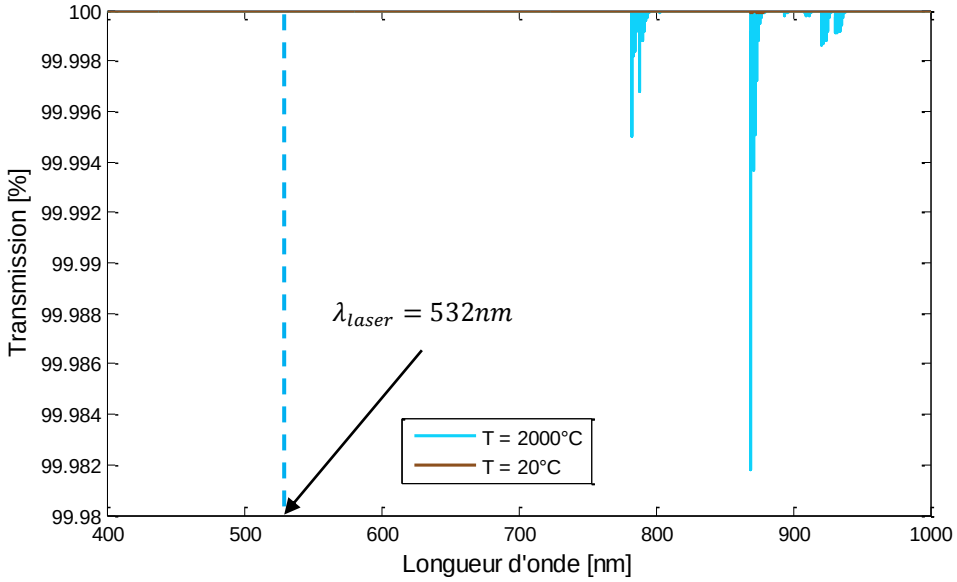


Figure II-34 : Facteur de transmission pour 100% de CO_2 à 20°C et 2000°C.

Nous avons choisi une longueur d'onde située en dehors des zones d'absorption. La longueur d'onde du laser est centrée sur 532nm. A cette longueur d'onde, l'équation du Lidar devient :

$$I_d(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \beta(\lambda, x) \times \lambda \qquad \text{Eq. II-50}$$

Nous disposons d'un OPO qui nous permet d'utiliser n'importe quelle longueur d'onde entre 0,42µm et 2,3µm avec une zone inaccessible entre 0,68µm et 0,74µm sauf si nous avions utilisé la méthode DIAL (voir paragraphe II.C.3).

Bien entendu, cette configuration d'impulsions laser est une vue de l'esprit et il convient de traiter le cas réel, cas d'une impulsion de forme gaussienne de durée très supérieure à la période d'oscillation.

II.C.2 Lidar avec des impulsions de durée finie

Dans le cas d'impulsions laser brèves (voir paragraphe II.C.1), l'ensemble des photons détectés par la caméra à un instant *t* correspond à une position *x(t)* le long de la ligne de visée. En revanche, dans le cas réel les impulsions ont une durée finie. Ici, les impulsions du laser YAG picoseconde sont gaussiennes dans le temps et de 28,5ps de largeur à mi-hauteur (soit environ 9mm à la vitesse de la lumière dans le vide). Ceci implique que la caméra observe à un instant *t* non seulement le signal provenant de la position *x(t)* associée mais également l'ensemble des signaux émis depuis des positions amont partis avant l'instant *t* ainsi que les signaux provenant de positions avales partis après l'instant *t* (voir Figure II-35).

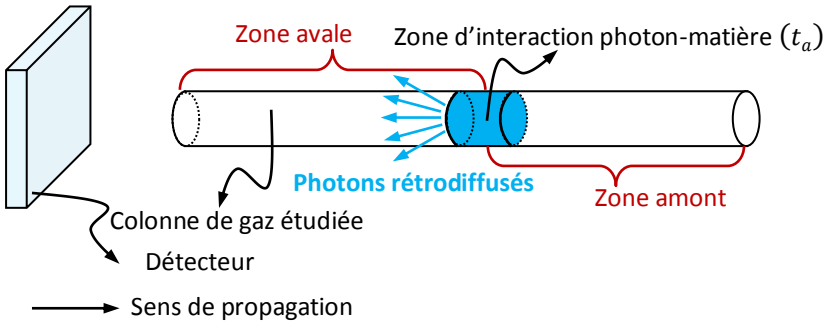


Figure II-35 : Schéma de principe d'un système LIDAR avec prise en compte des zones amont et aval.

Dans le domaine spatio-temporel défini Figure II-36, la caméra de détection est placée en $x = x_c$. Les lignes rouges représentent l'impulsion laser en fonction du temps et de l'espace. A un instant t_{c1}, la caméra observe la somme des signaux émis depuis l'ensemble des couples (x, t) de la droite $x(t) = c(t_{c1} - t) + x_c$ (droite bleue sur la Figure II-36).

Soit I_l le signal laser incident et $I_r(t)$ le signal rétrodiffusé reçu par la caméra à l'instant *t*, alors :

$$I_r(t) = A(t) \int_{\Delta_t} I_l(x,t)\Omega(x)\beta(x,\lambda)dx \qquad \textbf{Eq. II-51}$$

Où $I_l(x,t) = \frac{1}{\delta\sqrt{2\pi}} exp\left[-\frac{(x-x_0(t))^2}{2\delta^2}\right]$ est une gaussienne normalisée avec $\delta = \frac{fwhm}{2\sqrt{2ln(2)}}$, $fwhm$ la largeur à mi-hauteur et x_0 la position du centre de la gaussienne. A est une constante dépendante de l'appareillage et des conditions de mesure et β le coefficient de rétrodiffusion Rayleigh (en $[m^{-1}]$).

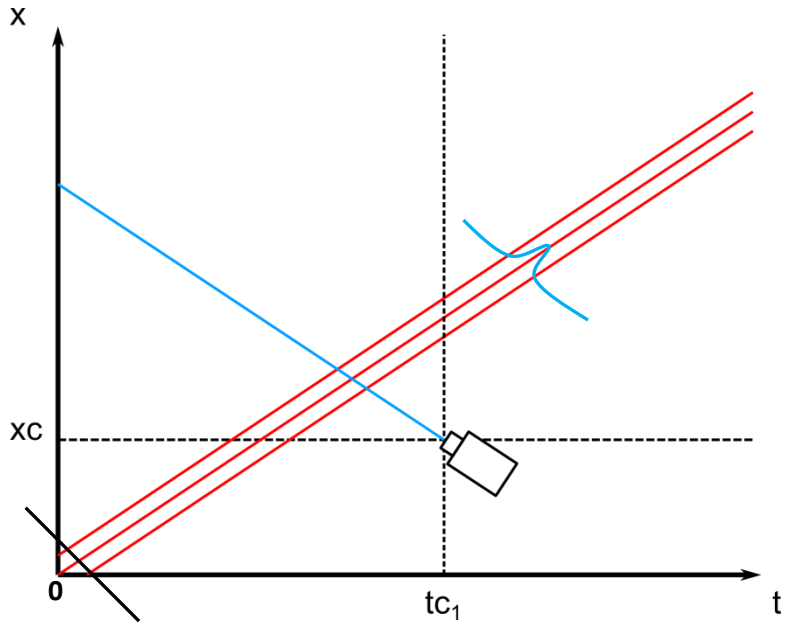


Figure II-36 : Signal total observé par la caméra à un instant t_{c1}

La Figure II-37 représente l'impulsion du laser YAG Ekspla doublé (longueur d'onde centrée autour de 532nm) approvisionné par le laboratoire pour cette étude. L'impulsion est mesurée directement par la caméra Streak pour une fenêtre temporelle de 300ps.

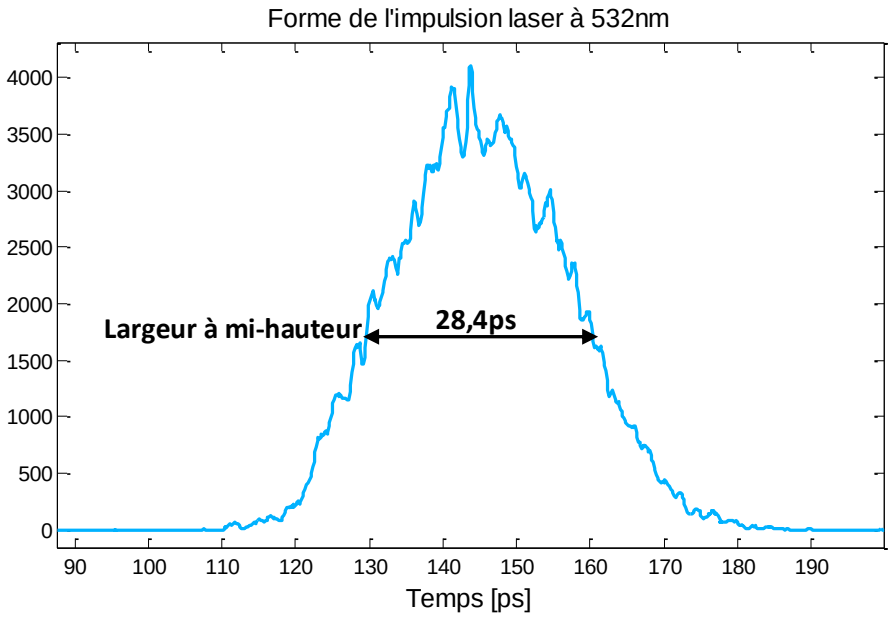


Figure II-37 : impulsion laser YAG à 532nm mesuré directement sur la caméra Streak avec une fenêtre temporelle de 300ps, soit une résolution temporelle de 1,7ps.

La largeur à mi-hauteur est de 28,4ps et correspond à la durée annoncée par le constructeur (Ekspla).

II.C.3 Méthode DIAL (Differential Absorption Lidar)

La méthode DIAL permet d'effectuer une mesure LIDAR sans avoir à tenir compte du coefficient de rétrodiffusion. Elle est utilisée pour déterminer en plus de la concentration totale, la fraction molaire d'une espèce en particulier. Cette méthode repose sur la sélection de longueurs d'ondes proches λ_a et λ_b. Ces longueurs d'ondes sont suffisamment proches pour que l'on puisse considérer la section efficace de

diffusion constante. λ_a est absorbée par la seule espèce étudiée et λ_b est totalement transmise (voir Figure II-38) [**72**] [**73**].

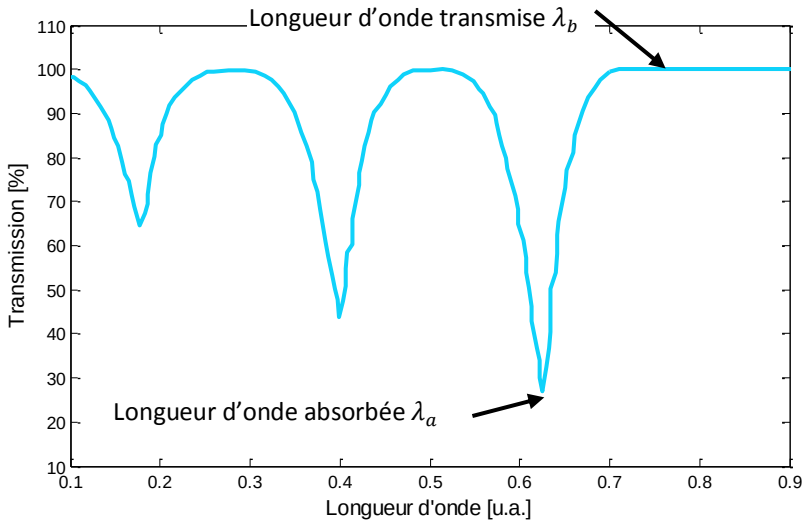


Figure II-38 : Longueur d'onde absorbée et transmise.

Considérons un volume de gaz quelconque à une pression $P(x)$, une température $T(x)$ et une concentration totale $C(x)$. Le mélange gazeux est composé des diverses espèces ayant une transmission de 1 (100%) aux longueurs d'onde λ_a *et* λ_b ainsi que d'une espèce ξ de fraction molaire $X_\xi(x)$, d'absorption $K_\xi(\lambda, x)$ et de coefficient de transmission $\tau_\xi(\lambda, x)$. L'absorption et le coefficient de transmission dépendent de l'abscisse x au travers de $P(x)$, $T(x)$, $C(x)$ et $X_\xi(x)$. En considérant une impulsion laser de longueur $\Delta l\ [m]$ négligeable devant les dimensions caractéristiques du phénomène analysé et à partir de l'équation Eq. II-49 page 63, nous obtenons pour une longueur d'onde $\lambda = \lambda_a$ ou λ_b l'équation Lidar suivante :

$$I^\lambda(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \tau_\xi^2\big(\lambda, x = 0 \to x(t)\big) \times \beta(\lambda, x) \times \Delta l \qquad \textbf{Eq. II-52}$$

En développant le coefficient de transmission en fonction de l'absorption, l'équation Eq. II-52 devient :

$$I^\lambda(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times e^{-2\int_0^x K_\xi(\lambda,x')C(x')X_\xi(x')dx'} \times \beta(\lambda, x) \times \Delta l \qquad \textbf{Eq. II-53}$$

En considérant λ_a et λ_b proches, le rapport des signaux Lidar s'écrit :

$$\frac{I^{\lambda_a}(x)}{I^{\lambda_b}(x)} = \frac{\cancel{I_0 \times A(x) \times \Omega(x)} \times e^{-2\int_0^x K_\xi(\lambda_a,x')C(x')X_\xi(x')dx'} \times \cancel{\beta(\lambda_a, x) \times \Delta l}}{\cancel{I_0 \times A(x) \times \Omega(x)} \times e^{-2\int_0^x K_\xi(\lambda_b,x')C(x')X_\xi(x')dx'} \times \cancel{\beta(\lambda_b, x) \times \Delta l}}$$

$$\Leftrightarrow \frac{I^{\lambda_a}(x)}{I^{\lambda_b}(x)} = e^{-2\int_0^x [K_\xi(\lambda_a,x') - K_\xi(\lambda_b,x')]C(x')X_\xi(x')dx'}$$

$$\Leftrightarrow -2\int_0^x \big[K_\xi(\lambda_a, x') - K_\xi(\lambda_b, x')\big] C(x')X_\xi(x')dx' = ln\left(\frac{I^{\lambda_a}(x)}{I^{\lambda_b}(x)}\right)$$

$$\Leftrightarrow \big[K_\xi(\lambda_a, x) - K_\xi(\lambda_b, x)\big]C(x)X_\xi(x) = -\frac{1}{2}\frac{\partial ln\left(\frac{I^{\lambda_a}(x)}{I^{\lambda_b}(x)}\right)}{\partial x} \qquad \textbf{Eq. II-54}$$

Cette dernière équation nous permet d'obtenir à partir du rapport des deux signaux Lidar le produit suivant :

$$\left[K_\xi(\lambda_a, x) - K_\xi(\lambda_b, x)\right] C(x) X_\xi(x) \qquad \textbf{Eq. II-55}$$

Au début de ce travail de thèse, nous utilisions un laser Blanc SuperK de la marque Koheras et prété par le laboratoire FEMTO-ST. Ce laser blanc délivre des impulsions de 5ps avec un domaine spectral continu entre 490nm et 2200nm. Il nous a permis de réaliser les premiers essais de mesure en rétrodiffusion et devait nous permettre de réaliser un DIAL à partir de deux longueurs d'onde sélectionnées sur une même impulsion. La mesure DIAL aurait été réalisée simultanément aux deux longueurs d'onde. Cependant, cette méthode fondée sur l'absorption n'est viable que dans le cadre d'une absorption significative sur une distance égale à celle de la résolution spatiale souhaitée. Dans cette thèse, la résolution spatiale caractéristique est de l'ordre de 5mm et n'est pas suffisante pour envisager l'application de cette méthode. En effet, sur le domaine de detection de la caméra Streak (200nm – 900nm), la molécule d'eau a une transmission de 1 pour une épaisseur de gaz de 5mm constituée à 100% d'eau et portée à 2000°C. La transmission du CO_2 et du méthane est la même pour des conditions analogues.

II.D Rappels sur le rayonnement thermique

Le rayonnement thermique est l'un des trois modes fondamentaux de transfert de chaleur avec la conduction et la convection. L'énergie thermique ainsi échangée d'un corps à un autre provient de l'agitation thermique des molécules et atomes les constituants et en particulier leur énergie cinétique.

La **conduction thermique** est un processus issu de l'interaction directe entre les molécules et atomes voisins. Le transfert se fera par collision d'une particule vers une particule plus lente. Ce mode de transfert de la chaleur est présent pour tous les états de la matière : solides, liquides et gaz. Dans les conducteurs électriques, les électrons libres participent au transfert de chaleur, c'est pourquoi les conducteurs électriques sont aussi souvent de bons conducteurs thermiques.

La **convection** est un mouvement d'ensemble dans un fluide (liquide ou gaz) créé par les différences de température macroscopiques. Ce mécanisme peut être régi par la gravité pour une convection naturelle ou par une pompe pour une convection forcée.

Enfin, le **rayonnement thermique** est un processus de propagation d'énergie par ondes électromagnétiques. Cette propagation ne nécessite pas de support matériel et s'effectue à la vitesse de la lumière dans le vide.

II.D.1 Nature et définition du rayonnement thermique

Tous les corps émettent et absorbent continuellement un rayonnement thermique par augmentation ou diminution de leur énergie interne. Les molécules, atomes ou électrons d'un corps peuvent perdre une partie de leur énergie cinétique de façon spontanée ou par interaction avec une autre particule. A l'inverse, un corps peut absorber tout ou partie d'un rayonnement thermique par augmentation de l'énergie cinétique des particules le constituant.

Le rayonnement thermique peut être décrit selon les lois de l'électromagnétisme ou par l'approche corpusculaire avec les photons. Les ondes électromagnétiques sont décrites par le champ électrique $\vec{E}$ et le champ magnétique $\overrightarrow{H}$ liés par les équations de Maxwell.

Le rayonnement thermique est une somme de rayonnements monochromatiques caractérisés suivant les disciplines (optique, spectroscopie optique,…) par les grandeurs équivalentes suivantes :

- $\upsilon\ [Hz]$ la fréquence ;
- $\lambda\ [\mu m]$ la longueur d'onde ;
- $\sigma\ [cm^{-1}]$.

La relation entre ces quantités est définie par :

$$\nu = \frac{c}{\lambda} = c\sigma \qquad \text{Eq. II-56}$$

Avec c la célérité de la lumière dans un milieu d'indice n.

Bien que la fréquence soit la grandeur invariante caractérisant l'onde électromagnétique, les domaines spectraux sont usuellement décrits par les longueurs d'onde. Les ondes d'origine thermique occupent une faible portion du spectre électromagnétique, comprise entre 0,1µm (Ultra-Violet) et 100µm (Infrarouge lointain) (voir Figure II-39).

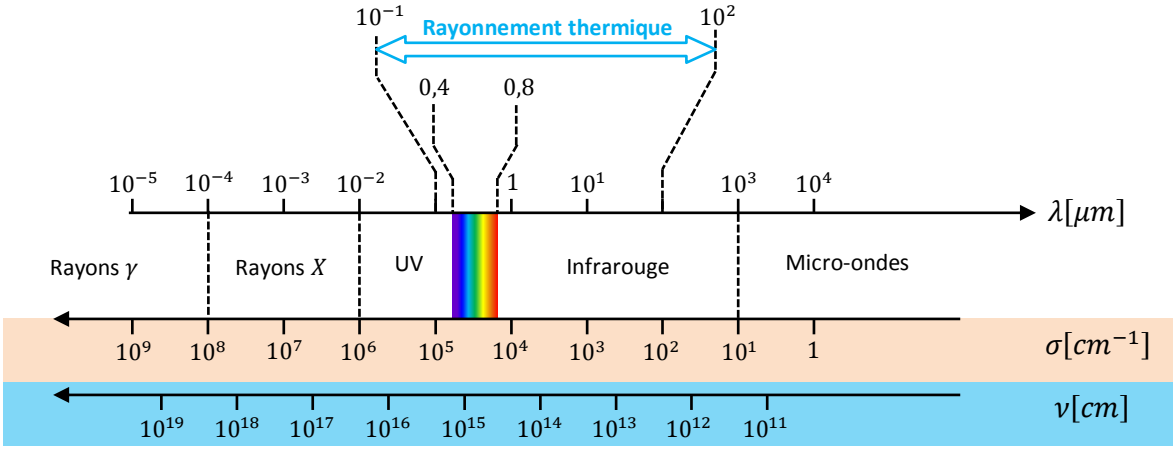


Figure II-39 : Domaines du spectre électromagnétique

Le rayonnement thermique est à distinguer de la luminescence. Bien que pouvant émettre des rayonnements électromagnétiques dans le domaine spectral du rayonnement thermique, les mécanismes physiques impliqués dans la luminescence sont différents. Ils ont pour origine des phénomènes électriques ou chimiques par exemple.

II.D.2 Rayonnement des corps opaques

Tout corps émet un rayonnement. Ce rayonnement est fonction de sa température, de sa composition, de sa forme, de son état de surface,… Lorsque le rayonnement émis rencontre un autre corps, il peut être en partie réfléchi ρ, absorbé α ou transmis τ.

Les corps opaques ont une épaisseur telle que leur facteur de transmission est nul. L'intégralité du rayonnement est absorbée ou réfléchie. Nous considérons dans cette section que le milieu environnant est le vide, c'est-à-dire avec un coefficient de transmission de 1. L'absorption et la réflexion ne seront pas prises en compte.

II.D.2.1 Rayonnement total d'une source élémentaire dans l'espace

Considérons une source de rayonnement constituée par un petit élément de surface dS entourant un point O. Cet élément de surface est suffisamment petit pour être considéré comme plan et sa température est homogène en tout point. Cette source émet un flux d'énergie $d\phi_e\,[W]$ dans tout le demi-espace qui l'entoure (espace hémisphérique). Le flux d'énergie est intégré sur tout le domaine spectral d'émission de la source, il est total.

Afin de tenir compte de la surface rayonnante et de comparer les flux d'énergie provenant de surfaces différentes, nous introduisons l'émittance totale notée M:

$$M = \frac{d\phi_e}{dS}[W.cm^{-2}] \qquad \text{Eq. II-57}$$

L'information supplémentaire apportée par l'émittance relativement au flux n'est pas suffisante puisqu'elle ne prend pas en considération la dépendance du flux à la direction de l'émission par rapport à la surface. Nous définissons la direction Δ par un système de coordonnées sphériques fondé sur un espace hémisphérique unité présenté en Figure II-40. La direction est définie par l'angle azimutal φ et par l'angle polaire θ mesurée relativement à la normale $\vec{n}$ à la surface dS.

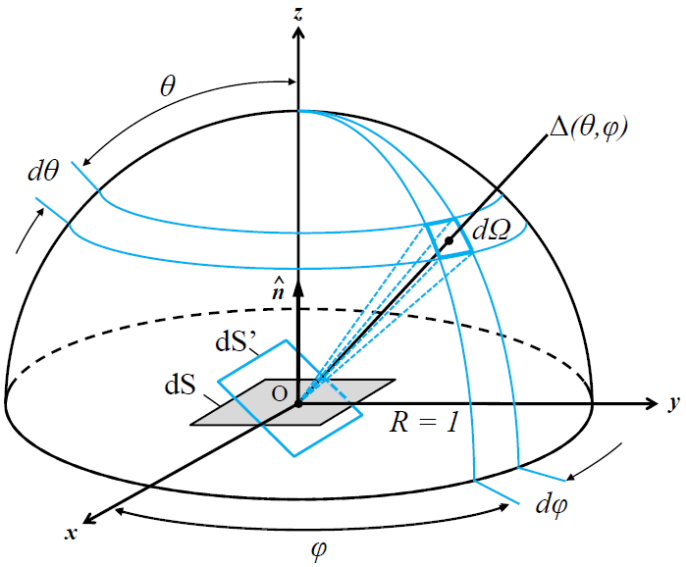


Figure II-40 : Direction d'émission et angle solide pour l'hémisphère de rayon unité [7]

Soit $d\phi_e\,(\theta,\varphi)$ la portion de flux radiatif provenant de la source élémentaire dS qui rayonne dans l'angle solide élémentaire $d\Omega$ entourant la direction $\Delta(\theta,\varphi)$. La luminance totale est la puissance rayonnée par unité d'angle solide $d\Omega$ entourant la direction $\Delta(\theta,\varphi)$ et par unité de surface projetée perpendiculairement à cette direction : $dS' = dScos\theta$.

$$L(\theta,\varphi) = \frac{d\phi_e\,(\theta,\varphi)}{dScos\theta d\Omega}\ [W.cm^{-2}.sr^{-1}] \qquad \textbf{Eq. II-58}$$

Où $dScos\theta$ est l'aire apparente depuis le point d'observation situé au centre de $d\Omega$. L'angle solide élémentaire est définit par $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$.

La luminance totale est dépendante du nombre d'onde σ et est notée :

$$L_\sigma(\theta,\varphi) = \frac{d\phi_e\,(\theta,\varphi)}{dScos\theta d\Omega}\ [W.cm^{-2}.sr^{-1}] \qquad \textbf{Eq. II-59}$$

II.D.2.2 Définition du corps noir

La caractérisation de l'émission de rayonnement d'un corps opaque se fait via un corps de référence : **le corps noir.** Par définition, un corps noir absorbe la totalité du rayonnement incident, indépendamment du nombre d'onde et de l'angle d'incidence. Ses facteurs de réflexion et de transmission sont nuls. Puisque le corps noir est un absorbeur idéal, c'est également un émetteur idéal avec un rayonnement isotrope. A chaque température, il émet un maximum d'énergie.

En réalité, le corps noir est un corps idéal et n'existe pas. Cependant, certains systèmes peuvent s'en approcher. Pour cela, il faut réaliser une cavité avec des parois opaques et isothermes avec un orifice dont la surface est significativement inférieure à la surface de la cavité. Typiquement, si le système est tel que $\frac{S_{orifice}}{S_{cavité}} < \frac{1}{10}$ alors $\varepsilon > 0{,}98$ (voir Figure II-41).

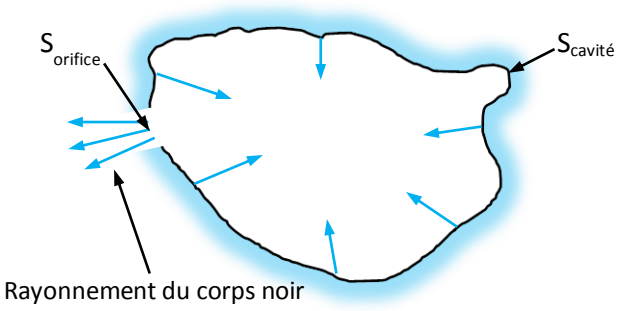


Figure II-41 : Schéma d'un corps noir avec orifice

II.D.2.3 Luminance du corps noir

Puisque le corps noir émet un rayonnement isotrope, ses luminances totales et spectrales ne dépendent pas de la direction d'observation. La loi de Planck issue de la théorie des quanta d'énergie permet de décrire la luminance monochromatique d'un corps noir par unité de surface et unité d'angle solide à une température T donnée :

$$L_\sigma(\sigma,T) = \frac{c_1\sigma^3}{\exp\left(\frac{c_2\sigma}{T}\right)-1}\ [W.cm^{-2}.sr^{-1}.cm] \qquad \text{Eq. II-60}$$

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

- $c_1 = 2hc_0^2 = 1{,}1910.10^{-12}\ [W.cm^{-2}.sr^{-1}]$;
- $c_2 = \frac{hc_0}{k_B} = 1{,}4388\ [K.cm]$.

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

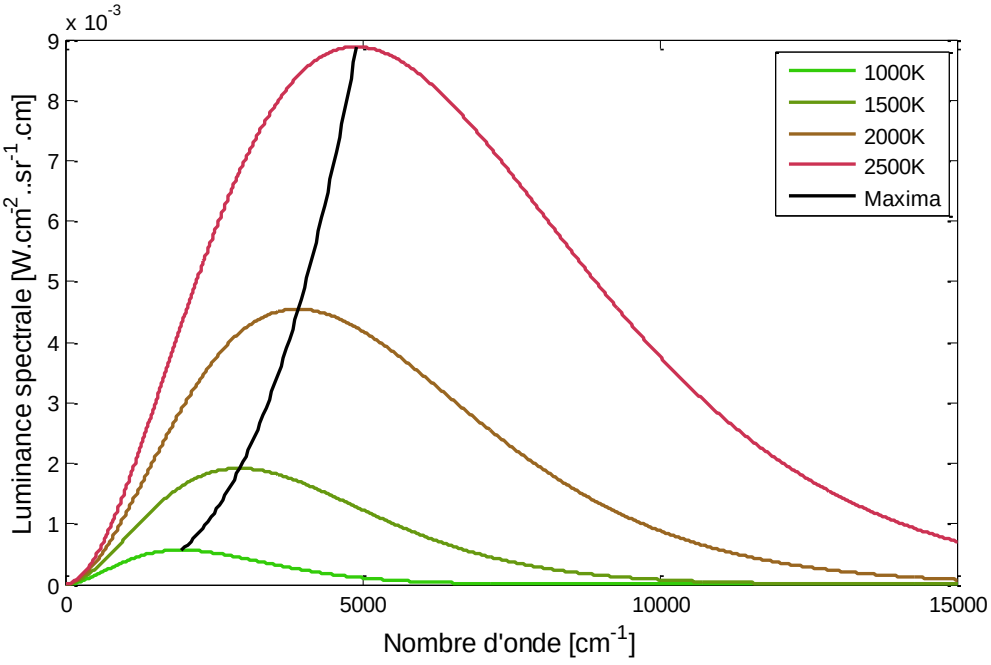


Figure II-42 : Luminance spectrale de corps noir pour différentes températures entre 0 et 15000cm^{-1}

II.D.2.4 Caractérisation du rayonnement des corps opaques réels

Comme nous venons de le voir, le corps noir est un corps idéal rayonnant une énergie maximale pour une température T donnée. Les corps réels, pour une même température T rayonnent une moindre énergie telle que le rapport entre la luminance d'un corps réel et la luminance du corps noir est toujours comprise entre 0 et 1. Ce rapport est le facteur d'émission ou émissivité noté ε_σ qui est défini comme suit :

$$\varepsilon_\sigma(\theta,\varphi,\sigma,T) = \frac{L_\sigma(\sigma,T)}{L_\sigma^o(\sigma,T)} \qquad \text{Eq. II-61}$$

Avec L_σ la luminance du corps réel et L_σ^o la luminance du corps noir. Par définition, l'émissivité du corps noir vaut 1.

II.D.3 Introduction au transfert radiatif dans un milieu semi-transparent non diffusant

Une grande majorité de gaz tels que H_2O ou CO_2 sont transparents au rayonnement thermique dans certaines bandes spectrales et absorbantes dans d'autre, c'est ce qui définit les milieux semi-transparents[1].

Dans les milieux semi-transparents, l'émission et l'absorption ne sont plus des phénomènes surfaciques mais des phénomènes volumiques. Nous allons décrire l'interaction entre un volume de gaz dV homogène en concentration et température et un rayonnement thermique monochromatique de nombre d'onde σ (voir Figure II-43)

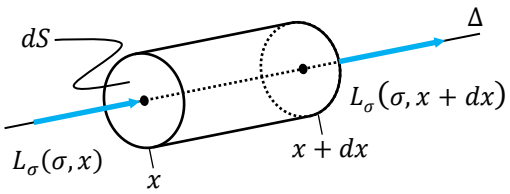


Figure II-43 : Luminance spectrale incidente à un volume de gaz élémentaire

La modélisation sera abordée avec les simplifications suivantes :

- L'équilibre thermodynamique local est supposé atteint ;
- Le milieu étudié est dilué et sans particules ;
- La propagation du rayonnement est instantanée ;
- Les propriétés thermodynamiques sont stationnaires par rapport au temps de la mesure.

II.D.3.1 Atténuation par absorption

Selon son nombre d'onde σ, le rayonnement incident à l'élément de surface dS et selon la normale à celui-ci, peut être tout ou partie absorbé par le volume élémentaire $dV = dxdS$. L'absorption dépend de σ, de la largeur spectrale de l'onde incidente, de la concentration C_i du gaz, de sa température T, de la pression totale P_{tot} ainsi que de l'épaisseur dx du volume traversé. Il convient désormais d'introduire le coefficient d'absorption monochromatique $K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})$ $[cm^{-1}]$. On exprime la perte d'énergie par absorption $dL_\sigma^a(\sigma,x)$ selon la relation suivante :

[1] Il existe également des liquides et solides semi-transparents lorsqu'ils sont d'épaisseur finie.

$$dL_\sigma^a(\sigma,x) = K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})L_\sigma(\sigma,x)dx \qquad \text{Eq. II-62}$$

II.D.3.2 Gain par émission

Lorsque l'équilibre thermodynamique local est atteint, la loi de Kirchhoff impose l'égalité entre le facteur d'absorption monochromatique et le facteur d'émission monochromatique. Pour un volume de gaz dV homogène de concentration C_i, de température T, de pression totale P_{tot} et d'épaisseur dx, le rayonnement émis est fonction du coefficient d'absorption monochromatique $K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})$ et de la luminance spectrale du corps noir $L_\sigma^o(\sigma,T)$:

$$dL_\sigma^e(\sigma,x) = K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})\, L_\sigma^o(\sigma,x)dx \qquad \text{Eq. II-63}$$

II.D.3.3 Equation du transfert radiatif

Considérons le volume de gaz élémentaire de la Figure II-43. La variation de luminance spectrale dans la direction Δ dépend de l'émission et de l'absorption locale dont le bilan caractérise l'équation du transfert radiatif (E.T.R.) :

$$\frac{dL_\sigma(\sigma,x)}{dx} = \frac{1}{dx}\left(-dL_\sigma^a(\sigma,x) + dL_\sigma^e(\sigma,x)\right)$$
$$= -K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})L_\sigma(\sigma,x) + K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot})\, L_\sigma^o(\sigma,x) \qquad \text{Eq. II-64}$$

Un volume de gaz quelconque peut être décomposé en volumes élémentaires homogènes en concentration et température. Pour une colonne de gaz de longueur *d*, la luminance en *d* est définie selon les coefficients d'absorption monochromatiques qui dépendent de la position sur la colonne de gaz. Nous écrivons alors $K_\sigma(\sigma,T,C_i,P_{tot}) = K_\sigma(\sigma,x)$ afin de simplifier l'écriture et obtenons la luminance émergente de la colonne de gaz par intégration de l'équation Eq. II-60 :

$$L_\sigma(\sigma,d) = exp\left(-\int_0^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right)L_\sigma(\sigma,0) + \int_0^d K_\sigma(\sigma,x)\; L_\sigma^o(T(x))exp\left(-\int_x^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right)dx \qquad \text{Eq. II-65}$$

- $L_\sigma(\sigma,d)$ est la luminance en sortie de colonne ;
- $L_\sigma(\sigma,0)$ est la luminance en $x = 0$. Elle peut être due à la présence d'une paroi derrière la colonne de gaz ;
- $exp\left(-\int_0^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right)$ est le facteur de transmission de la colonne de gaz, noté $\tau_\sigma(\sigma,0\to d)$ dans un souci de simplification des notations ;
- $exp\left(-\int_x^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right)$ est le facteur de transmission (noté $\tau_\sigma(\sigma,x\to d)$) de la partie de colonne de gaz entre le volume élémentaire de luminance $\int_0^d K_\sigma(\sigma,x)\; L_\sigma^o(T(x))$ et le point *d*.

C'est cette équation (Eq. II-65) que nous inverserons dans le cadre de la méthode de mesure de température et concentrations par émission de rayonnement présentée à la section III.A.

Chapitre III : Modèle et validation sur une flamme de méthane

La méthode couplée proposée permet d'associer la sensibilité spatiale de la mesure Lidar (III.A) à la sensibilité de la mesure spectrale à la température maximale (III.A) et à la concentration d'une espèce en. Le spectre mesuré est intégré le long de la ligne de visée.

La méthode Lidar permet de déterminer la forme des profils spatiaux de température. La durée d'impulsion du laser limite la résolution spatiale (paragraphes III.A.1 et III.A.2) et la méconnaissance de la composition du milieu étudié introduit une incertitude sur le profil de température (III.A.3).

Le modèle en émission de rayonnement ne permet pas une résolution analytique du problème et un algorithme de minimisation est nécessaire (III.B.2).

Nous présentons dans ce chapitre chacune des deux méthodes indépendamment l'une de l'autre puis nous présentons la méthode de couplage que nous avons développée (III.B). Enfin, nous simulons une flamme CH_4/Air (III.C.3.2) que nous réalisons expérimentalement (III.C.3.3) afin de comparer les résultats obtenus.

III.A Mesure de température par Lidar Rayleigh picoseconde

La méthode de mesure par LIDAR-Rayleigh permet de déterminer le long d'une ligne de visée laser le profil de température au sein d'un jet gazeux ou d'une réaction de combustion. Une impulsion laser, dont la longueur fixe la résolution spatiale, traverse le milieu étudié. Les photons de l'impulsion laser incidente interagissent avec les particules, molécules et atomes du milieu. Différentes interactions interviennent (voir la section II.A). Une partie du signal est élastiquement diffusée selon les lois définies au paragraphe II.A.2. Ce signal dépend du milieu étudié via sa concentration totale, la fraction molaire des différentes espèces présentes et la section efficace de diffusion de ces espèces. La concentration totale se définie au travers de l'équation d'état et lorsque le milieu étudié est à faible pression, cette loi peut se réduire à celle des gaz parfaits :

$$P(x)V(x) = n(x)k_B T(x) \qquad \text{Eq. III-1}$$

Avec $P[Pa]$ la pression, $V[m^{-3}]$ le volume, $n[s.a.]$, $T[K]$ la température et k_B la constante de Boltzmann. L'équation d'état peut également s'écrire :

$$C(x) = \frac{P(x)}{k_B T(x)} \qquad \text{Eq. III-2}$$

Avec $C(x)$ $[molécules.m^{-3}]$ la concentration.

La durée d'impulsion est un paramètre d'influence important sur le signal rétrodiffusé et il convient de distinguer les impulsions infiniment brèves des impulsions laser réelles.

III.A.1 Lidar d'impulsions laser brèves d'intensité constante

Dans le cas d'une impulsion laser brève d'intensité constante, le signal reçu par le détecteur est défini comme suit (voir Eq. II-49 page 63) :

$$I_d(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \beta(\lambda, x) \times \Delta l \qquad \text{Eq. III-3}$$

Avec $\beta(x) = \sum_\xi \left[C(x) X_\xi \sigma_\xi(\lambda)\right]$ où ξ représente les différentes espèces présentes, λ la longueur d'onde, X_ξ la fraction molaire de l'espèce ξ, σ_ξ la section efficace de diffusion Rayleigh de l'espèce ξ et Δl est la longueur de l'impulsion laser.

A partir des équations Eq. III-2 et Eq. III-3, nous obtenons pour une température $T(x)$ quelconque la relation suivante :

$$I_d(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \Delta l \times \frac{P(x)}{k_B T(x)} \sum_\xi \left[X_\xi(x) \sigma_\xi(\lambda, x)\right] \qquad \text{Eq. III-4}$$

Une mesure dans le milieu environnant à une température homogène T_{amb}, conduit au signal détecté I_d^{amb} suivant :

$$I_d^{amb}(x) = I_0 \times A(x) \times \Omega(x) \times \Delta l \times \frac{P(x)}{k_B T_{amb}} \sum_{\xi'} \left[X_{\xi'}(x) \sigma_{\xi'}(\lambda, x)\right] \qquad \text{Eq. III-5}$$

Le rapport entre ces deux signaux, après simplifications, donne :

$$T(x) = \frac{I_d^{amb}(x)}{I_d(x)} \frac{\sum_\xi \left[X_\xi(x)\sigma_\xi(\lambda,x)\right]}{\sum_{\xi'} \left[X_{\xi'}(x)\sigma_{\xi'}(\lambda,x)\right]} T_{amb} \qquad \text{Eq. III-6}$$

On pose $\sum_{\xi'}\left[X_{\xi'}(x)\sigma_{\xi'}(\lambda,x)\right] = \tilde{\sigma}'$ et $\sum_\xi \left[X_\xi(x)\sigma_\xi(\lambda,x)\right] = \tilde{\sigma}$. La relation Eq. III-6 s'écrit alors :

$$T(x) = \frac{I_d^{amb}(x)}{I_d(x)} \frac{\tilde{\sigma}}{\tilde{\sigma}'} T_{amb} \qquad \text{Eq. III-7}$$

En supposant les sections efficaces moyennes $\tilde{\sigma}(x)$ et $\tilde{\sigma}'(x)$ égales, le profil de température est déterminé par la relation suivante :

$$T(x) = \frac{I_d^{amb}(x)}{I_d(x)} T_{amb} \qquad \text{Eq. III-8}$$

L'hypothèse d'égalité des sections efficaces moyennes de diffusion Rayleigh le long de la ligne de visée est forte et c'est elle qui est la source d'erreur sur les mesures de température par LIDAR..

→ **Exemple de la réaction CH_4/Air :**

L'équation chimique régissant cette réaction s'écrit :

$$CH_4 + 2O_2 + 7{,}52N_2 \rightarrow CO_2 + 2H_2O + 7{,}52N_2 \qquad \text{Eq. III-9}$$

A partir des sections efficaces de diffusion Rayleigh des molécules du Tableau II-2 page43, nous calculons l'écart relatif de la section efficace de diffusion Rayleigh entre les produits de combustion de l'équation Eq. III-9 et l'air selon la formule suivante :

$$e_\sigma = 100 \frac{\sigma_{produits} - \sigma_{air}}{\sigma_{air}} \qquad \text{Eq. III-10}$$

Nous obtenons l'écart relatif de la Figure III-1 pour une richesse ϕ comprise entre 0,5 à 1,5.

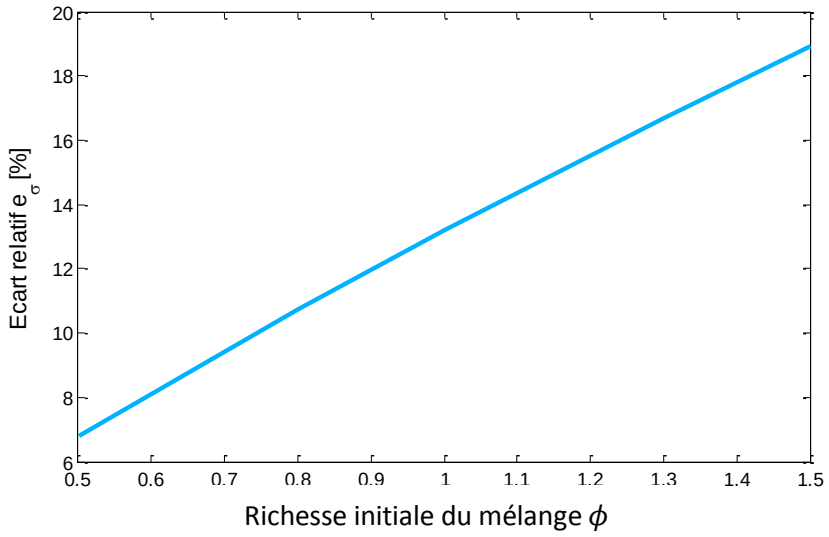


Figure III-1 : Ecart relatif entre la section efficace de l'air et celle des produits de combustion de la réaction entre le méthane et l'air (Eq. III-9)

Pour un mélange initial stœchiométrique (richesse de 1), l'écart de section efficace entre les produits de combustion et l'air est d'environ 13% ce qui conduit à une erreur sur la température mesurée d'environ 12%. A seulement 50% de richesse supplémentaire, nous obtenons un écart d'environ 19% soit environ 15% d'erreur sur la température.

→ **Exemple de la réaction C_8H_{18}/Air**

La réaction de combustion est la suivante :

$$C_8H_{18} + 12{,}5O_2 + 47N_2 \rightarrow 8CO_2 + 9H_2O + 47N_2 \qquad \textbf{Eq. III-11}$$

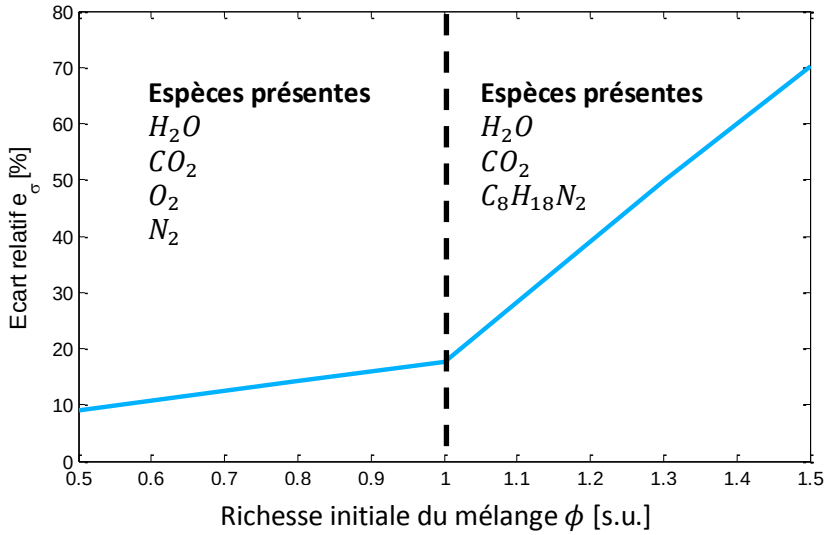


Figure III-2 : Ecart relatif entre la section efficace de l'air et celle des produits de combustion de la réaction entre l'octane et l'air (équation Eq. III-11).

Pour $\phi \leq 1$, les produits sont du CO_2 et de l'eau. Les sections efficaces de ces deux molécules sont 2,38 et 0,93 respectivement. Cela conduit à des sections efficaces moyennes relatives supérieures de 18% à celle de l'air pour une richesse de 1. En revanche, lorsque la richesse initiale est supérieure à 1, une partie de l'octane n'est pas consommée. Or, la section efficace de l'octane relative à l'air est de 67,68. Ceci explique le changement et l'importante augmentation de pente à partir d'une richesse de 1. Pour une richesse de 1,5 ; nous obtenons un écart de 70%, soit une erreur sur la température de 42%.

→ **Exemple de la réaction H_2/Air :**

L'équation de cette réaction s'écrit :

$$2H_2 + O_2 + 3{,}76N_2 \rightarrow 2H_2O + 3{,}76N_2 \qquad \textbf{Eq. III-12}$$

En appliquant à nouveau le calcul d'écart relatif de section efficace des produits de réaction par rapport à la section efficace de l'air de l'équation Eq. III-10, nous obtenons la courbe d'écart en fonction de la richesse initiale suivante :

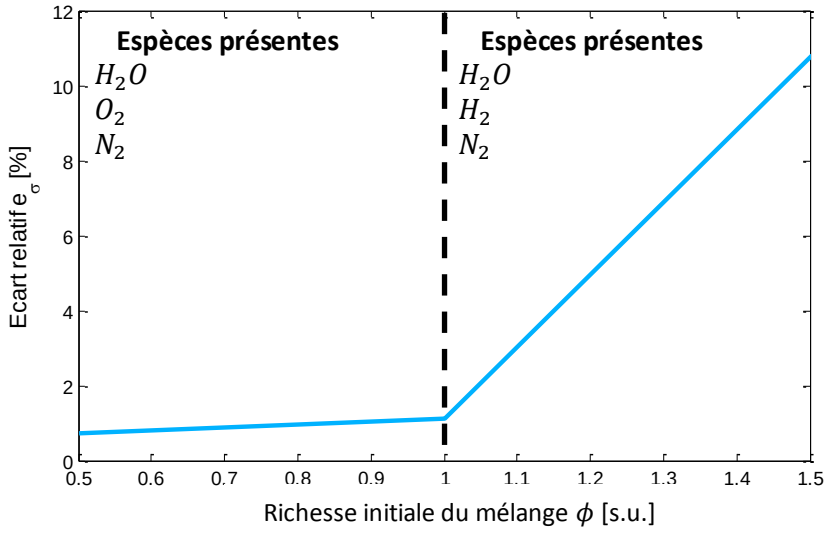


Figure III-3 : Ecart relatif entre la section efficace de l'air et celle des produits de combustion de la réaction entre l'hydrogène et l'air (équation Eq. III-12)

Dans la réaction H_2/Air, l'eau est le seul produit. La section efficace moyenne de l'eau est de 0,93 et est proche de celle de l'air. Un mélange stœchiométrique conduit donc à des produits de sections efficaces proches de celle de l'air. C'est ce que l'on observe sur la Figure III-3 avec un écart relatif de seulement 1% entre la section efficace moyenne des produits et celle de l'air pour une richesse de 1.

CONLCUSION : Les courbes des Figure III-1 à* Figure III-3 *montrent que la mesure Lidar-Rayleigh est fortement dépendante de la flamme étudiée ainsi que de la richesse du mélange. Nous avons montré dans le paragraphe II.B.2 que la section efficace moyenne évoluait également avec l'avancement de la réaction. Par exemple, pour la réaction H_2/Air dans les proportions stœchiométriques, la section efficace moyenne varie d'environ 27% entre l'instant initial (réactifs avant le début de la réaction) et la fin de la réaction (avancement maximal). Une surestimation de la section efficace de 10% implique une sous-estimation d'environ 9% de la température. La mesure Lidar seule ne permet pas de connaitre la section efficace moyenne ou la proportion de chacune des espèces présentes. Ainsi, la mesure en émission de rayonnement est indispensable afin d'obtenir la précision de 1% souhaitée sur les maxima de température.

III.A.2 Impulsions laser réelles

Dans le cas d'une impulsion laser réelle (c'est-à-dire de durée finie), nous avons vu au chapitre II.C que le signal Lidar reçu par le détecteur s'écrit :

$$I_d(t) = A(t)\int_{\Delta_t} I_0(x,t)\Omega(x)\frac{P(x)}{k_B T_{amb}}\sum_{\xi}\left[X_\xi(x)\sigma_\xi(\lambda,x)\right]dx \qquad \text{Eq. III-13}$$

Où $I_0(x,t) = \frac{1}{\delta\sqrt{2\pi}} exp\left[-\frac{(x-x_0(t))^2}{2\delta^2}\right]$ est une gaussienne normalisée avec $\delta = \frac{fwhm}{2\sqrt{2ln(2)}}$, $fwhm$ la largeur à mi-hauteur et x_0 la position du centre de la gaussienne. $A(t)$ est une fonction temporelle dépendante de l'appareillage et des conditions de mesure et β le coefficient de rétrodiffusion Rayleigh (en m^{-1}).

Dans le milieu ambiant, le signal Lidar reçu par le détecteur s'écrit :

$$I_d^{amb}(t) = A(t)\frac{P(x)}{k_B T(x)}\sigma_{air}(\lambda,x)\int_{\Delta_t} I_0(x,t)\Omega(x)dx \qquad \textbf{Eq. III-14}$$

avec la température, la pression et la section efficace (celle de l'air) constantes le long de la ligne laser.

Le rapport entre le signal obtenu dans le milieu étudié et le milieu ambiant est défini comme suit :

$$\frac{I_d(t)}{I_d^{amb}(t)} = \frac{A(t)\int_{\Delta_t} I_0(x,t)\Omega(x)\frac{P(x)}{k_B T(x)}\sum_\xi\left[X_\xi(x)\sigma_\xi(\lambda,x)\right]dx}{A(t)\frac{P(x)}{k_B T_{amb}}\sigma_{air}(\lambda,x)\int_{\Delta_t} I_0(x,t)\Omega(x)dx} \qquad \textbf{Eq. III-15}$$

A partir de cette relation, nous ne pouvons pas extraire simplement le profil de température $T(x)$.

Quelle est la perte de résolution spatiale si l'on applique le même traitement que celui du chapitre précédent (chapitre III.A.1) aux signaux LIDAR obtenus à partir d'impulsions laser réelles ? Autrement dit, quelle erreur obtient-on sur le profil de température si elle est calculée via la relation de l'équation Eq. III-8 ?

Afin de répondre à cette question, prenons un profil de température avec deux créneaux de 0,5mm de largeur, séparés d'une distance *e* et de températures maximales de 1800K (voir Figure III-4 à Figure III-7). Les impulsions laser sont de 28,5ps de largeur à mi-hauteur. Nous faisons ensuite varier la distance *e* et calculons le paramètre de résolution afin de savoir à partir de quel espacement la résolution définie par la durée de l'impulsion laser est insuffisante retrouver le profil initial.

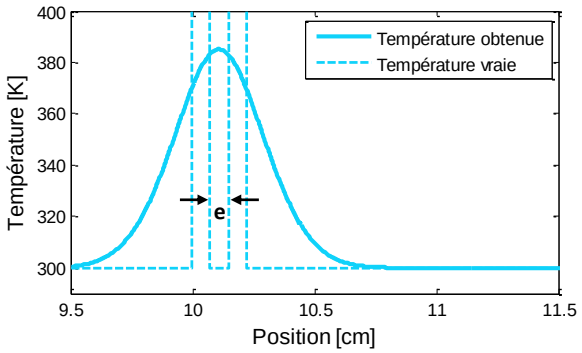


Figure III-4 : Profil de température obtenu pour e = 1mm

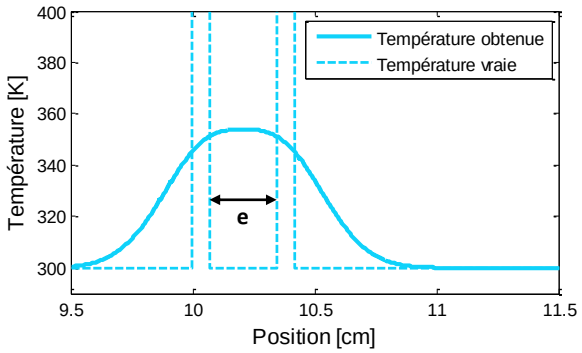


Figure III-5 : Profil de température obtenu pour e = 3mm

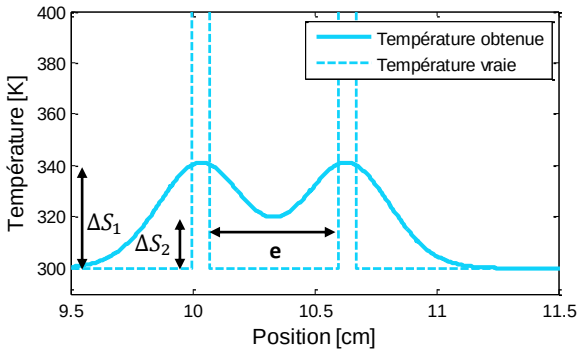


Figure III-6 : Profil de température obtenu pour e = 5,5mm

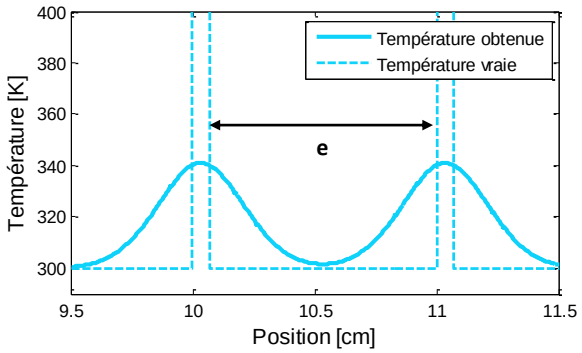


Figure III-7 : Profil de température obtenu pour e = 9,5mm

Le paramètre de résolution est définit selon la relation suivante :

$$R = \frac{\Delta S_1}{\Delta S_2} \qquad \text{Eq. III-16}$$

Nous considérons que deux objets sont spatialement résolus si le paramètre de résolution est supérieur ou égal à 2. Le paramètre de résolution augmente avec la distance entre les deux pics de température (voir Figure III-4 à Figure III-7). Il est égal à 2 lorsque l'écart est de 5,5mm (Figure III-6).

Les Figure III-8 et Figure III-9 représentent l'ensemble des Figure III-4 à Figure III-7. Chaque profil de température est constitué du premier pic en rouge ainsi que d'un des pics suivants (Figure III-8 et Figure III-9). Chacun des profils de températures (courbes continues) est obtenu à partir des profils de températures de la couleur correspondante en pointillés et du premier pic rouge.

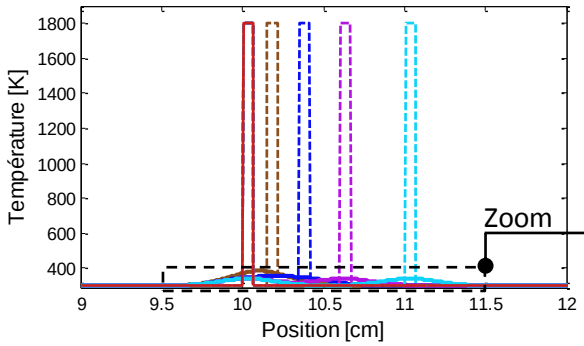


Figure III-8 : Schéma résumé des Figure III-4 à Figure III-7

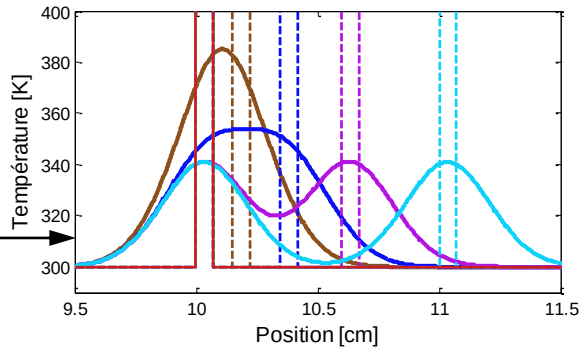


Figure III-9 : Zoom sur les courbes de température de la Figure III-8

En appliquant la relation de l'équation Eq. III-8 aux profils lidar obtenus à partir d'impulsion laser réelles, nous trouvons une résolution spatiale de 5,5mm. Avec une impulsion laser de 28,5ps, la résolution spatiale théorique attendue est de 4,5mm. Nous utiliserons donc l'équation Eq. III-8 afin de déterminer les profils de températures. Toutefois, afin d'une part de pouvoir faire fi de la mesure de référence dans le milieu sans flamme et d'autre part d'avoir une meilleure résolution spatiale, un traitement numérique fondée sur l'inversion de l'équation du Lidar (Eq. II-51) sera développé et fait l'objet du paragraphe suivant.

CONCLUSION : La résolution spatiale de notre système LIDAR (Laser + Caméra Streak) est de 5mm.

III.A.3 Traitement numérique

Un autre traitement des données Lidar est possible. Il s'agit de l'inversion de l'équation Eq. III-13. Pour cette méthode, la mesure dans le milieu ambiant n'est pas nécessaire. Commençons par présenter le modèle numérique.

La mesure Lidar donne un profil de rétrodiffusion $I_d(t)$ qui, selon l'équation Eq. III-13, dépend du profil de température le long de la ligne de visée. Le programme d'inversion cherche le profil de température T qui minimise la fonction coût définie comme suit :

$$J = \|I_d(t) - I_{calc}(t,T)\|^2 \qquad \text{Eq. III-17}$$

La paramétrisation de la température est fine, c'est-à-dire que le programme cherche une température en chacun des points d'abscisses (voir chapitre III.A pour plus d'informations sur le schéma numérique d'inversion).

Le profil de diffusion I_{calc} est obtenu à partir du modèle décrit au chapitre II.C.2. Le trajet suivi par l'impulsion laser de forme gaussienne est représenté par une matrice dans laquelle les colonnes représentent l'étendue spatiale de la gaussienne à un instant *t* et les lignes représentent l'étendue temporelle de cette même gaussienne pour une position *x* donnée. Nous prenons en compte la concentration du milieu et l'angle solide en multipliant chaque colonne par la concentration et l'angle solide en fonction de *x*.

Prenons deux cas avec une flamme de profil de température gaussien de 30mm de largeur à mi-hauteur, de température maximale de 2500K et de température à l'infini de 300K :

→ Impulsion laser de 150ps conduisant à une résolution spatiale de 25mm

→ Impulsion laser de 28,5ps conduisant à une résolution spatiale de 5mm.

Dans le premier cas, une impulsion laser de largeur à mi-hauteur de 150ps conduit à une résolution spatiale de 25mm. Le début de la région observée par la caméra se situe à 100cm de celle-ci et nous faisons converger le signal rétrodiffusé par une lentille d'environ 2cm de rayon. Dans ces conditions, nous obtenons la matrice de diffusion représentée sur la Figure III-10.

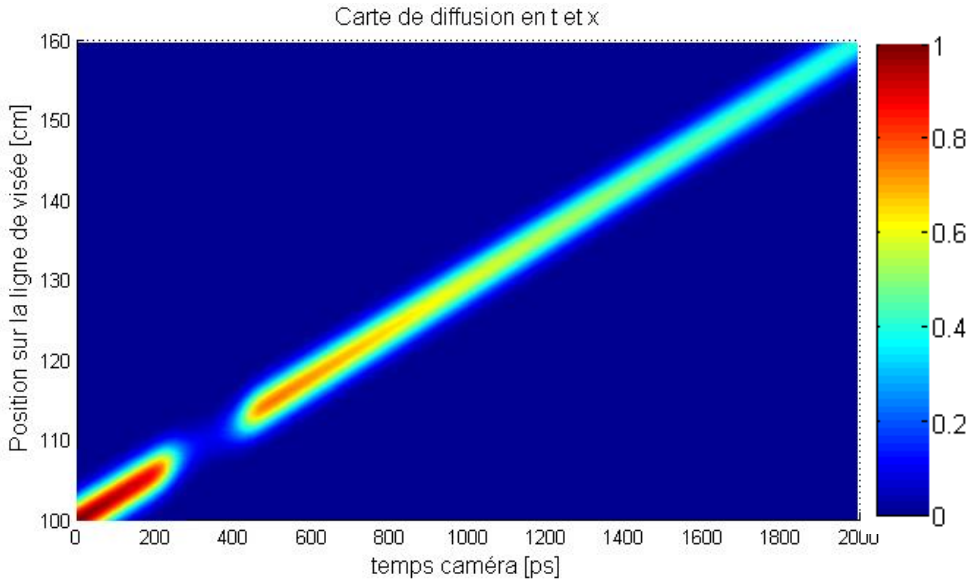


Figure III-10 : Matrice de diffusion simulée pour une flamme de profil de température gaussien de 2500K, de largeur à mi-hauteur de 3cm et une impulsion laser de 150ps.

L'inversion numérique de l'équation du Lidar donne le profil de température (points rouges) de la Figure III-11. La courbe bleu clair est le profil de température attendu. La courbe bleu foncé correspond au profil de température initial. Nous avons choisi un profil initial constant à 300K afin de ne pas influencer l'inversion.

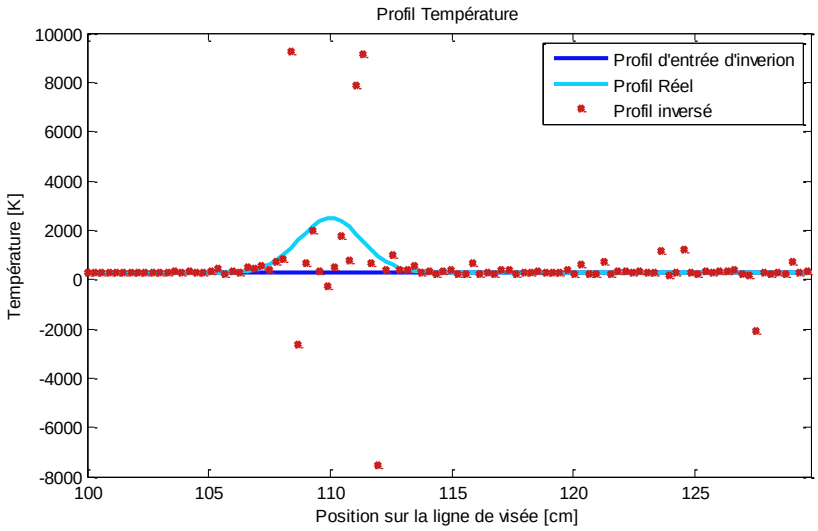


Figure III-11 : profil de température inversé

Une impulsion de 150ps correspond à une résolution spatiale d'environ 25mm. Or, la largeur à mi-hauteur de la flamme simulée est de 30mm. La durée de l'impulsion laser est trop importante pour la résolution spatiale nécessaire à la caractérisation de la température de la flamme et le programme d'inversion diverge.

Pour le second cas, sur le même profil de flamme et avec une impulsion laser d'une durée d'impulsion de 28,5ps de largeur à mi-hauteur, nous obtenons la matrice de diffusion de la Figure III-12 et le profil de température inversé de la Figure III-13.

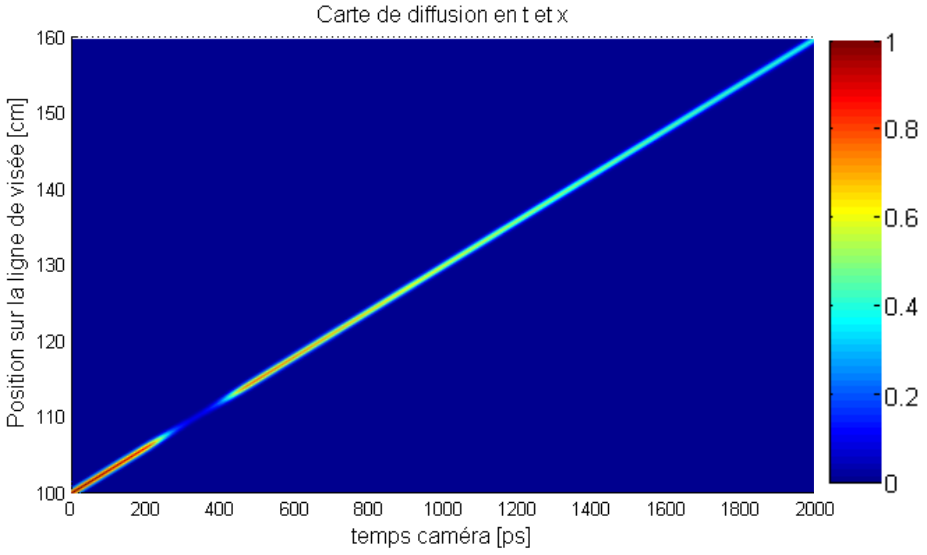


Figure III-12 : Matrice de diffusion simulée pour une flamme de profil de température gaussien de 2500K, de largeur à mi-hauteur de 3cm et une impulsion laser de 28,5ps.

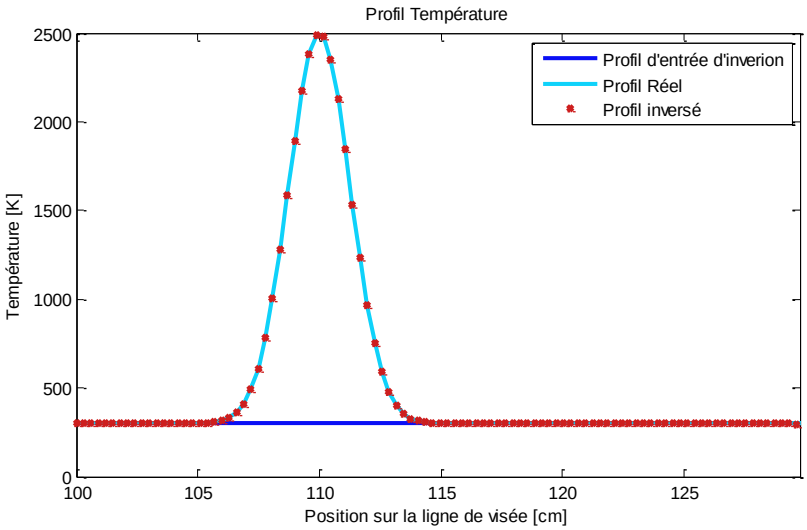


Figure III-13 : profil de température inversé

Avec une impulsion laser de 28,5ps, la résolution spatiale est d'environ 5mm et l'inversion converge vers le profil de température attendu.

Ce programme pourra être utilisé dans des contextes industriels dans lesquels il n'est pas possible de réaliser une mesure de référence sans la flamme.

III.A.4 Appareillages

Notre Lidar est principalement constitué d'un laser picoseconde (III.A.4.2) et d'une caméra Streak (III.A.4.1). La résolution temporelle de la caméra doit être adaptée à la durée d'impulsion du laser.

III.A.4.1 Caméra Streak (Optronis)

Une caméra à balayage de fente permet le traitement temporel des photons incidents avec une résolution jusqu'à 2ps, soit une résolution spatiale de 0,6mm à la vitesse de la lumière ($3.10^8 m.s^{-1}$). Elles sont utilisées dans diverses applications dont les Lidars picoseconde et femtoseconde ainsi que dans le domaine de la spectroscopie résolue en temps [**74**].

Nous présentons ici succinctement, élément par élément, le fonctionnement de la caméra à balayage de fente.

III.A.4.1.a Schéma de principe

La Figure III-14 est un schéma de principe de la caméra Streak permettant de comprendre son fonctionnement élément par élément.

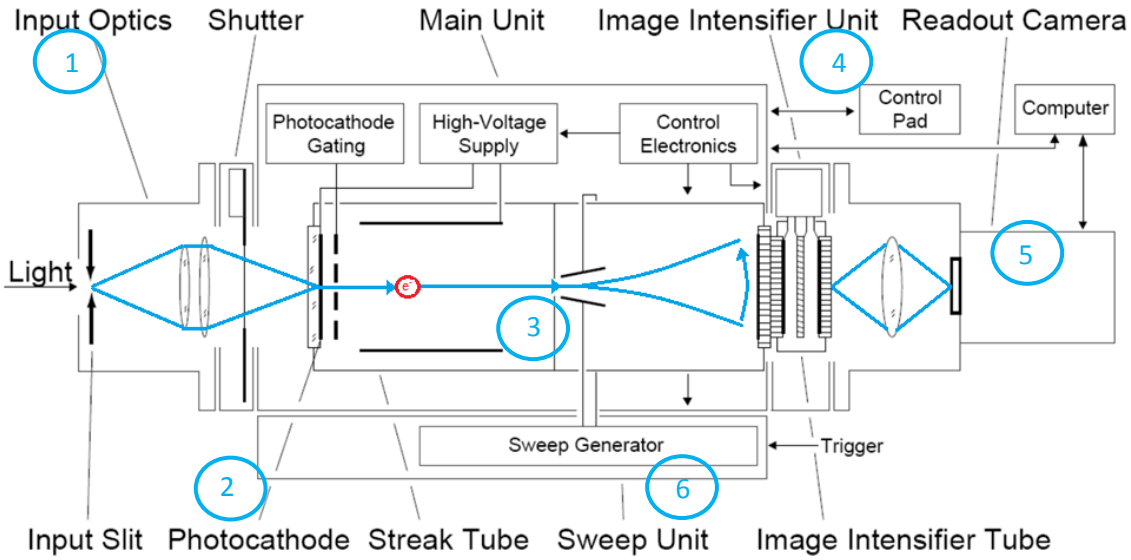


Figure III-14 : Schéma de principe de la caméra STREAK

La Figure III-15 est une photo de la caméra Streak.



Figure III-15 : Photo de la caméra Streak Optronis SC-10

III.A.4.1.b Système optique d'entrée (élément 1 de la Figure III-14)

La lumière entre par la fente d'entrée (« *Input Slit* ») dont la largeur est variable (de 0 à 2mm avec un pas de 10µm) puis traverse l'*Input Optics (1)*. Ce système optique est constitué de deux lentilles dont la distance de séparation est réglable afin d'optimiser au mieux la résolution temporelle.

III.A.4.1.c Photocathode (élément 2 de la Figure III-14)

La lumière est ensuite focalisée sur la *photocathode* qui convertit les photons en photoélectrons.

La Figure III-16 présente la courbe de réponse de la photocathode approvisionnée avec la caméra (modèle S25). Elle traduit le rendement quantique de la photocathode.

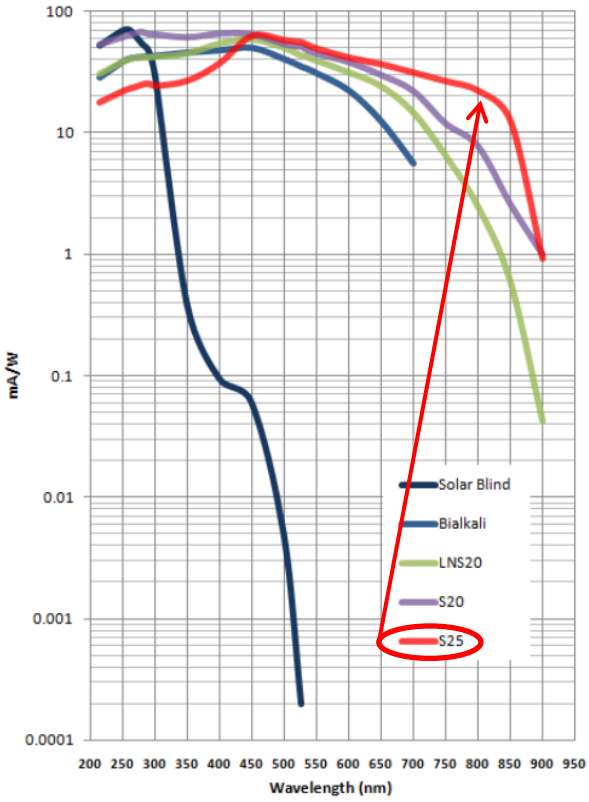


Figure III-16 : Sensibilité spectrale de la photocathode S25

Nous avons choisi la photocathode S25 car elle possède la plus forte sensibilité dans l'infrarouge. Ceci permet de l'utiliser en spectrométrie sur les raies de l'eau ou dans le cadre de la méthode DIAL, bien que cette méthode n'ait pas été utilisée dans le cadre de ce travail de thèse.

III.A.4.1.d Tube STREAK (élément 3 de la Figure III-14)

Le tube STREAK est constitué en entrée d'une alimentation en haute tension (« H*igh-Voltage Supply* ») afin d'accélérer les photoélectrons. Ils traversent ensuite le système de balayage permettant la résolution temporelle (voir Figure III-17 et Figure III-18). La tension entre les deux électrodes de balayage décroit sur un laps de temps situé entre 300 et 2000ps. 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.

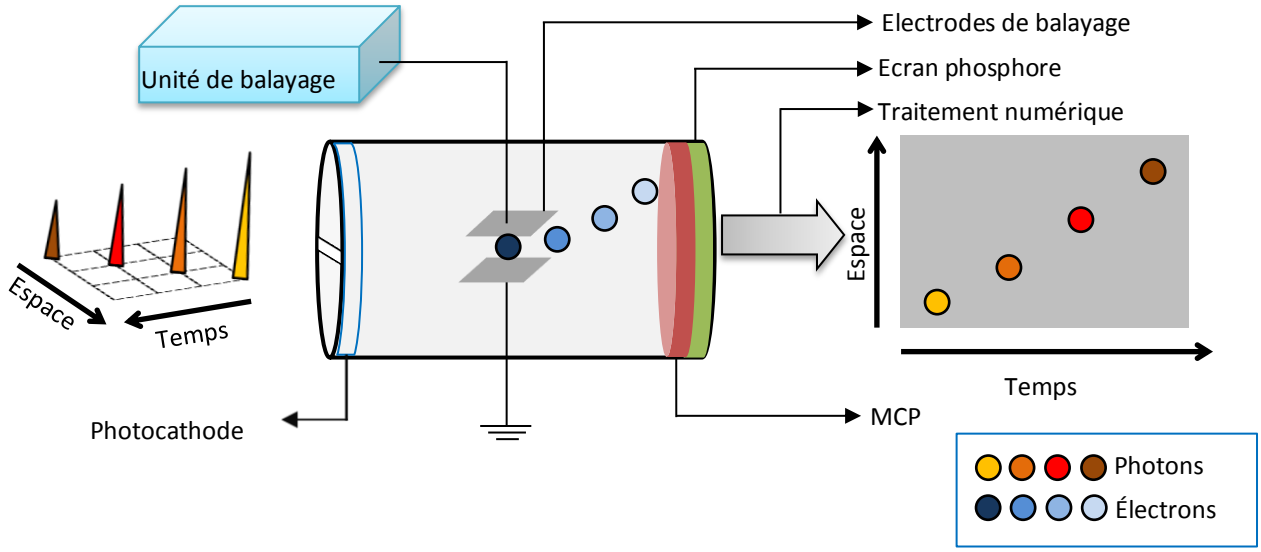


Figure III-17 : Schéma de principe du tube STREAK

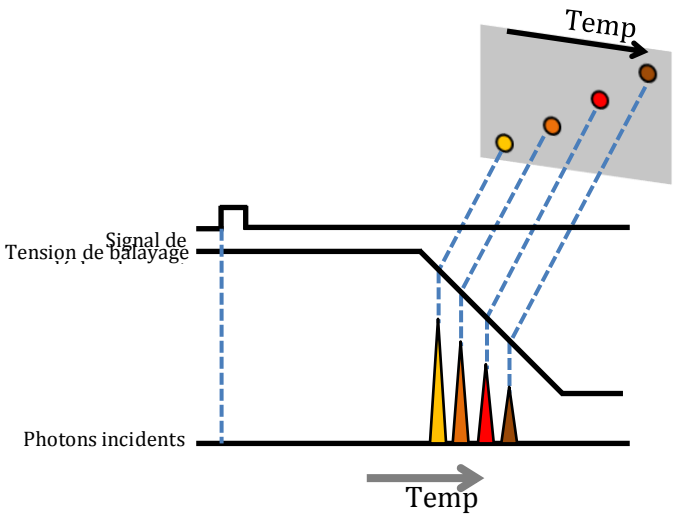


Figure III-18 : Timing du processus de balayage

Performances :

Fenêtres d'exposition : 300ps, 500ps, 1000ps et 2000ps

Résolutions temporelles respectives : 2ps, 3ps, 7ps et 13ps

Bruit : environ 1 photoélectron par balayage de 300ps

III.A.4.1.e Unité d'intensification de l'image (élément 4 de la Figure III-14)

En traversant le MCP, les photoélectrons sont multipliés puis reconvertis en photons via un écran de phosphore. Selon la tension appliquée au MCP (entre 330V et 910V), le nombre de photoélectrons en sortie est multiplié par un facteur allant de 1 à 1000.

Les photons sortant de l'écran de phosphore sont ensuite analysés par une caméra de lecture.

III.A.4.1.f Caméra de lecture (élément 5 de la Figure III-14)

Modèle Optronis (SRU-ED)

Cette caméra permet le traitement numérique du signal lumineux fourni par l'écran de phosphore.

Performances :

Convertisseur analogique / numérique : 16 bits

Nous avons choisi une caméra 16 bits au lieu du modèle classique 12 bits pour avoir une meilleure dynamique.

Résolution : $1400(hor) \times 1052(ver)$ pixels

Temps d'intégration : de 5ms à 100s.

Taux de rafraichissement de l'image : 150Hz

Bruit : environ 2 e^- par image

III.A.4.1.g Unité de balayage (élément 6 de la Figure III-14)

Cet élément de la caméra permet la synchronisation entre les balayages et les impulsions de la source de photons (Laser par exemple) (Voir Figure III-19).

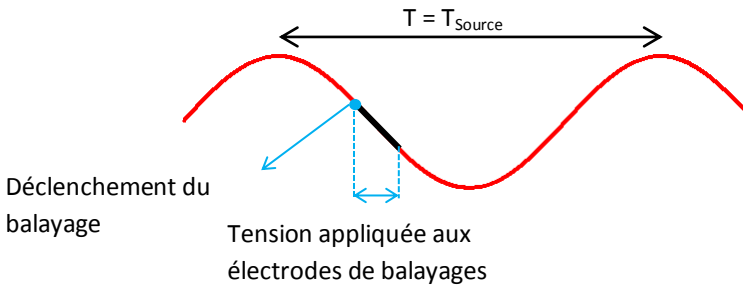


Figure III-19 : Principe du balayage synchronisé

En modifiant la phase de la sinusoïde, on décale la fenêtre temporelle d'observation et pour modifier le temps de balayage, on modifie son amplitude.

Le laboratoire possède trois unités de balayages :

- Une unité de balayage cadencée à 80MHz pour une synchronisation de la caméra avec un laser blanc Coherent de type Super K Versa.
- Une unité de balayage avec des fenêtres temporelles de 300ps à 100ms pour la spectroscopie et l'analyse de phénomènes thermographiques.
- Une unité de balayage avec des fenêtres temporelles de 300ps à 2ns pour la synchronisation avec le laser YAG picoseconde présenté au chapitre III.A.4.2 suivant. C'est celui que nous utilisons pour les expériences en rétrodiffusion.

Les trois paragraphes font une analyse du jitter ainsi que de l'étalement des photons sur le détecteur en utilisant cette troisième unité de balayage.

III.A.4.1.h Fenêtre temporelle de 1000ps (50ps/mm)

Le jitter de la caméra correspond à sa dispersion temporelle. Nous présentons dans ce paragraphe les jitters obtenus expérimentalement pour des fenêtres temporelles de 1000ps en utilisant un grand nombre d'impulsions du laser YAG de 30ps de largeur à mi-hauteur. Le balayage de la caméra Streak est asservi par le laser au travers de l'envoi d'une impulsion électrique, celle qui déclenche la base de temps. Le jitter entre l'impulsion électrique et l'impulsion laser est de 5ps (donnée constructeur), soit l'équivalent spatial de 1mm.

La Figure III-20 correspond à la répartition temporelle des centres de gravité des signaux mesurés issus de 100 impulsions laser par rapport au centre de gravité moyen mesuré. On observe une dispersion importante du centre des gaussiennes allant de -200ps à +150ps par rapport à la moyenne. Ce jitter provenant de la caméra Streak est beaucoup plus important que celui dû au décalage entre l'impulsion électrique de synchronisation du laser et l'émission de l'impulsion laser.

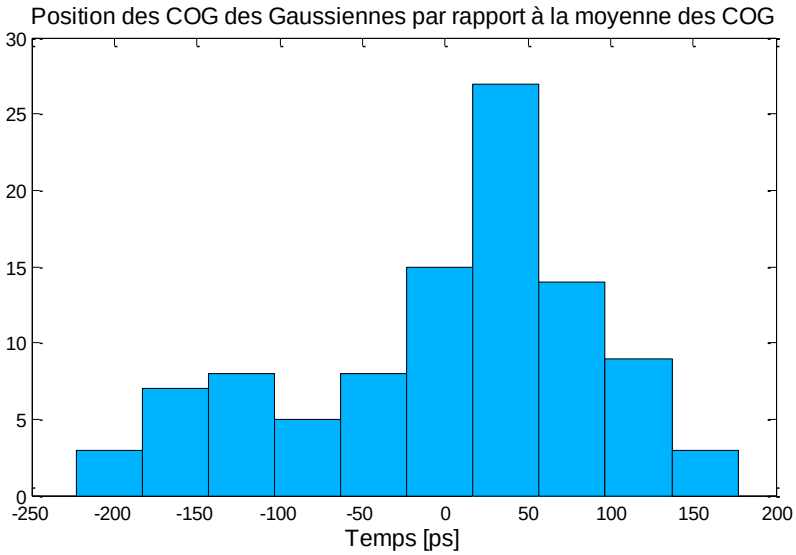


Figure III-20 : Jitter mesuré sur 100 impulsions du laser YAG – Fenêtre temporelle de 1000ps

La Figure III-21 représente les centres de gravité des signaux issus de 100 impulsions en fonction du temps. La mesure a été réalisée en 250s.

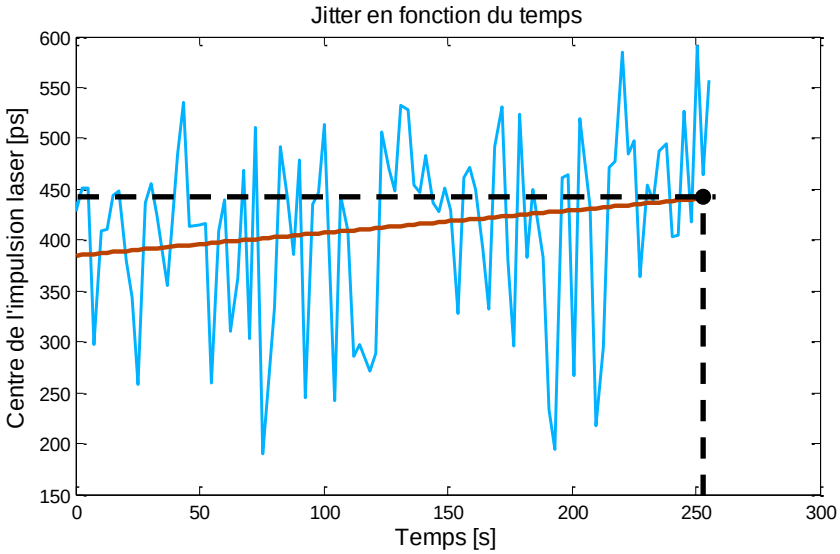


Figure III-21 : Evolution du jitter mesuré sur 100 impulsions du laser YAG – Fenêtre temporelle de 1000ps

On observe une dispersion analogue à celle obtenue à la Figure III-20 mais également un glissement lent de la position du centre de gravité moyen. Ce glissement sera à prendre en compte dans le cas de plusieurs mesures sur une même flamme en recalant les différents profils obtenus.

III.A.4.1.i Fenêtre temporelle de 2000ps (100ps/mm)

Nous effectuons ici les mêmes analyses que celles du paragraphe précédent pour des fenêtres temporelles de 2000ps.

La Figure III-22 montre que le jitter augmente quasi proportionnellement avec la durée de la fenêtre temporelle de mesure puisque les centres de gravités des signaux mesurés vont de -350ps à 200ps soit une longueur d'intervalle de 550ps contre 350ps pour la fenêtre de 1000ps.

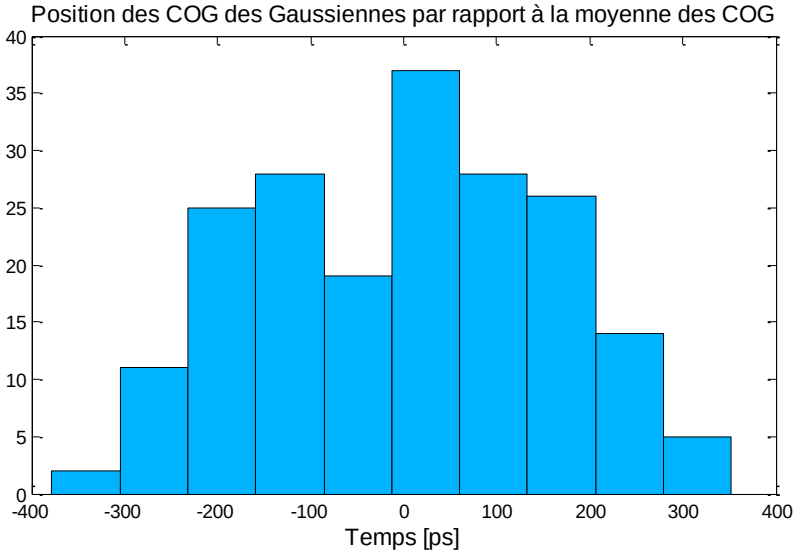


Figure III-22 : Jitter mesuré sur 100 impulsions du laser YAG – Fenêtre temporelle de 2000ps

La Figure III-21 montre un accroissement d'environ 70ps en 250s de la position du centre des signaux mesurés pour des fenêtres temporelles de 1000ps. La Figure III-23 ci-après met en évidence un accroissement d'environ 230ps de la position du centre des signaux mesurés pour des fenêtres temporelles de 2000ps, soit environ trois fois plus.

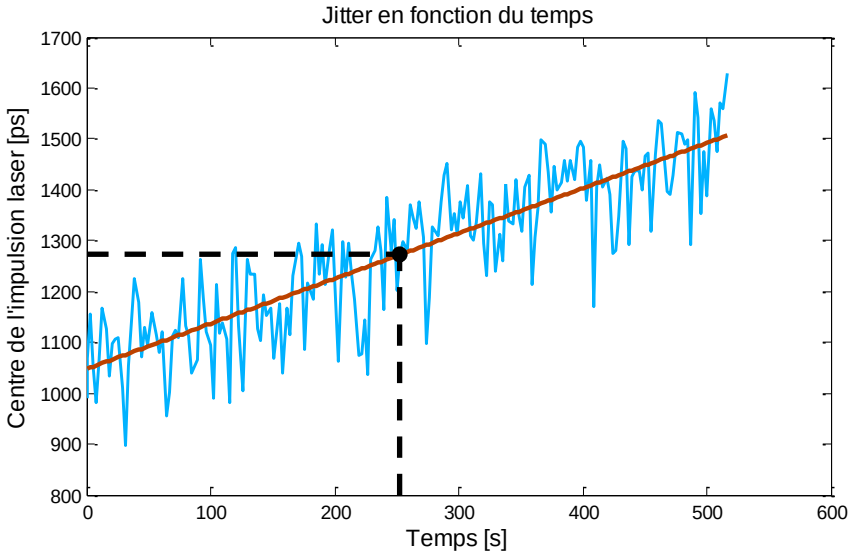


Figure III-23 : Evolution du jitter mesuré sur 100 impulsions du laser YAG – Fenêtre temporelle de 2000ps

Ce qu'il faut retenir de ces deux derniers paragraphes est que pour des mesures longues (plusieurs minutes) ou pour des séquences de plusieurs balayages avec une impulsion émise par balayage, le jitter est à prendre en compte dans le traitement des données avec notamment un recalage temporel de l'ensemble des mesures.

III.A.4.1.j Étalement des photons

Un photon incident n'impactera pas qu'un seul pixel de la matrice de détecteurs. Nous avons cherché à quantifier l'étalement des photons sur la matrice à partir d'une source de lumière continue en fermant au maximum la fente d'entrée. Dans un premier temps nous fermons complètement la fente d'entrée puis l'ouvrons pas à pas. L'intensité du signal mesuré croît au fur et à mesure mais la largeur à mi-hauteur (fwhm) demeure constante (voir Figure III-24). La largeur à mi-hauteur obtenue ainsi est de 6 pixels pour les courbes bleues et la courbe verte. Pour la courbe au-dessus du seuil de saturation, la largeur à mi-hauteur est de 12 pixels.

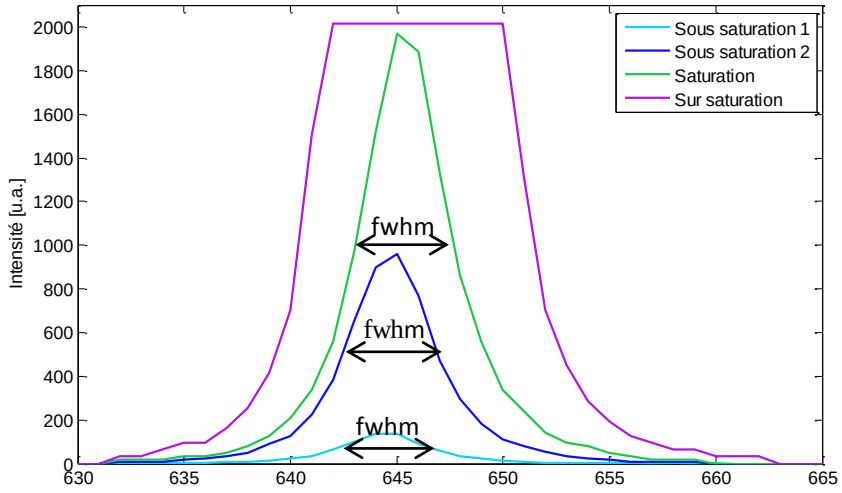


Figure III-24 : Courbes obtenues le long d'une ligne de pixels contenants le maximum d'intensité des images provenant de la caméra streak (voir Figure III-25 et Figure III-26, lignes balcnhes)

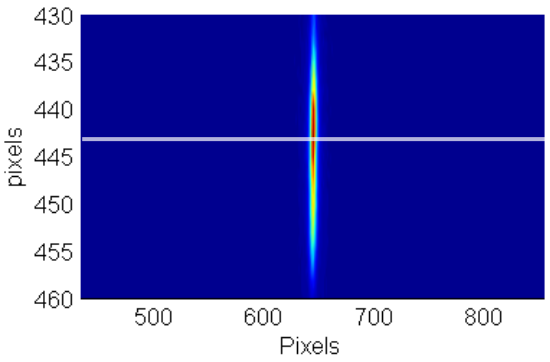


Figure III-25 : Image d'une source continue avec une ouverture minimum de la fente d'entrée

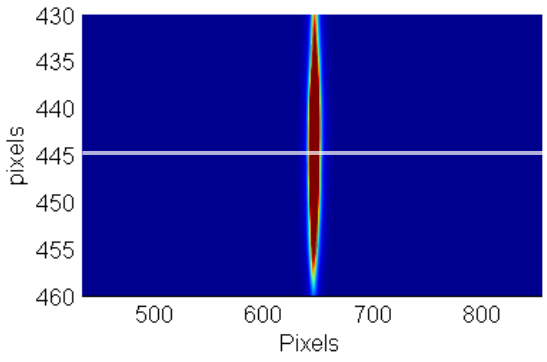


Figure III-26 : Image d'une source continue avec une ouverture fente donnant lieu à une saturation des détecteurs

L'étalement des photons sur 6 pixels est à prendre en compte dans l'interprétation des résultats. En particulier, la résolution temporelle sera :

$$S \times \frac{T_{fen}}{N_{pix}} \qquad \text{Eq. III-18}$$

Avec S le nombre de pixels sur lesquels s'étalent un photon, T_{fen} la durée de la fenêtre temporelle et N_{pix} le nombre de pixels de la matrice de détecteurs le long de l'axe temporel (1400 pour notre modèle de caméra).

En appliquant ce calcul à une fenêtre temporelle de 2000ps, nous obtenons une résolution temporelle équivalente d'environ 8,6ps (soit environ 0,13mm de résolution spatiale), ce qui est bien inférieur à la durée de l'impulsion laser, égale à 29,7ps pour le laser que nous possédons (voir paragraphe III.A.4.2 ci-après).

III.A.4.2 Lasers YAG / OPO (Ekspla)

Pour le développement de notre méthode couplée, nous nous sommes dotés d'un OPO (Oscillateur Paramétrique Optique, modèle Ekspla PG401) pompé par un laser YAG centré sur 355nm. L'objectif était de pouvoir l'utiliser en mode DIAL. Cet OPO est pompé par un laser YAG picoseconde d'impulsions de 30ps. Ce laser a été retenu car il était le seul à être doté d'un OPO délivrant des impulsions de 30ps a des énergies suffisamment importantes pour pouvoir observer avec la caméra Streak les photons rétrodiffusés.

D'après la relation Eq. II-49, le nombre de photons rétrodiffusés $n_{photons}^{rétrodiffusés}$ est donné par :

$$n_{photons}^{rétrodiffusés} = \Omega \times \beta \times l \times n_{photons}^{incidents} \qquad \text{Eq. III-19}$$

Avec,

$$\beta = \sigma \times N \qquad \text{Eq. III-20}$$

Où Ω est l'angle solide [sr], β est le coefficient de rétrodiffusion [m^{-1}], σ est la section efficace de rétrodiffusion [m^2], N est la densité moléculaire du milieu étudié [m^{-3}] et l est la largeur de l'impulsion laser [m].

$$n_{photons}^{incidents} = \frac{E_{pulse} \times \lambda}{hc} \qquad \text{Eq. III-21}$$

Avec E_{pulse} l'énergie d'une impulsion laser [J], λ la longueur d'onde des photons incidents [m], h la constante de Planck [$m^2.Kg.s^{-1}$] et c la célérité de la lumière dans le vide [$m.s^{-1}$].

En prenant :

Paramètre	Valeur prise	Commentaire
σ	$2{,}27.10^{-30}$	Section efficace moyenne de l'air
N	$2{,}69.10^{25}$	Densité en molécules d'air dans les Conditions normales de température et pression.
$\boldsymbol{\beta}$	$\mathbf{6,11.10^{-5}}$	**Coefficient de rétrodiffusion**
l	$9{,}00.10^{-3}$	Largeur à mi-hauteur de l'impulsion laser
E_{pulse}	$1{,}00.10^{-3}$	Energie d'une impulsion laser délivrée par l'OPO à 532nm
λ	532.10^{-9}	Longueur d'onde de l'impulsion
h	$6{,}63.10^{-34}$	Constante de Planck
c	$2{,}99.10^{8}$	Célérité de la lumière dans le vide
$\boldsymbol{n_{photons}^{incidents}}$	$\mathbf{2,68.10^{15}}$	**Nombre de photons incidents**
Ω	$1{,}26.10^{-3}$	Angle solide calculé pour une lentille de 2cm de rayon située à 1m de la zone de diffusion.
$n_{photons}^{rétrodiffusés}$	$1{,}85.10^{6}$	Nombre de photons rétrodiffusés
Efficacité quantique	9,27%	Efficacité quantique de la photocathode de la caméra Streak
Nombre de photons détectés par la caméra avant amplification donnant lieu à un photoélectron	$\mathbf{1,85.10^{6}}$	

Le nombre de photons détectés par la caméra Streak avant amplification est $1{,}85.10^{6}$. Ce nombre de photon est satisfaisant puisque la sensibilité du détecteur est supérieure à 0,030 photon par pixel lorsque le gain est maximum (X 1000). Le laser de pompe seul délivre des impulsions de 10mJ à 532nm, soit 10 fois plus qu'avec l'OPO. Nous présentons succinctement l'OPO dans la suite de cette section. Cependant, compte tenu du fait que nous ne pouvions pas l'utiliser en mode DIAL à cause de la faible absorption de l'eau, les différentes mesures réalisées l'ont été avec seulement le laser YAG de pompe.

Le laser de pompe choisi délivre des impulsions d'environ 26mJ à 532nm et d'environ 17mJ à 355mJ, conduisant à des puissances par impulsion d'environ 870MW à 532nm et d'environ 570MW à 355nm.

III.A.4.2.a Principe de l'oscillateur paramétrique optique (OPO)

L'OPO permet la sélection de la longueur d'onde de l'impulsion entre 420nm et 2300nm. L'énergie maximale par impulsion en sortie d'OPO est de 1,2mJ. La sélection de la longueur d'onde permet aussi d'utiliser le laser dans le cadre d'un DIAL (Differential Absorption Lidar), méthode présentée au chapitre II.C.3. Lorsqu'on parle d'OPO on parle de lasers accordables. Le laser de puissance est appelé laser de pompe dont les photons de pulsation ω_p donnent lieu dans un cristal à deux photons de pulsation ω_c et ω_s vérifiant la relation de conservation de l'énergie suivante :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_c + \hbar\omega_s$$

Le caractère accordable des Lasers OPO provient de l'interférence paramétrable entre les trois différentes ondes de la cavité optique (voir Figure III-27). Les interférences peuvent être adaptées afin de sélectionner la longueur d'onde via la position du cristal sur son axe de rotation.

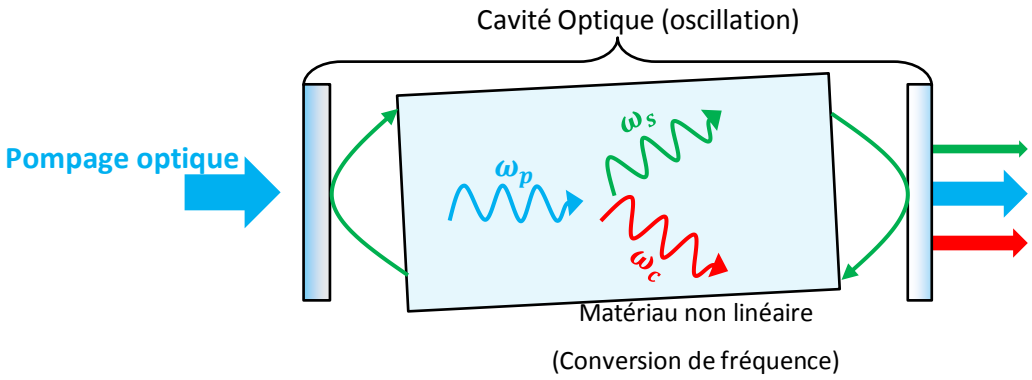


Figure III-27 : Schéma de principe d'un laser OPO

III.A.4.2.b Caractéristiques du PG 401

La Figure III-28 représente l'énergie d'une impulsion délivrée par le laser OPO en fonction de la longueur d'onde sélectionnée. Le matériau non linéaire est du Triborate de Lithium (LiB_3O_5 ou LBO).

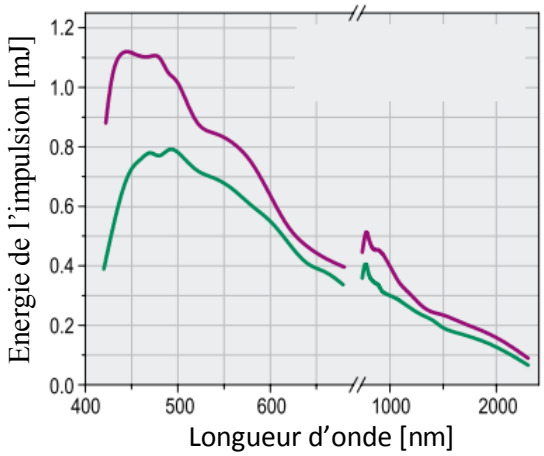


Figure III-28 : Energie par impulsion en fonction de la longueur d'onde du laser.

Le choix des longueurs d'onde accessibles (Figure III-28) se justifie par le besoin d'inclure les raies du sodium à 588.9nm et 589.5nm. Le choix du PG401 est issu du compromis entre énergie par impulsion, résolution spectrale, durée de l'impulsion et coût.

Laser de pompe (Ekspla)



Données constructeur :

Gamme spectrale : 420-680nm 740-2300nm

Energie par impulsion : 1mJ

Durée de l'impulsion : 28,5ps

Fréquence des impulsions : 10Hz

Largeur spectrale : <6cm^{-1}

Laser de pompe : 15mJ à 355nm

Tableau III-1 : Laser OPO Ekspla modèle PG401 avec laser YAG de pompe modèle PL2250

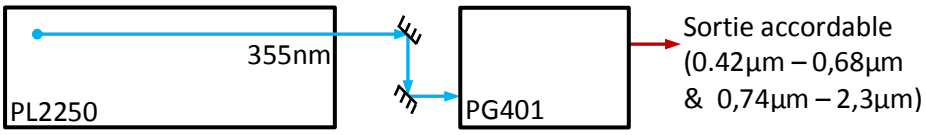


Figure III-29 : Schéma de principe du système laser de pompe / OPO.

III.A.4.2.c Détermination expérimentale de la durée d'impulsion

Nous avons mesuré expérimentalement la distribution des durées d'impulsion laser afin de nous assurer qu'elles correspondaient aux données du constructeur. Pour cela, nous avons utilisé la caméra Streak avec la résolution temporelle la plus fine, soit environ 2ps et nous avons fermé la fente au maximum afin d'atteindre la meilleure résolution temporelle possible. Nous obtenons la distribution des durées d'impulsions comparées à la moyenne de la Figure III-30.

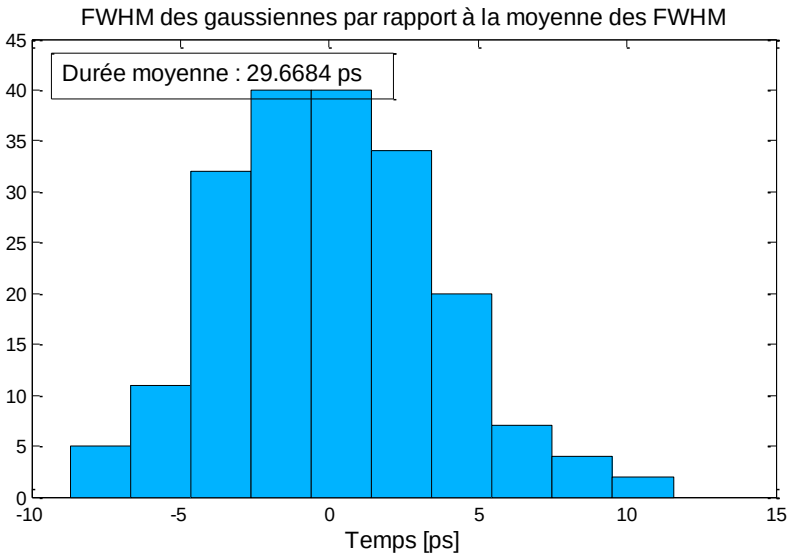


Figure III-30 : répartition des durées d'impulsions du laser YAG

Le constructeur annonce une durée d'impulsion de 28,5ps et nous obtenons une durée moyenne de 29,7ps. Près de 60% des mesures donnent une durée d'impulsion comprise entre 26ps et 31ps et environ 85% correspondent à des durées comprises entre 25ps et 35ps.

III.B Estimation de température et concentration par inversion des données spectrométriques

L'émission de rayonnement d'une colonne de gaz peut être modélisée par l'équation du transfert radiatif Eq. II-65 et fait l'objet du paragraphe II.D.3. L'émission de rayonnement en tant que méthode de détermination de la température d'une colonne d'un gaz implique la résolution d'un problème inverse. Ce problème inverse consiste à estimer les profils de température et de concentration d'une ou plusieurs espèces le long de la colonne de gaz à partir de la mesure du spectre d'émission de rayonnement. Pour cela, un modèle direct permettant de déterminer le spectre d'émission de rayonnement en fonction des profils de température et concentration est nécessaire. Ce modèle direct utilise la base de données HITRAN-08 pour connaitre les coefficients d'absorptions monochromatiques des espèces. D'autres bases de données existent telles que HITEMP pour des températures plus élevées (jusqu'à 1500K). Le défaut majeur de ces bases de données est qu'elles sont extrapolées à partir de la température ambiante et de fonctions de partitions. La conséquence est que plus la température du gaz est élevée et plus l'incertitude sur les raies d'absorption croit. Pour plus d'informations au sujet des bases de données, nous conseillons au lecteur de se référer à la thèse de Robin CONSEIL [**7**] dans laquelle une comparaison entre les différentes bases de données et une présentation sur les fonctions de partition réalisées. Dans la suite, HITRAN-08 sera utilisée. L'algorithme d'inversion explore l'espace des profils de température et concentration acceptables afin d'obtenir un spectre issu du modèle direct le plus proche possible du spectre mesuré. La résolution du problème inverse fait l'objet des paragraphes ci-après.

Avant tout traitement numérique, le spectre d'émission mesuré doit être étalonné. Le corps noir est communément utilisé comme appareil d'étalonnage puisque son rayonnement est à 0,1% décrit par la loi de Planck (voir paragraphe I.A).

III.B.1 Étalonnage

Soit $S_F(\sigma)$ le spectre brut mesuré sur la flamme et $S_{CN}^T(\sigma)$ le spectre brut mesuré sur le corps noir à la température T. Ces spectres bruts dépendent du chemin optique et de l'appareillage au travers de la fonction d'appareillage $A(\sigma)$. Les spectres en luminances sont calculés à partir de la relation suivante :

$$L(\sigma) = A(\sigma)S(\sigma) \qquad \textbf{Eq. III-22}$$

Avec $S(\sigma)$ un spectre brut mesuré quelconque et $L(\sigma)$ $[W.m^{-2}sr^{-1}cm]$ la luminance monochromatique associée.

La mesure brute sur le corps noir et l'équation Eq. III-22 conduisent à la relation suivante :

$$L_{CN}^T(\sigma) = A(\sigma)S_{CN}^T(\sigma) \qquad \textbf{Eq. III-23}$$

Or, la loi de rayonnement d'un corps suit la loi de Planck définie par la relation de l'équation Eq. II-60 du paragraphe II.D.2.3. La fonction d'appareillage est donc définie par la relation :

$$A(\sigma) = \frac{L_{CN}^T(\sigma)}{S_{CN}^T(\sigma)} \qquad \textbf{Eq. III-24}$$

On en déduit que le spectre en luminance mesurée sur la flamme se calcule via la relation :

$$L_F(\sigma) = \frac{L_{CN}^T(\sigma)}{S_{CN}^T(\sigma)} S_F(\sigma) \qquad \textbf{Eq. III-25}$$

Cette relation est valable quelle que soit la température T du corps noir. Toutefois, il est préférable de prendre des températures élevées afin d'avoir le meilleur rapport signal sur bruit.

III.B.2 Résolution du problème inverse

Résoudre le problème inverse consiste à trouver le profil de température $\boldsymbol{T}$ et le profil de concentration de l'espèce considérée $\boldsymbol{C}$ tels que pour chacun des nombres d'onde σ du spectre mesuré, l'équation Eq. III-26 soit satisfaite.

$$L_\sigma^{calc}(\boldsymbol{T}, \boldsymbol{C}) = L_\sigma^{mes} \qquad \textbf{Eq. III-26}$$

Où L_σ^{calc} est la luminance calculée par le modèle direct et L_σ^{mes} la luminance mesurée. La résolution de l'équation Eq. III-26 est un problème complexe car la luminance est une application non-linéaire face à la température et à la concentration. De plus, le modèle choisi est imparfait et les mesures souffrent d'incertitudes. Il n'existe donc pas de solution unique à cette équation et il est nécessaire d'introduire une formulation plus faible, celle des moindres carrés. Si on note $p = (T, C) \in \mathbb{R}^{2N}$ le vecteur des profils de température et concentration discrétisés selon l'espace en N éléments, alors la résolution du problème inverse consiste en la minimisation de la fonction coût $J(\boldsymbol{p})$, égale à l'écart quadratique entre les luminances spectrales mesurées et calculées :

$$J(\boldsymbol{p}) = \frac{1}{2} \left\| L_\sigma^{calc}(\boldsymbol{p}) - L_\sigma^{mes} \right\|^2 \qquad \textbf{Eq. III-27}$$

La norme L_p notée $\|x\|_p$ est définie selon la relation suivante :

$$\|x\|_p = \left[\sum_i^n |x_i|^p \right]^{1/p} \qquad \textbf{Eq. III-28}$$

Si x est un vecteur $(x_1, \dots, x_n)$. La norme euclidienne correspondant à $p = 2$ a été choisie car d'une part elle est dérivable en tout point, contrairement aux normes correspondant à $p = 1$ et $p \to \infty$ et d'autre part elle est associée au produit scalaire euclidien. Il existe d'autres familles de normes telles que les normes par variations totales V_T (ou variations bornées dans le cadre de la minimisation). La fonction $V_T(x)$ mesure l'ampleur des oscillations et permet de les minimiser. Elle est définie par $V_T(x) = \sum_i^{n-1} |x_{i+1} - x_i|$.

Le problème inverse posé par l'équation Eq. III-27 se ramène à un problème d'optimisation que l'on résout à l'aide du processus numérique itératif décrit par le schéma de la Figure III-31.

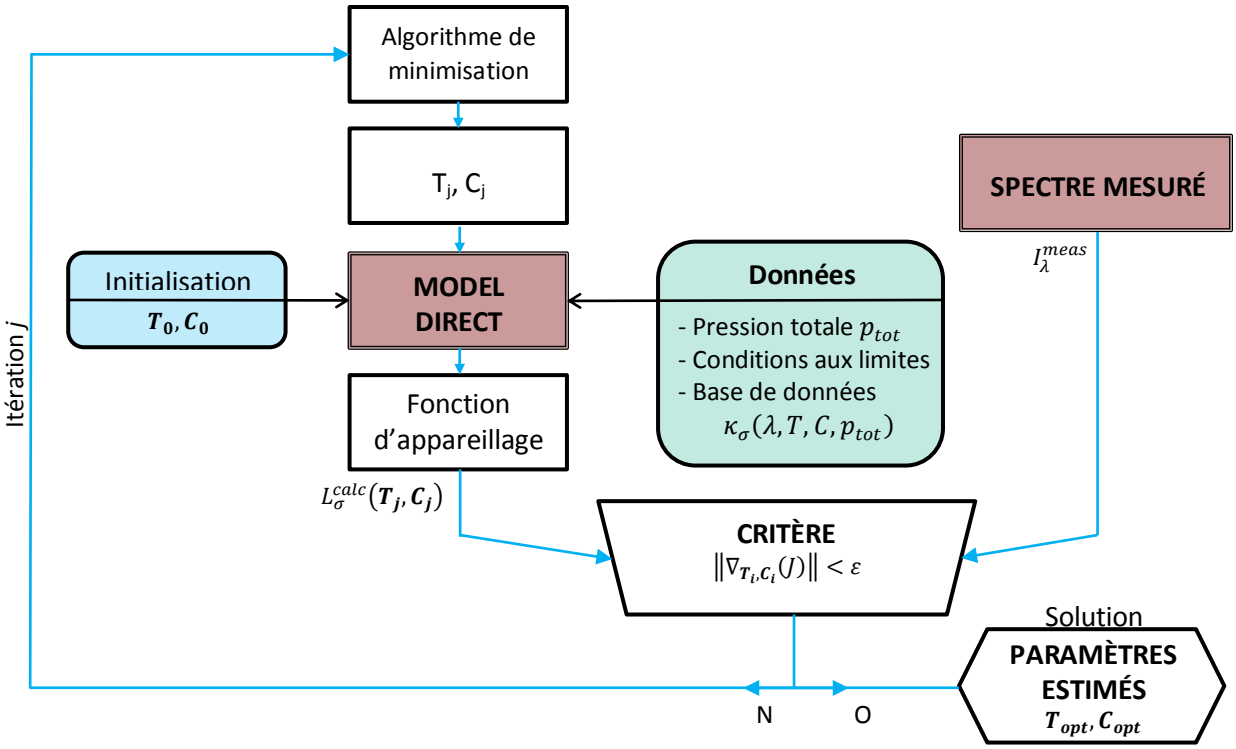


Figure III-31 : Schéma du processus itératif numérique de minimisation de la fonction coût

La première étape fait appel à des paramètres initiaux T_0 et C_0 fixés par l'utilisateur pour une pression totale connue. Le spectre calculé est convolué par la fonction d'appareillage afin de le comparer au spectre mesuré pour le calcul de la fonction coût pour chacun des nombres d'onde. $J(\boldsymbol{p})$ est minimisée via un algorithme d'optimisation qui à chaque itération i va construire un nouveau couple (T_i, C_i). Lorsque le critère de convergence est satisfait alors le couple de paramètres correspondant (T_{opt}, C_{opt}) est considéré comme la solution de l'équation Eq. III-16. Le critère de convergence introduit dans le schéma de la Figure III-31 est satisfait lorsque $\|\nabla_{T_i,C_i}(J)\| < \varepsilon$, c'est-à-dire lorsque le gradient de la fonction coût est inférieur à une valeur ε définie. Les autres critères sont des critères d'arrêt et permettent de limiter le temps de calcul en cas de convergence trop lente ou de problème :

- (T_i, C_i) trop proche de (T_{i-1}, C_{i-1}).
- $i \geq i_{max}$

Deux types d'algorithmes d'optimisation coexistent : les algorithmes globaux et les algorithmes locaux. Les premiers explorent l'ensemble de l'espace des paramètres et trouvent le minimum global. Ces algorithmes sont simples mais très coûteux en calculs car explorent l'espace des paramètres sans suivre de règles sur le paramètre testé. Les seconds utilisent le gradient de la fonction coût afin de trouver un minimum local en un nombre d'itération plus restreint. La contrepartie est qu'il est nécessaire de calculer ce gradient, avec précision et le plus rapidement possible. La fonction coût ne doit pas posséder trop de minima locaux.

Dans un souci de réduction du temps de calcul et de précision, nous avons retenu la méthode locale afin d'optimiser la fonction coût $J(\boldsymbol{p})$.

Le calcul du gradient pourrait se faire par la méthode des différences finies qui consiste en le calcul de la limite du taux de variation :

$$\frac{\partial J}{\partial m_i}(m) = \lim_{h \to 0} \frac{J(m + he_i) - j(m)}{h} \qquad \text{Eq. III-29}$$

Avec e_i un vecteur de la base canonique de $\mathbb{R}^{2N}$.

L'inconvénient de cette technique est que d'une part elle souffre d'imprécision et que d'autre part elle est très coûteuse en temps de calcul. La précision est pour nous essentielle et nous utiliserons la technique de l'état adjoint pour pallier à cette difficulté.

III.B.2.1 Programme de minimisation

Le programme de minimisation met en œuvre le schéma itératif de la Figure III-31. Ce programme est une fonction qui minimise la fonction coût en s'appuyant sur une méthode mathématique adaptée au problème posé (par exemple la méthode du « recuit simulé » dans le cas de problèmes avec un grand nombre d'extrema locaux ou encore les méthodes de type « gradient » dans le cas d'une fonction coût J fortement convexe et ∇J Lipschitzienne[2],…). Dans ce travail de thèse, deux fonctions Matlab ont été retenues : **Fmincon** et **Lsqcurvefit**. La première fonction est appliquée pour les minimisations avec contraintes (linéaires ou non) et utilise par défaut la méthode de minimisation des points intérieurs. L'utilisateur peut fournir au programme le gradient de la fonction coût. La fonction Fmincon prend en entrée la fonction coût. La minimisation par la fonction Lsqcurvefit est utile dans le cas des problèmes de grandes dimensions (typiquement 10^6 paramètres) et fonctionne avec un algorithme de minimisation. La fonction Lsqcurvefit utilise par défaut la méthode de minimisation des régions de confiances. La fonction Lsqcurvefit prend en entrée le modèle direct (l'équation du transfert radiatif dans notre cas) et gère elle-même le calcul de la fonction coût par les moindres carrés. Nous faisons préalablement le calcul de la matrice Jacobienne de la fonction coût afin d'éviter le recours aux différences finies. La matrice Jacobienne est définie comme suit :

Soit f une fonction définie sur un ouvert de $\mathbb{R}^n$ à valeurs dans $\mathbb{R}^m$ telle que

$$f : \begin{pmatrix} x_1 \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix} \longmapsto \begin{pmatrix} f_1(x_1, \dots, x_n) \\ \vdots \\ f_m(x_1, \dots, x_n) \end{pmatrix}$$

Alors la matrice Jacobienne J_f de la fonction f est définie par :

$$J_f = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial x_1} & \cdots & \frac{\partial f_1}{\partial x_n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial f_m}{\partial x_1} & \cdots & \frac{\partial f_m}{\partial x_n} \end{pmatrix}$$

Une vérification de la dérivée est effectuée par la méthode des différences finies en quelques points afin de nous assurer de la justesse du gradient analytique fourni en entrée de programme.

III.B.2.2 Dérivation, état adjoint

Avant d'aborder l'aspect mathématique, il convient de se familiariser avec les notations et opérateurs choisis. Ils présentent l'avantage de simplifier les expressions. Les notations et opérateurs sont résumés dans le tableau ci-après.

[2] Soit $E \subset \mathbb{R}$, $f : E \longmapsto \mathbb{R}$ une application et k un réel positif. On dit que f est k-Lipschitzienne si :
$$\forall (x, y) \in E^2, |f(x) - f(y)| \leq k|x - y|$$

Notation, opérateur	Description	Complément
J	Fonction coût	Fonction que l'on cherche à minimiser
$\|\|x\|\|$	Norme euclidienne	Ecart quadratique de l'on cherche à minimiser
d	Données. Spectre d'émission issu de la mesure dans le cadre de cette thèse.	-
c	Spectre calculé par le modèle direct.	-
p	Paramètres. Température et concentration spatiales.	La température et la concentration sont chacune décomposées en *N* points.
F	Fonction du modèle direct (F pour forward). Equation du transfert radiatif dans cette thèse.	Voir Eq. II-65
P	Fonction de paramétrisation	Cette fonction permet de restreindre la famille des profils autorisés. Le choix de cette fonction est essentiel car il s'appuie sur la physique de ce que l'on cherche à mesurer et conditionne l'efficacité de la méthode. Par exemple une gaussienne.
m	Paramètre restreint d'optimisation	Par exemples les paramètres décrivant une gaussienne (largeur à mi-hauteur, amplitude, valeur à l'infini,
$\mathcal{M}_{ad}$	Ensemble des paramètres restreints d'optimisation admissibles	-
$\langle x,y \rangle$	Produit scalaire euclidien entre les vecteurs x et y	-
M^T	Matrice transposée de la matrice M	-

Tableau III-2 : Notations et opérateurs pour l'inversion

Reprenons la fonction coût Eq. III-27 qui désormais s'écrit :

$$J(p) = \frac{1}{2}\|d - c\|^2 \qquad \textbf{Eq. III-30}$$

c correspond à la mesure simulée issue du modèle direct et s'écrit :

$$c = F(p) \qquad \textbf{Eq. III-31}$$

p est le vecteur de dimension $2N$ représentant les profils de la température et de la concentration selon l'espace. Il est nécessaire de restreindre les familles de courbes autorisées car comme nous l'avons vu au début du chapitre III.B.2, trouver les températures et concentration en chacun des points de l'espace est inenvisageable compte tenu des erreurs de mesures, de l'imperfection du modèle et du fait que le spectre mesuré est intégré et perd une grande partie de l'information spatiale. Nous restreignons les familles de courbes en choisissant une paramétrisation particulière qui doit être adaptée aux phénomènes physiques étudiés p s'écrit alors :

$$p = P(m) \qquad \textbf{Eq. III-32}$$

Avec P la fonction de paramétrisation et m les paramètres restreints servant à décrire la famille de courbes choisie. Si P est l'identité, la paramétrisation fine spatiale (en fonction de chaque élément d'espace) est conservée.

J étant l'écart entre les spectres mesurés et issus du modèle, nous cherchons le paramètre d'optimisation m qui minimise cet écart. Nous recherchons ce paramètre dans l'ensemble des paramètres admissibles $\mathcal{M}_{ad}$, P et $\mathcal{M}_{ad}$ doivent être choisis en fonction de la physique sous-jacente.

$$\begin{matrix} \min J(m) \\ m \in \mathcal{M}_{ad} \end{matrix} \qquad \textbf{Eq. III-33}$$

Finalement, la fonction coût est associée à la paramétrisation selon la relation de composition de fonctions suivante :

$$m \overset{P}{\rightarrow} p \overset{F}{\rightarrow} c \overset{\|.\|}{\rightarrow} j \qquad \textbf{Eq. III-34}$$

Un algorithme local d'optimisation a été choisi. Cet algorithme requiert la dérivée de la fonction coût.

III.B.2.3 Dérivée de la fonction coût

La fonction coût définie par Eq. III-30 est différentiable. Sa différentielle par rapport à c s'écrit au travers d'un produit scalaire selon la relation suivante :

$$\delta J = \langle d - c, -\delta c \rangle \qquad \textbf{Eq. III-35}$$

La relation entre $F'(P_0)$ et δp est linéaire et δc s'écrit :

$$\delta c = F'(P_0)\delta p \qquad \textbf{Eq. III-36}$$

La relation entre $P'(m_0)$ et δm est linéaire et δp s'écrit :

$$\delta p = P'(m_0)\delta m \qquad \textbf{Eq. III-37}$$

Par substitution et à partir des équations Eq. III-36 et Eq. III-37, la différentielle de la fonction coût devient :

$$\delta J = \langle d - c, -F'(p_0)P'(m_0)\delta m \rangle \qquad \textbf{Eq. III-38}$$

Or, quels que soient une matrice A de dimension (m,n) à valeurs réelles, un vecteur u de $\mathbb{R}^m$ et un vecteur v de $\mathbb{R}^n$, le produit scalaire présente la propriété suivante :

$$\langle u, Av \rangle = \langle A^T u, v \rangle$$

La relation de l'équation Eq. III-38 peut donc s'écrire :

$$\delta J = \langle P'(m_0)^T F'(p_0)^T (c - d), \delta m \rangle \qquad \textbf{Eq. III-39}$$

Le gradient de J par rapport au paramètre restreint m est le terme de gauche dans le produit scalaire. C'est un vecteur de la même dimension que m, ou δm.

Nous calculons $P'(m_0)$ de façon analytique et nous calculons $F'(p_0)$ par l'état adjoint. L'état adjoint ne permet de calculer que des gradients donc des lignes de la Jacobienne $F'(p_0)$. Chaque ligne est associée à une valeur de spectre. Nous ne développons pas dans cette thèse le calcul de la matrice Jacobienne par la méthode de l'état adjoint. Nous conseillons le lecteur souhaitant plus d'informations concernant cette méthode de se référer à l'article de François Clément et Al. sur l'analyse de sensibilité et l'estimation de paramètres de transport pour une équation de diffusion avec une approche par état adjoint [**75**], à la thèse de Robin Conseil [**7**] sur la spectrométrie infrarouge de gaz de combustion ainsi qu'à l'article de Michel Kern sur les problèmes inverses [**76**] et enfin à la Figure I-20 quant au nombre de paramètres déterminables en fonction du bruit de la mesure.

III.B.2.4 Paramétrisations

Le choix de la paramétrisation est névralgique puisque qu'il s'agit que le code soit compatible avec des phénomènes physiques réels. C'est de ce choix que découle l'efficience et la cohérence physique de l'inversion. Il s'agit de définir la fonction P et les paramètres m (voir équations Eq. III-32 et Eq. III-34) définissant les profils de concentration et température tels qu'ils correspondent à des profils physiques réels et qu'ils autorisent une inversion rapide avec une incertitude minimale. L'exemple type de paramétrisation est la gaussienne. Dans ce cas, la fonction P est la fonction gaussienne et les paramètres m sont les paramètres qui permettent de la définir (Largeur à mi-hauteur, valeur maximum, valeur à l'infini et position du centre). Cette paramétrisation a fait l'objet de nombreuses applications dans le cadre de flammes ou jets de gaz mis en œuvres dans des configurations et écoulements de formes simples tels que les gaz d'échappement sortant d'une conduite d'échappement d'un moteur de voiture ou d'une flamme de bec bunsen. Le lecteur pourra notamment se référer aux thèses de Robin Conseil [**7**] et Johanna Vally [**6**] pour de plus amples informations à ce sujet.

Pour cette thèse dont l'objectif est de déterminer des profils de températures et concentrations complexes, comportant au minimum deux maxima, une nouvelle paramétrisation s'impose. Nous proposons dans un premier paragraphe une paramétrisation en polynômes de Hermite (paragraphe III.B.2.4.a), polynôme constitué de polynômes de degré trois avec raccords continûment dérivables et dans un second paragraphe une paramétrisation fondée sur une courbe de référence (paragraphe III.B.2.4.b).

III.B.2.4.a Paramétrisation en polynômes de Hermite

Cette paramétrisation est une étape intermédiaire à la paramétrisation avec le profil de référence Lidar présenté au paragraphe suivant. L'objectif est de considérer le profil de température Lidar comme étant le bon profil de température et on cherche à obtenir le profil de concentration avec les polynômes de Hermite. L'autre utilisation envisagée était d'utiliser le profil Lidar pour fixer les points de contrôles nécessaires à la paramétrisation en polynômes de Hermite. La première méthode a été testée dans de nombreux cas de simulations mais n'a pas été utilisée davantage au profit de la paramétrisation avec le profil de référence. En effet, dans les deux cas précédents, le profil Lidar n'était pas utilisé en prenant en compte toute l'information qu'il fournissait. Dans le premier cas il était considéré comme correct alors que selon la flamme étudiée, une erreur de plus de 20% peut être observée. Dans le second cas, seuls les extrema du profil Lidar étaient pris en compte. La forme complète n'était pas prise en compte. Toutefois, nous présentons brièvement cette paramétrisation car elle a été développée et peut s'avérer utile dans un certain nombre d'applications. Par exemple dans le cas d'une utilisation sans profil Lidar mais avec la connaissance de la position de plusieurs pics de températures (cas de bruleurs multiples par exemple).

Un polynôme de Hermite à *n* points de contrôle se définit par le raccord de *n-1* polynômes de degrés 3 C^1 aux raccords (dérivables). Que ce soit pour la température ou la concentration, chaque point de contrôle est défini par trois paramètres : une position, une valeur de concentration ou température et une dérivée. Il y a au maximum 3(*n*-2) paramètres actifs lors de l'inversion, tout étant fixé aux extrémités. Ils sont définis à partir de points de contrôles dont on fixe la position, la valeur de la concentration ou la température et la dérivée. La Figure III-32 est un exemple de profil de concentration obtenu avec une paramétrisation en polynômes de Hermite.

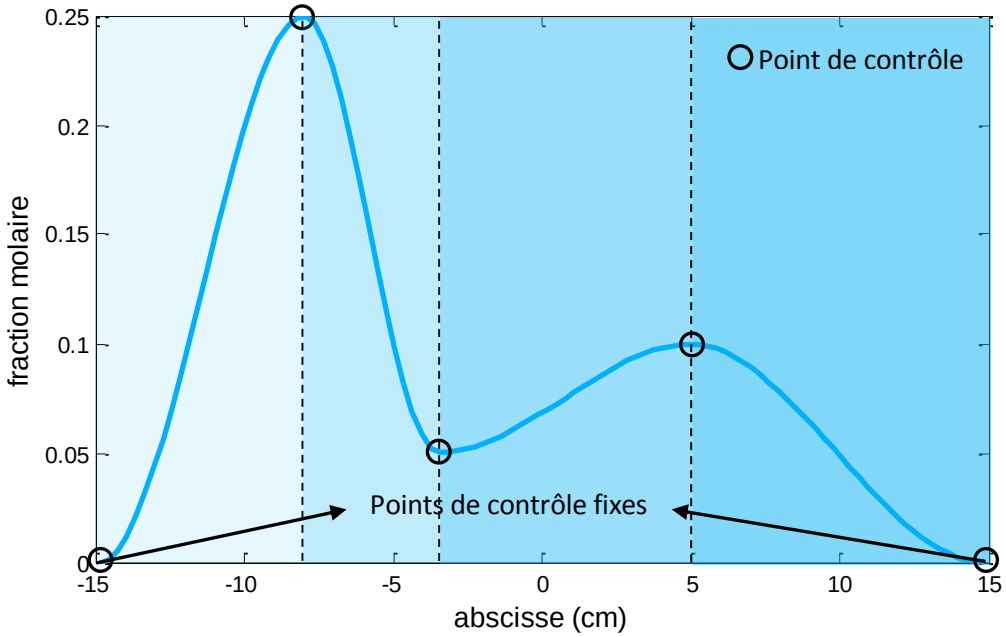


Figure III-32 : Exemple de paramétrisation en polynômes de Hermite

III.B.2.4.b Courbe de reference

Cette paramétrisation est utile lorsqu'à partir de la mesure Lidar, nous obtenons un premier profil de température présentant les incertitudes issues de la méconnaissance du milieu analysé et donc de la section efficace de diffusion Rayleigh moyenne.

A partir de la courbe de référence (courbe bleue de la Figure III-33), nous fixons des points de contrôles (A_1, A_2, A_3, Figure III-33). Ces points de référence doivent être caractéristiques du profil obtenu comme par exemple les extrema locaux. Le programme cherche les valeurs de températures ou centrations en ces points de référence permettant de minimiser la fonction coût. La forme du profil de la courbe de référence sera conservée en appliquant des transformations affines entre deux points de contrôle.

Soit $T_{ref}(x)$ la fonction décrivant le profil de température de référence et $T_{inv}(x)$ le profil de température obtenu après l'inversion des données spectrométriques (voir Figure III-33). Le profil de référence possède 5 points caractéristiques de A_0 à A_4. Les points A_0 et A_4 sont fixés car ils correspondent aux paramètres dans l'environnement ambiant. Les points B_1, B_2 et B_3 sont les points caractéristiques qui minimisent la fonction coût. A chaque portion de courbe située entre deux points caractéristiques, une transformation affine est appliquée. Les coefficients a et b de la transformation affine sont calculés pour chacune des portions de courbe transformée. La relation entre $T_{ref}(x)$ et $T_{inv}(x)$ pour une portion donnée est :

$$T_{inv}(x) = aT_{ref}(x) + b$$ **Eq. III-40**

La fonction T_{ref} est dérivable et la fonction $T_{inv}(x)$ sera dérivable si les points caractéristiques sont à dérivée nulle, ce qui est notre choix. C'est ce que l'on observe sur la Figure III-33.

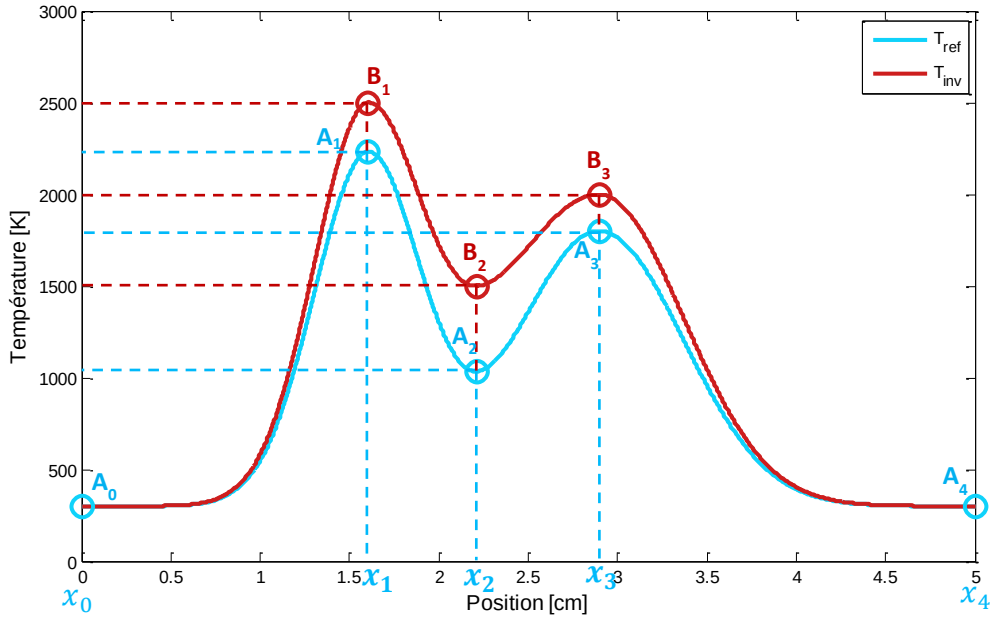


Figure III-33 : Exemple de courbe de référence

III.B.2.5 Analyse de sensibilité

L'analyse de sensibilité permet, à partir de l'analyse des vecteurs singuliers (Figure III-35(b) & Figure III-36(b)) dans l'espace des paramètres et des valeurs singulières (Figure III-35(a) et Figure III-36()), de classer les paramètres actifs par ordre de sensibilité. Autrement dit, quels sont les paramètres que nous sommes le plus susceptibles de retrouver lors de l'inversion ? Toutefois, il convient d'être prudent lors de cette analyse car elle est faite localement autour de conditions initiales données. L'analyse de sensibilité est d'autant plus sensible au point considéré que le modèle sous-jacent est non-linéaire. En effet, pour un modèle linéaire, la matrice jacobienne est la même en tous points. L'outil d'analyse de la sensibilité est la décomposition en valeurs singulières (SVD en anglais). La SVD est une généralisation de la diagonalisation aux matrices rectangulaires. Toute matrice réelle A à *m* lignes et *n* colonnes peut se factoriser sous la forme :

$$A = USV^T$$ **Eq. III-41**

Où U (matrice $m \times m$) et V (matrice $n \times n$) sont des matrices unitaires (d'inverse égale à la transposée) et S (matrice $m \times n$, comme A) est une matrice diagonale d'éléments positifs ou nuls ($S_{i,j} = 0$ pour $i \neq j$ et $S_{i,i} \geq 0$). Les matrices U et V définissent des bases orthonormées (vecteurs singuliers) dans les espaces d'arrivée (de dimension m) et de départ (de dimension n). En pratique, les éléments diagonaux de S (valeurs singulières) sont classés par ordre décroissant. Pour $i \leq min(m,n)$, on a $AV_i = S_{i,i}U_i$ (ainsi que $A^TU_i = S_{i,i}V_i$) où les U_i et V_i sont les colonnes de U et V.

Dans un premier temps, nous illustrons la notion de sensibilité au travers d'un exemple simple (III.B.2.5.a) puis donnons les clés de l'analyse dans un cas réel (III.B.2.5.b).

III.B.2.5.a Illustration sur un exemple simple

On observe une colonne de gaz scindée en deux portions de longueurs et températures définies. L'élément A de la colonne de gaz est défini par une température T_1 et par une longueur D_1. L'élément B de la colonne de gaz est défini par une température T_2 et par une longueur D_2. On ne tient pas compte des coefficients d'absorption.

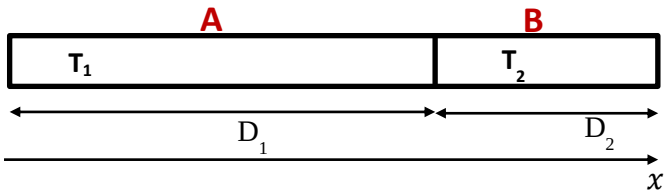


Figure III-34 : Représentation schématique de la colonne de gaz

Pour une longueur d'onde λ donnée, la luminance de la colonne est décrite par la loi de Planck (voir paragraphe II.D.2.3, Eq. II-60 page 73) :

$$L_\lambda(T_1,T_2,D_1,D_2)=\sum_{i=1}^{2}\frac{2hc^2}{\lambda^5}\frac{D_i}{\exp\left[\frac{hc}{k\lambda T_i}\right]-1}$$

Avec *h* la constante de Planck, *c* la célérité de la lumière dans le vide et *k* la constante de Boltzmann.

Nous effectuons une mesure de luminance spectrale pour 5 longueurs d'ondes (respectivement 400, 500, 600, 700, 800nm) :

$$L=\begin{pmatrix}L_{\lambda_1}(T_1,T_2,D_1,D_2)\\L_{\lambda_2}(T_1,T_2,D_1,D_2)\\L_{\lambda_3}(T_1,T_2,D_1,D_2)\\L_{\lambda_4}(T_1,T_2,D_1,D_2)\\L_{\lambda_5}(T_1,T_2,D_1,D_2)\end{pmatrix}$$

Dans un premier temps nous déterminons la matrice Jacobienne J_L de L par rapport à T_1, T_2, D_1 *et* D_2. Puis nous déterminons les valeurs singulières et les vecteurs singuliers dans l'espace des paramètres (T et D) via la méthode de décomposition en valeurs singulières (S.V.D.).

Chaque valeur singulière est associée à un vecteur singulier dans l'espace des paramètres. En classant les valeurs singulières par ordre décroissant on classe également les directions auxquelles la Jacobienne est la plus sensible. L'analyse des composantes non nulles des vecteurs singuliers nous informe sur les paramètres les plus sensibles, donc ayant le plus d'influence sur la fonction étudiée. Il s'agit ici de la luminance à 5 longueurs d'onde et dans la pratique il s'agit de la fonction coût de l'algorithme de minimisation définie par :

$$J_\lambda=\frac{1}{2}\left\|L_\lambda^{calc}(\boldsymbol{T},\boldsymbol{C})-L_\lambda^{mes}\right\|^2$$

Où T et C sont les paramètres d'influence de la luminance.

La Figure III-35 montre les valeurs singulières relatives d'une part et les vecteurs singuliers d'autre part. Il y a 4 valeurs singulières et 4 vecteurs singuliers, un par paramètre (T_1, T_2, D_1 et D_2).

Prenons T_1=700K, T_2=1800K, D_1=0.1m et D_2=0.1m.

La valeur singulière rouge, liée à la direction la plus sensible, est associée au vecteur singulier rouge n'ayant que sa deuxième composante non nulle. T_2 (température la plus élevée) sera par conséquent le paramètre le plus sensible. La deuxième valeur singulière est associée au vecteur singulier dont la première composante est la seule non nulle. Le deuxième paramètre le plus sensible est donc T_1. Enfin, en suivant un raisonnement analogue, on trouve pour troisième et quatrième paramètres les longueurs D_2 puis D_1 respectivement.

La luminance d'un corps noir est définie, de façon simplifiée par l'approximation de Wien, comme suit :

$$L \approx \frac{c_1}{\lambda^5} exp\left[\frac{-c_2}{\lambda T}\right]$$

Sa dérivée par rapport à la température est :

$$\frac{dL}{dT} \approx \frac{c_1 c_2}{\lambda^6 T^2} exp\left[\frac{-c_2}{\lambda T}\right]$$

La dérivée de la luminance est strictement croissante avec la température ce qui nous conduit à la déduction qu'une variation de température autour de 1800 K aura plus d'impact sur la luminance qu'une même variation de température autour de 700 K. De plus, une variation de longueur de la portion de colonne de gaz associée au gaz le plus chaud aura plus de poids que pour l'autre portion.

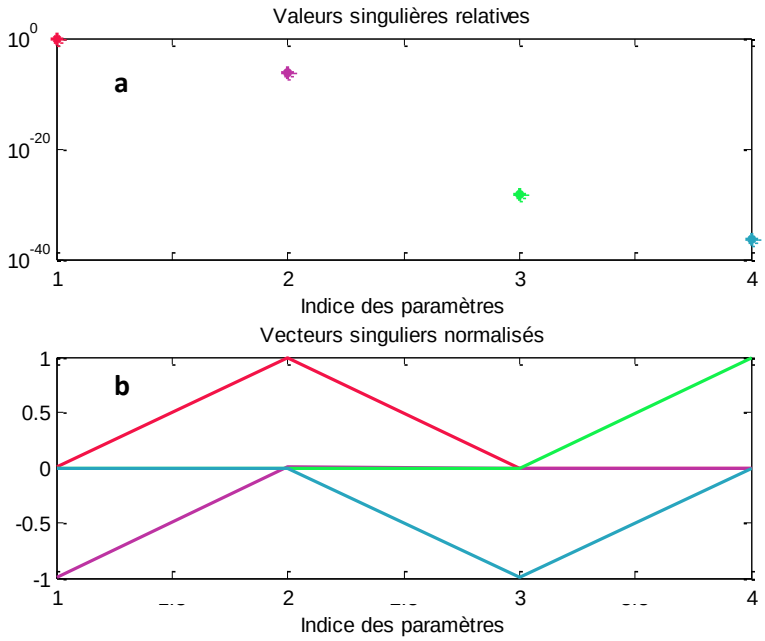


Figure III-35 : Valeurs et vecteurs singuliers

Qu'obtient-on lorsque les températures et distances sont égales ?

La Figure III-36 (T_1=1800K, T_2=1800K, D_1=0.1m et D_2=0.1m) montre que la plus forte sensibilité (couleur rouge) porte sur la moyenne des deux températures car les deux composantes non nulles sont sur les deux températures et sont de même signe. Ensuite, la luminance est sensible à la différence entre les deux températures car les composantes non nulles du vecteur singulier violet sont de signes opposés. En poursuivant un raisonnement analogue on trouve comme troisième paramètre le plus sensible la moyenne des longueurs et comme quatrième leur différence.

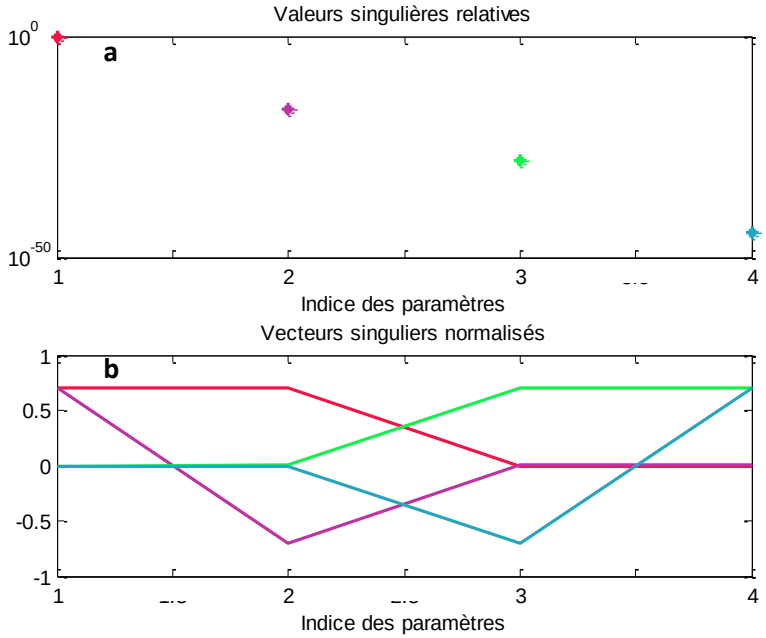


Figure III-36 : Valeurs et vecteurs singuliers

L'analyse de sensibilité locale qui vient d'être faite nous fournit deux informations : d'une part, la luminance est davantage sensible à la température (ce qui est sans surprise puisqu'elle en dépend exponentiellement). D'autre part, les conditions initiales jouent un rôle important : une variation de température autour d'une température élevée aura plus d'influence sur la luminance qu'une variation égale (en proportion) autour d'une température moindre.

III.B.2.5.b Cas réel

Prenons l'exemple d'une paramétrisation en polynômes de Hermite à 5 points de contrôles, soit 9 paramètres actifs (3 pour les positions, 3 pour les concentrations et 3 pour les dérivées) pour un profil de concentration, le profil de température étant fixé. On ne s'intéresse pas aux conditions de simulation qui ont amené ces résultats. Nous nous concentrons sur l'analyse de sensibilité au travers du décryptage des valeurs singulières et vecteurs singuliers.

Si certains vecteurs singuliers n'ont qu'une composante non nulle, auquel cas le paramètre sensible est évident, d'autre voient plusieurs de leurs composantes non nulles. Par exemple, le vecteur singulier en pointillés bleus (Figure III-37) n'a une composante non nulle qu'en deuxième position (cette composante correspond à la position du deuxième point sur les trois points de contrôle actifs). Ce vecteur correspond à la 7ème valeur singulière et puisqu'elle est de plus de 15 ordres de grandeurs inférieure à la plus grande valeur singulière, on en déduit que l'inversion ne sera pas sensible à ce paramètre. A contrario, le vecteur singulier en vert continu possède 5 composantes non nulles (aux 4ème, 5ème, 6ème, 8ème et 9ème paramètres). Dans le cas de composantes non nulles multiples, il convient de négliger celles dont la valeur est inférieure à 0.3, surtout lorsque cette composante est prépondérante pour un autre vecteur singulier. Les deux composantes restantes ont des valeurs proches et sont de signes opposés. Cette valeur de 0.3 est arbitrairement fixée et dépend du cas traité. Un plus grand nombre de paramètres abaisserait ce seuil. On en déduit que le deuxième paramètre le plus sensible est lié à la différence entre la 5ème et la 6ème composante (soit la

concentration des deux et troisièmes points de contrôles actifs). Dans le cas où les valeurs auraient été de même signe, la sensibilité se serait portée sur la moyenne des paramètres.

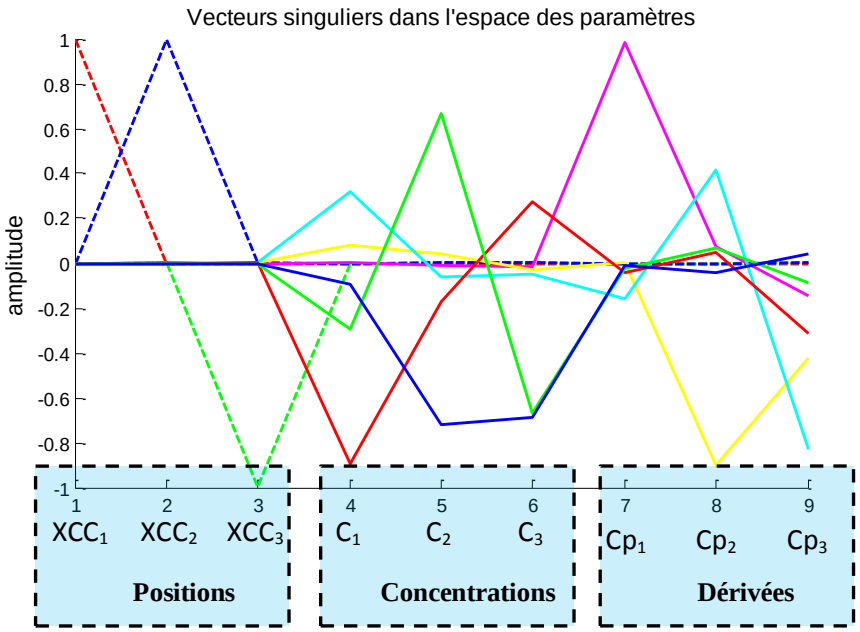


Figure III-37 : Vecteurs singuliers dans l'espace paramètres

Nous avons placé sur la Figure III-38 un niveau de bruit arbitraire qui nous permet d'établir approximativement une limite entre les paramètres que l'on peut retrouver et les autres.

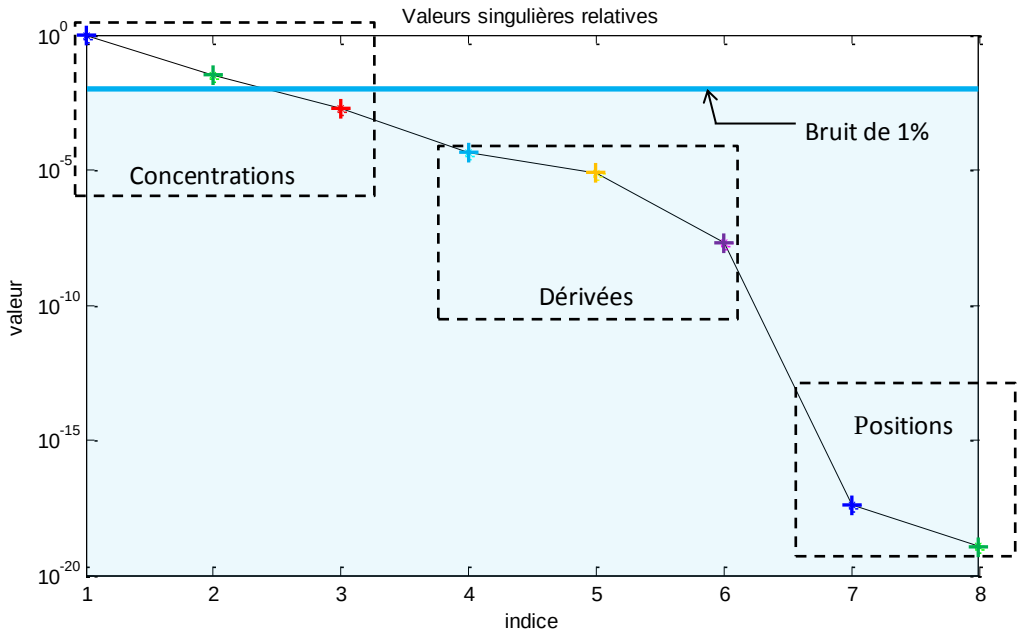


Figure III-38 : Valeurs singulières normées

Il y a trois valeurs relatives à la concentration car nous avons pris trois points de références.

On déduit de cette analyse que les paramètres les plus simples à retrouver sont les valeurs des concentrations, ensuite les dérivées puis les positions.

Les molécules principales que l'on trouve dans la majorité des combustions sont l'eau (III.B.2.6) et le dioxyde de carbone (III.B.2.7). C'est la raison pour laquelle ces molécules et en particulier leur spectre ont fait l'objet d'un grand nombre d'études.

III.B.2.6 Spectre d'émission de l'eau

Le spectre d'émission de l'eau contient des millions de raies (Figure III-39 et Figure III-40).

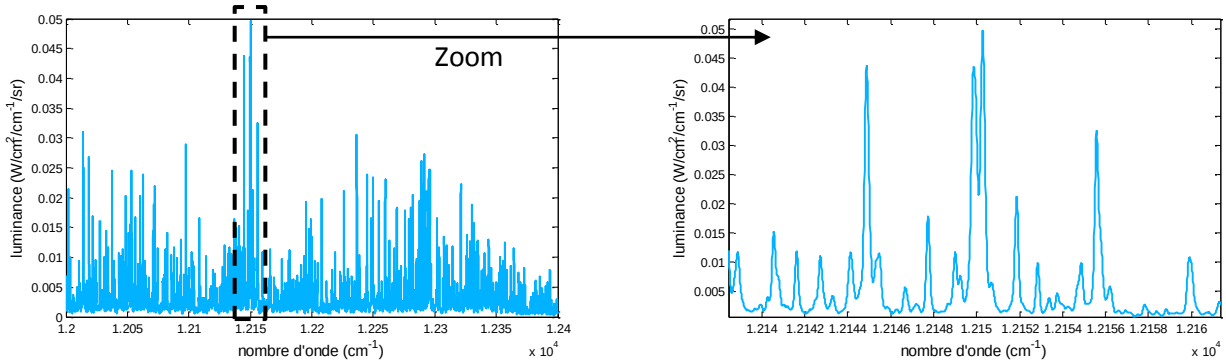


Figure III-39 : Spectre d'émission de l'eau entre 12000cm^{-1} et 12400cm^{-1}

Figure III-40 : Zoom sur le spectre de l'eau entre 12139cm^{-1} et 12161cm^{-1}

Bien que le nombre de raies soit très important, l'eau ne présente pas d'effet thermométrique remarquable. De plus, l'intensité du signal émis est pour une même flamme, de 4 à 5 ordres de grandeurs inférieures à l'intensité émise par le CO_2. Ces deux caractéristiques conduisent à des incertitudes en sortie d'inversion plus élevées que dans le cas du CO_2. Cependant, l'eau reste une molécule d'intérêt et peut être utilisée dans l'algorithme d'inversion en complément de l'inversion du CO_2 dans une prochaine étape.

III.B.2.7 Tête de bande du CO_2

La tête de bande du CO_2 est une bande d'absorption spécifique comprise entre 2380cm^{-1} et 2400cm^{-1}. Elle est le siège de phénomènes thermométriques intéressants dans le cadre de l'analyse thermique par émission de rayonnement. Le spectre d'émission provient des transitions électroniques à partir des niveaux de rotation-vibration. La molécule de CO_2 possède un moment dipolaire permanent et un mouvement de rotation ce qui aura pour conséquence l'émission de lumière. Un mouvement de vibration fera varier le moment dipolaire autour du moment dipolaire d'équilibre et aura également pour conséquence l'émission de lumière. Enfin, les mouvements de rotation et de vibration sont en interaction. L'ensemble de ces trois mouvements moléculaires conduit à un spectre d'émission particulier appelé spectre rovibrationnel ou spectre de vibration-rotation (nous invitons le lecteur curieux d'en savoir plus au sujet de la spectroscopie moléculaire à se référer à l'article d'Alain PETIT [**77**]). Les points J_1 et J_2 du spectre rovibrationnel, représentés sur la Figure III-43 et la Figure III-44, sont particulièrement sensibles aux variations de températures et ont fait l'objet des premiers travaux de recherche sur la tête de bande du CO_2 [**36**]. La suite de ce paragraphe met en évidence dans le cadre d'un exemple l'effet thermométrique sur la tête de bande du CO_2.

Pour évaluer la sensibilité de la méthode à la température, une simulation a été réalisée. La sensibilité de la méthode doit être suffisante pour pouvoir détecter des petites variations de températures telles que représentées sur les profils de température simulés représentés en Figure III-41. La simulation représente

deux profils de température présentant une différence de seulement 6 % entre les valeurs de température maximales pour des concentrations en CO_2 identiques comme on peut le voir sur la Figure III-42.

Pour pouvoir inverser numériquement, il est nécessaire de quantifier l'écart entre les spectres d'émission du CO_2 produits par ces deux combustions proches. La Figure III-43 présente les deux spectres extraits des bases HITRAN avec les paramètres de la simulation. Pour mesurer l'écart entre les deux spectres nous avons calculé l'écart relatif donné par la relation :

$$\Delta L = 100 \times \frac{|S_\alpha - S_\beta|}{S_\beta} \qquad \textbf{Eq. III-42}$$

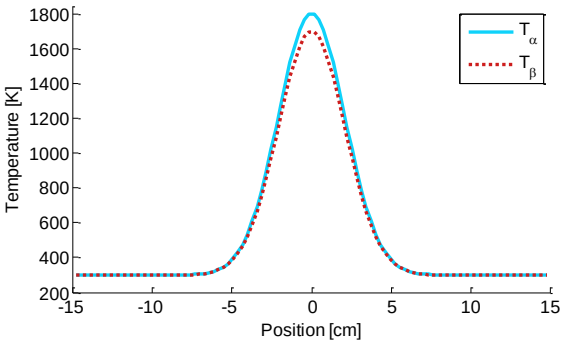


Figure III-41 : Profil de température gaussien simulé

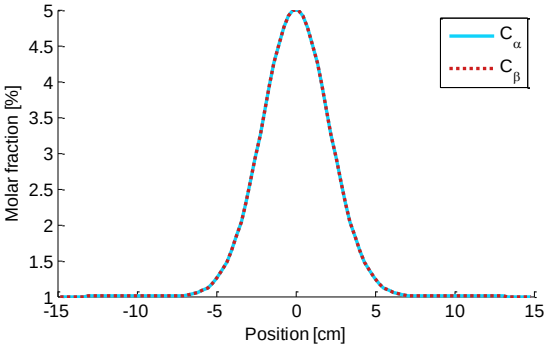


Figure III-42 : Profil de concentration gaussien simulé

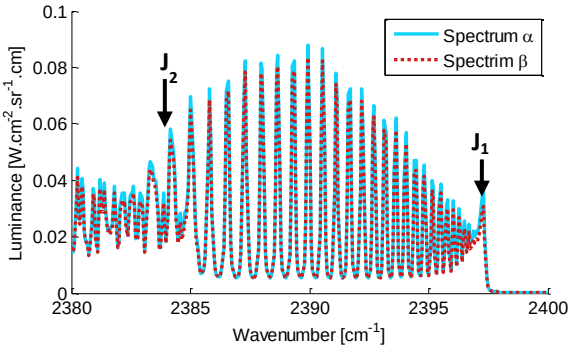


Figure III-43 : Spectre d'émission de la tête de bande du CO_2 calculée à partir de la base de données HITRAN

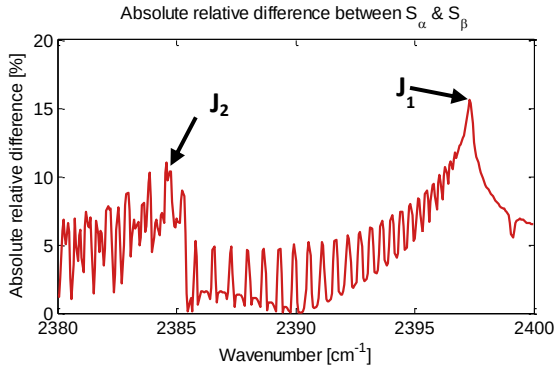


Figure III-44 : Valeur absolue de la différence relative entre les spectres S_α et S_β

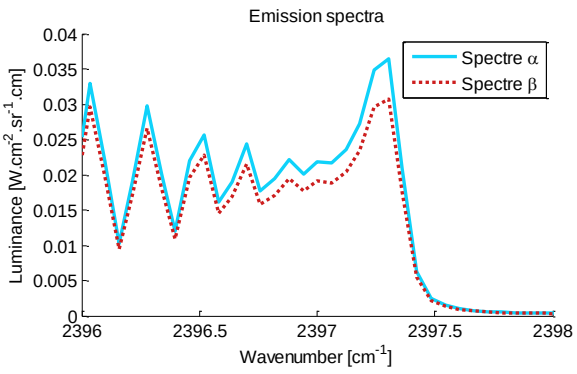


Figure III-45 : Zoom autour du point J_1 de la Figure III-43

Cet écart permet de mesurer l'amplitude de l'effet thermométrique. Comme on peut le constater, pour une variation de 6% sur la température de flamme, l'écart entre les deux spectres d'émission du CO_2 est significatif. Il est par exemple de 10% à J_1 et de 15% à J_2 (voir Figure III-44 et Figure III-45) soit $\frac{\Delta J_2}{J_2} = 2{,}5\frac{\Delta T}{T}$ et $\frac{\Delta J_1}{J_1} = 1{,}5\frac{\Delta T}{T}$. La tête de bande est donc exploitable pour faire des mesures de température.

Une analyse similaire a été réalisée pour étudier la sensibilité à la concentration. Il a été obtenu, pour une température de flamme de profil gaussien de température max 1800K et une variation de concentration de 6%. Un écart de 5,5% de variation sur J1 et J2. Comme on s'y attendait, la variation est pratiquement proportionnelle à la concentration.

Enfin, dans la suite de ce travail nous utiliserons la correspondance spectrale Cs afin de pouvoir comparer les spectres inversés avec les spectres mesurés à l'issue d'une inversion. Cs est définie par la relation suivante :

$$Cs = 100 \times \left(1 - \sqrt{\frac{J}{\|L\|^2}}\right) \qquad \textbf{Eq. III-43}$$

Avec J la valeur de la fonction coût à la fin de l'inversion et $\|L\|$ la norme du vecteur représentant le spectre en luminance mesuré.

III.B.3 Spectromètres

Les spectres d'émission de rayonnement sont mesurés avec un spectromètre. Ils peuvent être à réseau (III.B.3.1) ou à transformée de Fourier (III.B.3.2). Les spectromètres à réseau peuvent être utilisés pour les mesures sur des temps courts inférieurs à la microseconde mais pour des domaines spectraux plus restreints que les spectromètres à Transformée de Fourier. En revanche, ces derniers présentent des temps d'acquisition plus important dus aux mouvements de translation du miroir de l'interféromètre de Michelson.

III.B.3.1 Les spectromètres à réseau

Le pouvoir de résolution $\mathcal{R}$ d'un réseau dépend du nombre de traits éclairés N et de l'ordre d'interférence m selon la relation suivante :

$$\mathcal{R} = mN = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \qquad \textbf{Eq. III-44}$$

Par exemple, en éclairant un réseau de 1000 traits par mm sur 10mm et en choisissant l'ordre 10, nous obtenons un pouvoir de résolution de 100 000. Ceci correspond à une résolution spectrale de 0,01nm à 1µm soit 0,1cm^{-1}. La Figure III-46 ci-après est un schéma simplifié d'un réseau de diffraction en réflexion et la Figure III-47 est un schéma simplifié d'un réseau de diffraction en transmission.

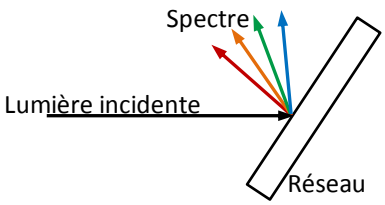


Figure III-46 : Schéma d'un réseau de diffraction en réflexion

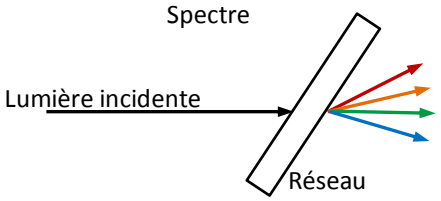


Figure III-47 : Schéma d'un réseau de diffraction en transmission

L'inconvénient du spectromètre à réseau est que d'une part il ne permet pas de mesure sur de larges domaines spectraux avec une résolution optimale. Lorsque l'on cherche une résolution spectrale fine, on se place à des ordres d'interférences élevés et le domaine spectral est réduit à cause du phénomène de recouvrement des ordres. D'autre part, le maximum d'énergie s'obtient à l'ordre 1 et diminue rapidement avec l'augmentation de l'ordre. Pour les phénomènes continus, nous avons donc utilisé un spectromètre à transformée de Fourier.

III.B.3.2 Les spectromètres à Transformée de Fourier

Notre spectromètre à transformée de Fourier (Nicolet 8700, voir Figure III-48 et Figure III-49) est doté d'un interféromètre de Michelson et d'un détecteur refroidi à l'azote liquide. L'interféromètre de Michelson est constitué d'une lame séparatrice, d'un miroir fixe (M_1) et d'un miroir se déplaçant en translation (M_2). Le rayonnement incident est séparé en deux rayonnements d'intensités égales à l'aide de la séparatrice. Une moitié est transmise par la séparatrice vers le miroir M_2 en mouvement et l'autre moitié est réfléchie sur le miroir M_1. Les rayonnements réfléchis sont à nouveau séparés à leur retour sur la lame séparatrice en deux faisceaux d'interférence. L'un repart en direction de la source alors que l'autre se dirige vers le détecteur. L'intensité mesurée par le détecteur dépend de la différence de marche δ entre le rayonnement réfléchi sur le miroir fixe et celui réfléchi sur le miroir mouvant. Si M_2 est la position de référence du miroir mouvant et que la distance entre M_2 et la séparatrice est la même que la distance entre le miroir fixe et la séparatrice alors $\delta = 2d$ avec d la distance entre le miroir mouvant et sa position de référence. L'intensité mesurée en fonction de la différence de marche est l'interférogramme et se mesure en Volts ($S(\delta)$). La transformée de Fourier de ce signal nous donne la distribution spectrale du rayonnement incident.

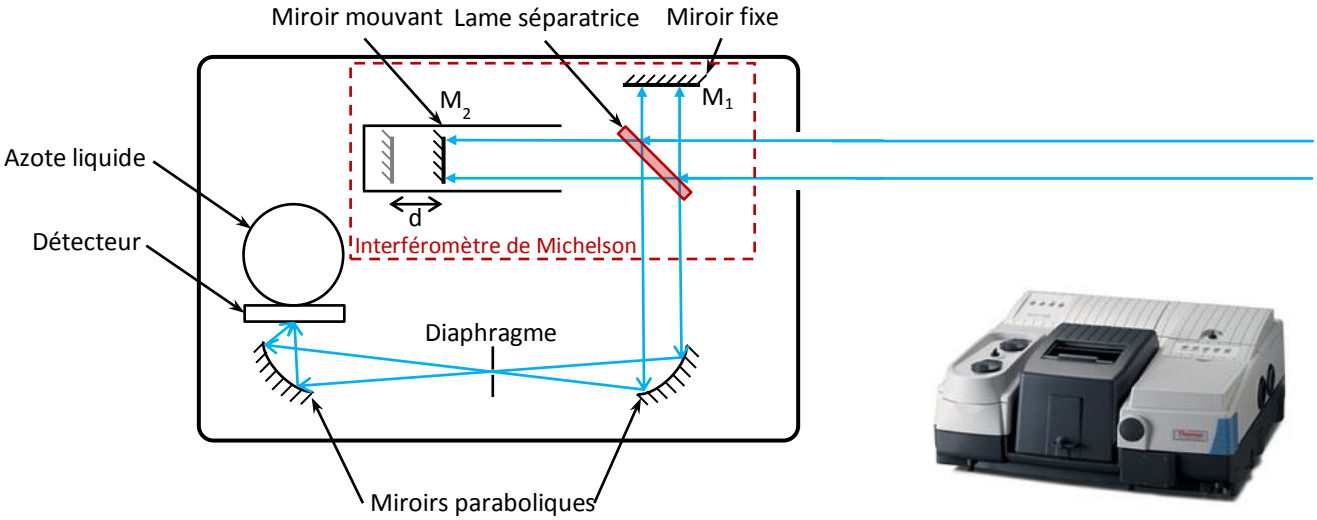


Figure III-48 : Schéma optique du spectromètre à Transformée de Fourier Nicolet 8700

Figure III-49 : Photo du spectromètre Nicolet 8700

La résolution maximale est de 0,125cm^{-1} soit 0,2nm à 4µm. Une résolution spectrale de 0,5cm^{-1} est suffisante pour ne pas faire d'erreur sur l'inversion de la tête de bande du CO_2 [**6**].

III.C Couplage

Le couplage consiste en la mesure sur la même ligne de visée de l'émission de rayonnement et Lidar-Rayleigh (voir le schéma de la Figure III-50 dans lequel le miroir M3 est amovible afin de réaliser les deux expériences l'une après l'autre). Le miroir amovible M3 pourrait être remplacé par une lame dichroïque ou un miroir percé.

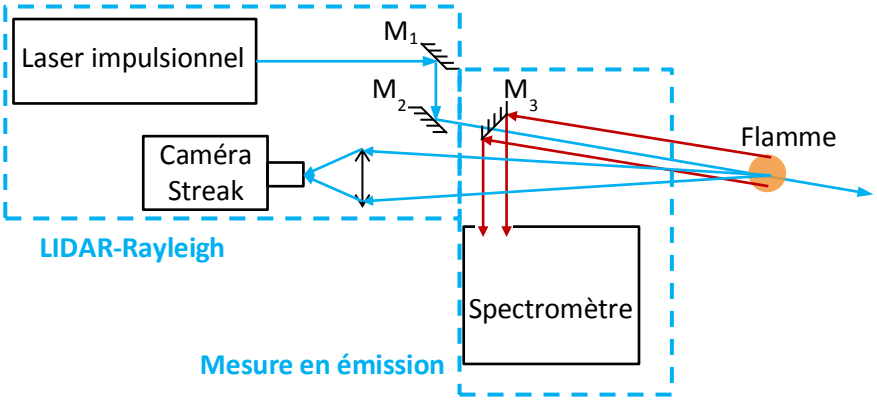


Figure III-50 : Montage type du banc de mesure couplée. Lidar-Rayleigh & émission de rayonnement.

III.C.1 Traitement de la mesure Lidar

Les courbes de la Figure III-51 à la Figure III-55 permettent d'illustrer les traitements effectués sur les mesures Lidar. Elles sont issues de la simulation dont le profil de température est la somme de deux gaussiennes de 30mm de largeur à mi-hauteur centrées aux abscisses 110 et 115cm. La première a une température maximale de 2500K et la seconde à une température de 2200K. La température ambiante est fixée à 300K.

La mesure Lidar permet d'obtenir la matrice de diffusion de l'impulsion laser émise dans le milieu analysé (voir Figure III-51). Cette matrice est constituée de 1400 points en abscisse (axe temporel allant de 0 à 2000ps ici) et de 1052 points en ordonnées (axe spatial correspondant à l'axe longitudinal de la fente d'entrée. La fente d'entrée mesure 8mm de long). A partir de cette matrice nous calculons le profil de rétrodiffusion (Figure III-53) en intégrant le signal sur chacune des colonnes et en retranchant le bruit de fond. Ceci permet de prendre en compte tous les photons reçus à chaque instant *t*. Enfin, nous appliquons la relation de l'équation Eq. III-8 ou l'inversion numérique présentée au paragraphe III.A.3 afin d'obtenir une approximation du profil de température (Figure III-55). C'est à partir de ce profil de température que nous choisissons les points de références utiles à l'inversion de l'équation du transfert radiatif (voir paragraphe III.B.2). Dans l'exemple choisi ici, les points A et E sont fixés à la température ambiante (300K) et les points B, C et D sont les points de références utilisés par le programme d'inversion.

III.C.2 Traitement de la mesure d'émission de rayonnement

Les spectres des figures Figure III-52, Figure III-54 et Figure III-56 sont issus de mesures sur des flammes de méthane et servent à illustrer le traitement effectué sur le spectre mesuré brut afin de l'utiliser dans le programme d'inversion.

Le spectre mesuré brut (Figure III-52) s'étend sur l'ensemble de la gamme spectrale mesurable par l'appareillage. Cette gamme dépend de la lame séparatrice utilisée ainsi que du détecteur. Pour la mesure du spectre du CO_2 nous utilisons un détecteur MCT refroidi à l'azote liquide avec une lame séparatrice en

KBr afin de réduire au maximum l'absorption entre 2380 et 2400cm^{-1} (la transmission type d'une fenêtre en KBr de 4mm d'épaisseur est de 90%). A partir du spectre brut nous extrayons le spectre du CO_2 brut entre 2380cm^{-1} et 2400cm^{-1} (Figure III-54). Puis nous utilisons la mesure sur corps noir afin d'obtenir le spectre du CO_2 en luminance (voir Figure III-56 et le protocole d'étalonnage décrit au paragraphe III.B.1).

Mesure Lidar

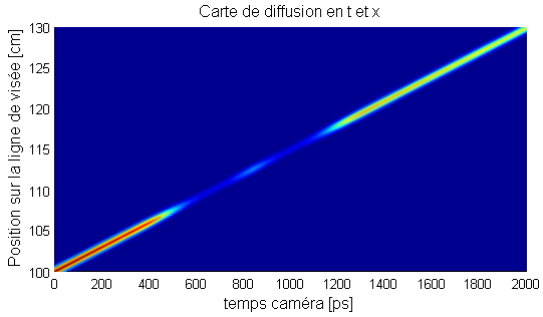


Figure III-51 : Matrice de diffusion Rayleigh d'une impulsion laser de 28,5ps de la largeur à mi-hauteur.

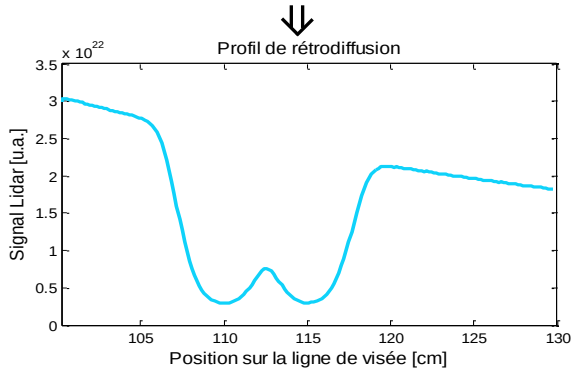


Figure III-53 : Profil de rétrodiffusion calculé à partir de la matrice de diffusion (Figure III-51).

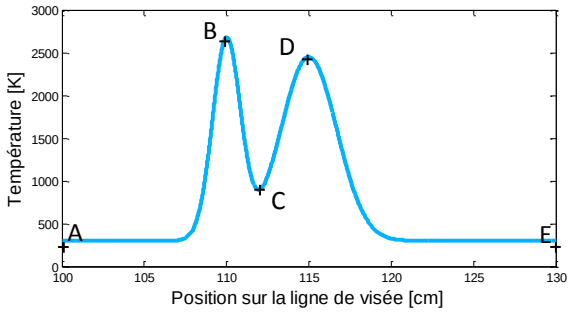


Figure III-55 : Profil de température issu du profil de rétrodiffusion (Figure III-53).

Mesure en émission

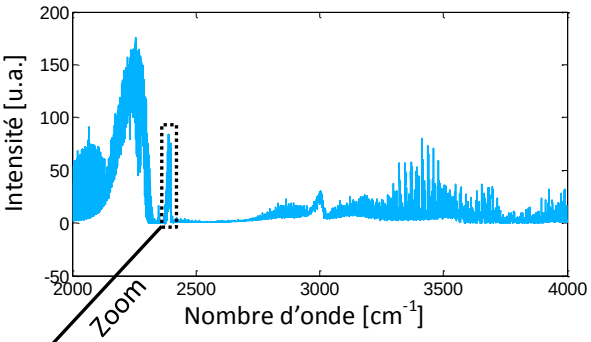


Figure III-52 : Spectre d'émission de rayonnement mesuré entre 2000cm^{-1} et 4000cm^{-1}

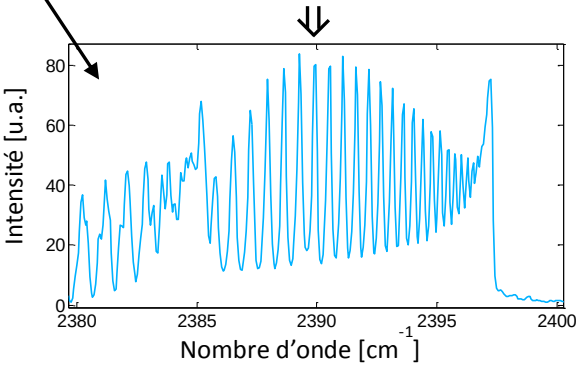


Figure III-54 : Spectre d'émission de rayonnement dans la gamme spectrale de la tête de bande du CO_2.

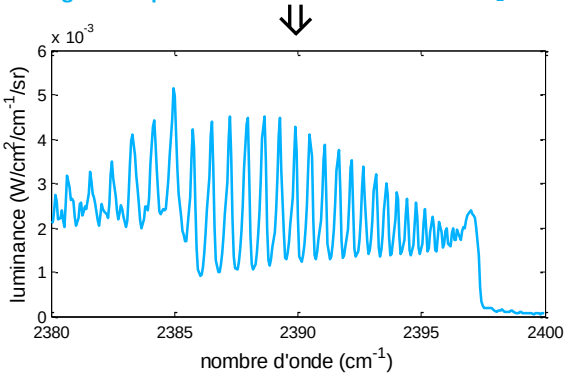


Figure III-56 : Spectre d'émission en Luminance dans la gamme spectrale de la tête de bande du CO_2.

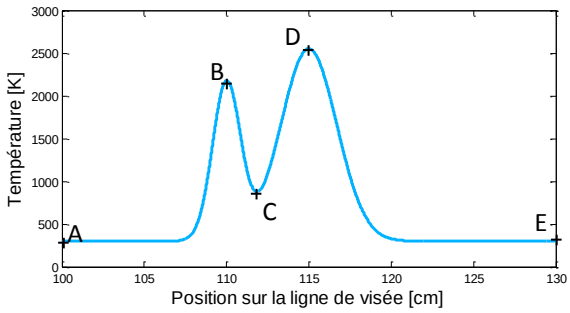


Figure III-57 : Profil de température inversé

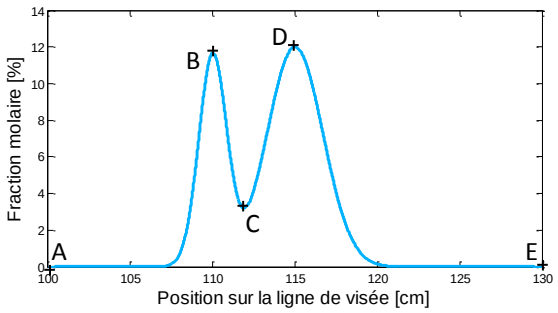


Figure III-58 : Profil de fraction molaire inversé

Une fois ces traitements préliminaires réalisés, nous procédons à l'inversion des données spectrales avec une paramétrisation avec la courbe de référence (Figure III-57 et Figure III-58).

III.C.3 Validation du modèle

Nous cherchons ici à vérifier la cohérence des mesures effectuées par différents moyens. Nous appuyons notre raisonnement sur une validation triangulaire de notre modèle. Nous effectuons plusieurs mesures en rétrodiffusion sur des flammes méthane/air à différentes richesses afin d'en vérifier la répétabilité (III.C.3.1). Puis nous simulons la combustion d'une flamme méthane/air avec une richesse de 1,13 avec le logiciel Cantera [**78**] afin d'en extraire la température adiabatique ainsi que les concentrations en CO_2 et H_2O (III.C.3.2). Cette simulation est réalisée dans les conditions de la mesure couplée réalisée sur une flamme méthane/air de pré-mélange à symétrie axiale (III.C.3.3). Cette mesure permet la validation de notre méthode couplée dans sur une flamme dont le profil est simple et les caractéristiques sont connues.

III.C.3.1 Répétabilité LIDAR

Pour la mesure de répétabilité, nous avons mis en œuvre trois flammes méthane/air sur un bruleur rampe de 15cm de long. Nous plaçons la ligne de visée à 2cm du brûleur et nous accumulons les signaux donnés par 100 impulsions. Nous utilisons le signal doublé du laser YAG à 532nm.

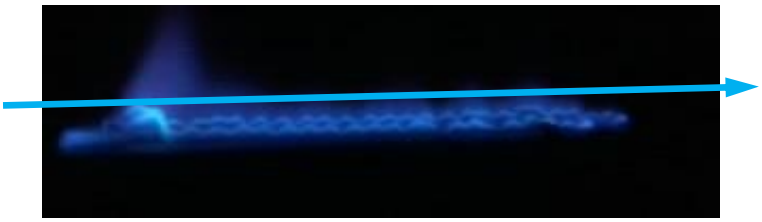


Figure III-59 : photo de la flamme CH_4/air mise en œuvre sur le bruleur rampe pour un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 1,5l.min^{-1} pour le méthane

La Figure III-60 ci-dessous représente les profils de températures obtenus en rétrodiffusion ainsi que la moyenne (courbe M4) de ces trois profils pour un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 1,5l.min^{-1} pour le méthane.

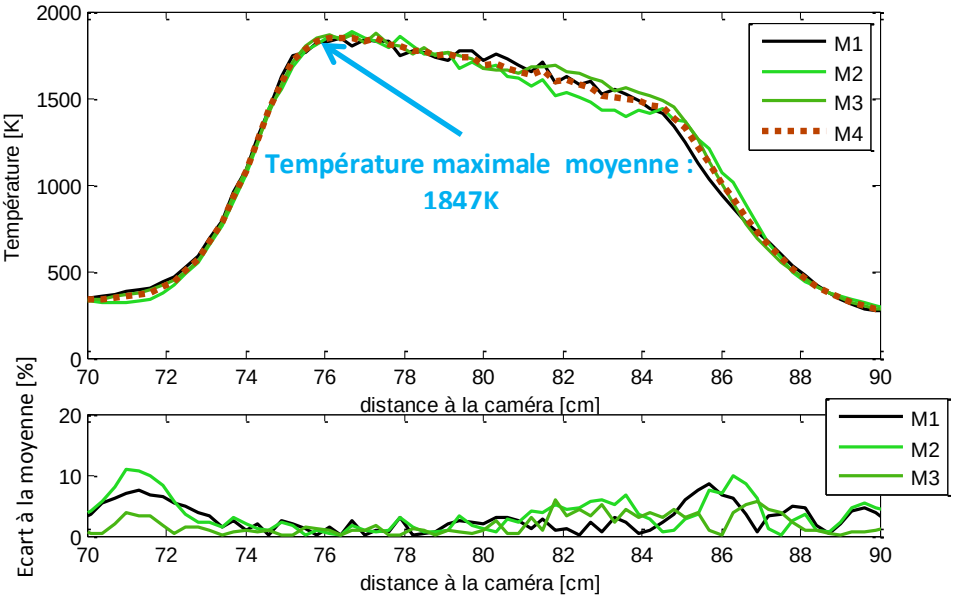


Figure III-60 : Profils de température obtenus a partir de plusieurs mesures sur une même flamme CH_4/air de la Figure III-59

La Figure III-61 ci-dessous représente les profils de températures obtenus en rétrodiffusion ainsi que la moyenne (courbe M4) de ces trois profils avec un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 4l.min^{-1} pour le méthane.

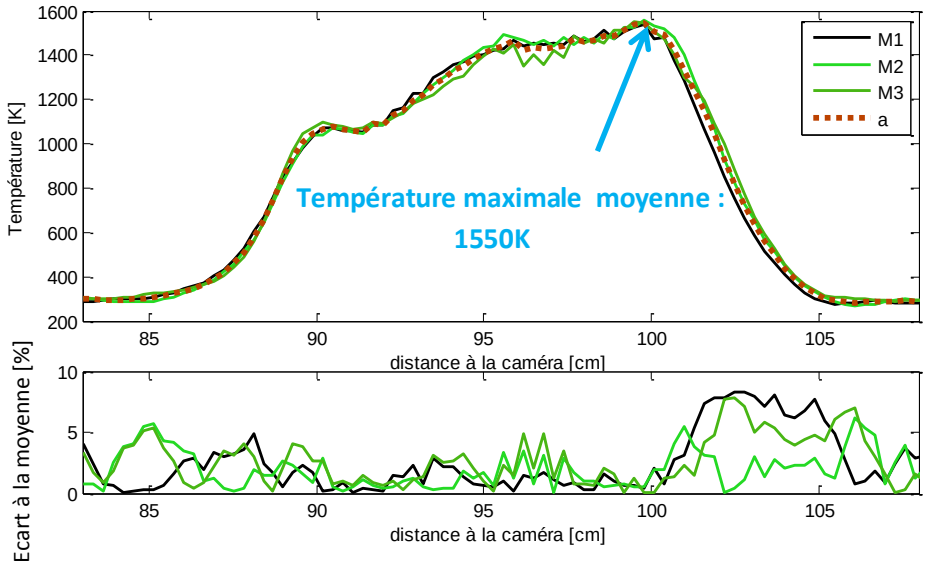


Figure III-61 : Profils de température obtenus a partir de plusieurs mesures sur une même flamme CH_4/air avec un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 4l.min^{-1} pour le méthane.

La Figure III-62 ci-dessous représente les profils de températures obtenus en rétrodiffusion ainsi que la moyenne (courbe M4) de ces trois profils pour avec un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 10l.min^{-1} pour le méthane.

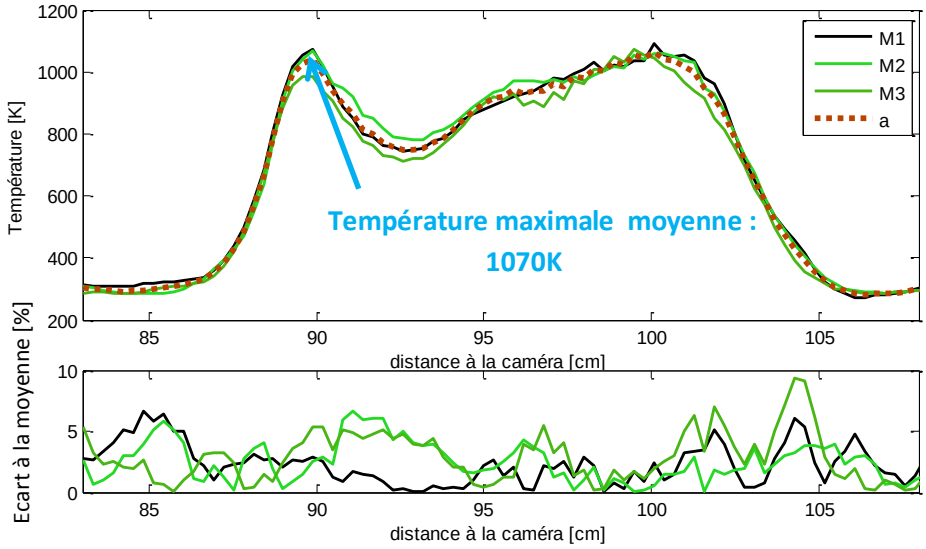


Figure III-62 : Profils de température obtenus a partir de plusieurs mesures sur une même flamme CH_4/air avec un débit de 10l.min^{-1} pour l'air et 10l.min^{-1} pour le méthane

De ces mesures nous déduisons une répétabilité supérieure à 10% quelle que soit la richesse du mélange.

III.C.3.2 Simulations Cantera

Nous effectuons ici une simulation via le logiciel Cantera d'une flamme CH_4/Air adiabatique laminaire de pré-mélange avec une richesse initiale de 1,13, configuration analogue à la flamme qui sera caractérisée au paragraphe suivant. Nous obtenons la température en fonction de la hauteur dans la flamme Figure III-63.

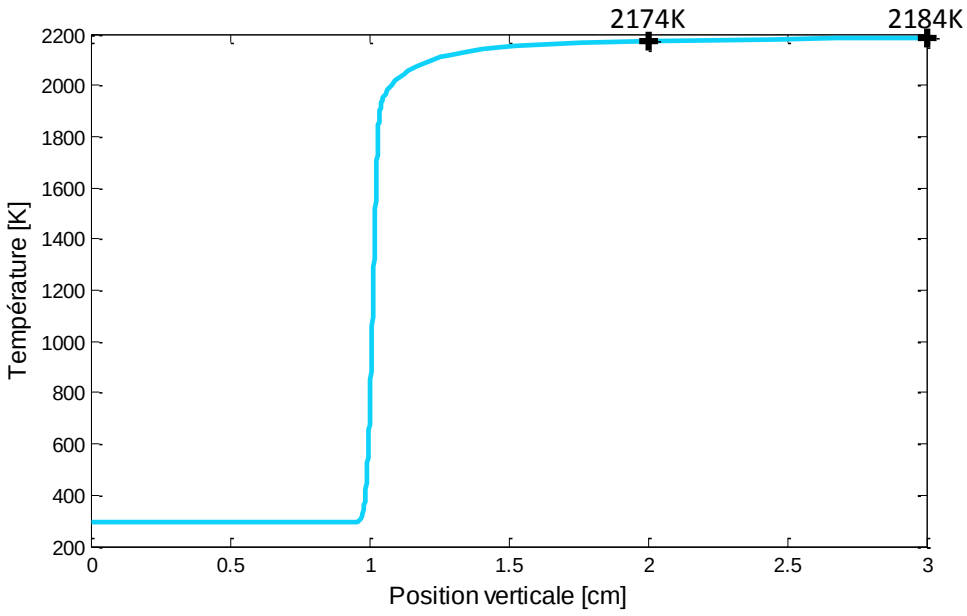


Figure III-63 : Profil de teméprature le long de la position verticale

La Figure III-64 ci-après représente la température obtenue à l'équilibre thermodynamique en fonction de la richesse initiale du mélange.

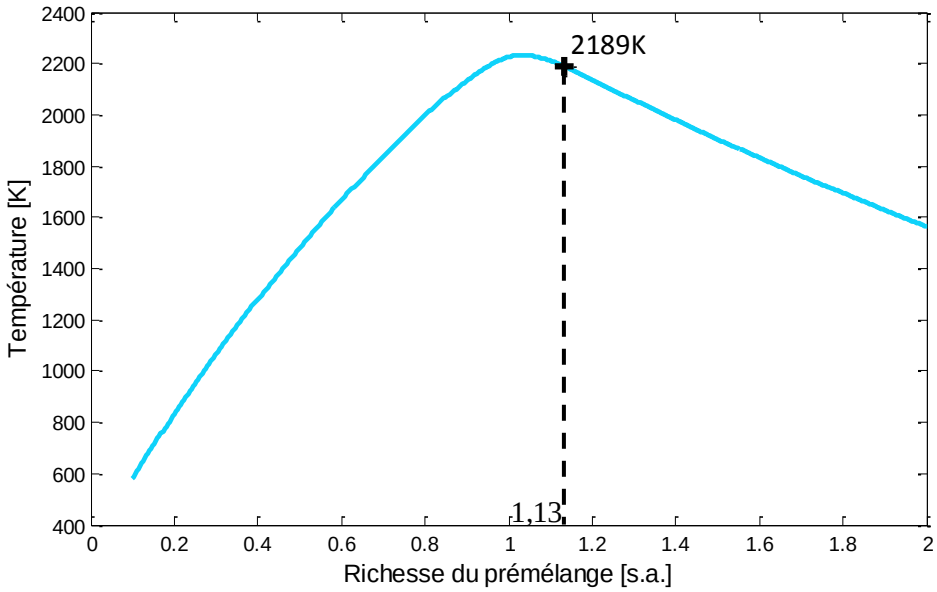


Figure III-64 : Température adiabatique à l'équilibre thermodynamique d'une flamme méthane/air en fonction de la richesse initiale des réactifs

Nous obtenons à 2cm au-dessus du bruleur une température de 2174K et une température à l'équilibre thermodynamique de 2189K.

Les Fractions molaires en CO_2 et H_2O d'une combustion adiabatique méthane/air à l'équilibre thermodynamique en fonction de la richesse initiale des réactifs sont représentées Figure III-65.

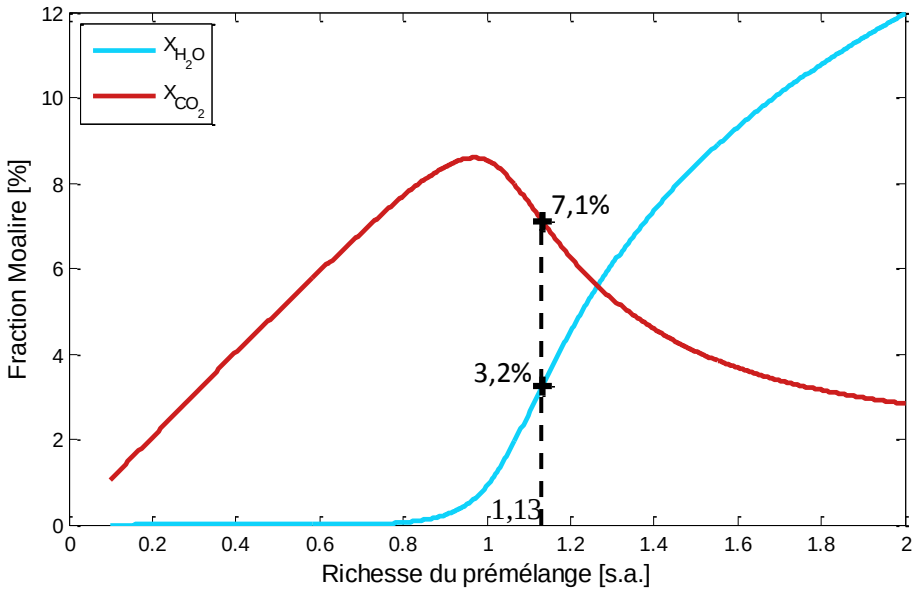


Figure III-65 : Fractions molaires en CO_2 et H_2O d'une combustion adiabatique méthane/air à l'équilibre thermodynamique en fonction de la richesse initiale des réactifs

Étudions maintenant le cas d'une flamme réelle CH_4/Air mise en œuvre dans les mêmes conditions que pour la simulation ci-dessus.

III.C.3.3 Mesure couplée sur une flamme CH_4/Air

Afin de valider notre méthode couplée de mesure de température et concentration, nous l'avons appliquée à une flamme méthane/air de profil simple (Figure III-66). Nous avons choisi une richesse de 1,13 pour un débit total (méthane + air) de 12,3l.min^{-1}. Nous cherchons à montrer l'intérêt de la mesure couplée et l'importance de la mesure Lidar dans la détermination de profils complexes.



Figure III-66 : Photo de la flamme de Méthane/Air utilisée pour la validation de la méthode couplée.

Le montage mis en œuvre est celui de la Figure III-50. Nous avons utilisé la caméra Streak, le laser picoseconde Ekspla ainsi que le spectromètre à transformée de Fourier nous autorisant une résolution spectrale de 0,125cm^{-1}. Le traitement des données est effectué selon le protocole défini aux paragraphes III.C.1 et III.C.2. Afin d'augmenter le rapport signal sur bruit, nous faisons une moyenne sur 50 spectres d'émission et sur 10 mesures Lidar. Les mesures d'émission de rayonnement et Lidar sont effectuées sur la même ligne de visée.

Nous obtenons le spectre d'émission du CO_2 et le profil Lidar suivants (Figure III-67 et Figure III-68).

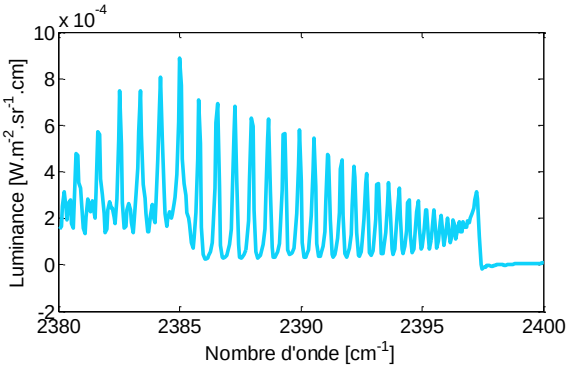


Figure III-67 : Tête de bande du CO_2 mesurée

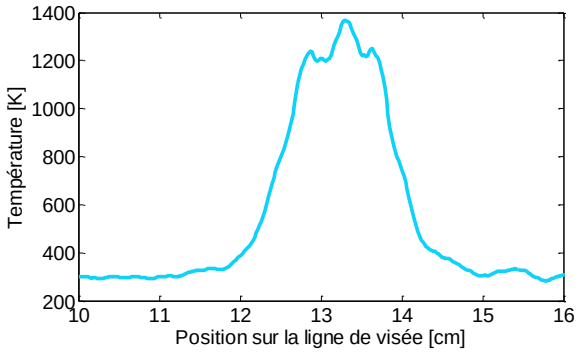


Figure III-68 : Profil de température Lidar

A partir de ces données, nous effectuons deux inversions. Une première avec une paramétrisation gaussienne et une seconde avec une paramétrisation avec courbe de référence (celle de la Figure III-68).

Nous obtenons les profils de température de la Figure III-69. La courbe bleue est le profil Lidar, correspondant au profil de référence de la Figure III-68. La courbe rouge est issue de l'inversion avec une paramétrisation gaussienne, la courbe verte provient de l'inversion avec une paramétrisation avec la courbe de référence et la courbe violette correspond à la température que l'on obtiendrait pour une flamme parfaitement adiabatique. On observe un écart de 21K, soit 1%, au niveau des températures maximales (2045K pour le profil de température gaussien et 2065 pour l'autre profil). La luminance et donc l'algorithme

d'optimisation sont fortement sensibles aux températures maximales ce qui explique la faible différence obtenue sur les températures maximales entre les deux profils. Bien que la flamme soit de pré-mélange, le profil de température issu de l'inversion avec le profil Lidar en référence (courbe verte) présente les deux pics de températures caractéristiques des flammes de diffusion (voir les paragraphes I.A.1.1 page 49 et II.B.1.2 page 49).

La température simulée (2189K) pour une flamme parfaitement adiabatique est surestimée par rapport à la température mesurée.

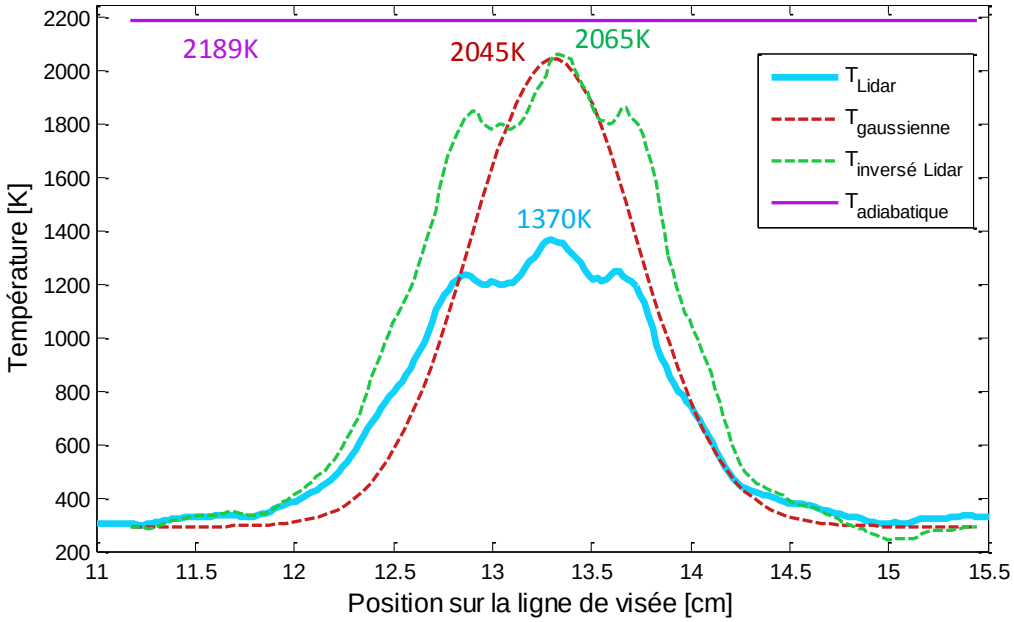


Figure III-69 : Profils de températures Lidar (courbe bleue), inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte).

Les profils de fraction molaire obtenus sont représentés sur la Figure III-70. L'algorithme d'inversion est comme nous l'avons vu dans l'étude de sensibilité aux paramètres (III.B.2.5) nettement moins sensible à la fraction molaire qu'à la température. Nous trouvons ici un écart de 46% entre les maxima de fraction molaire.

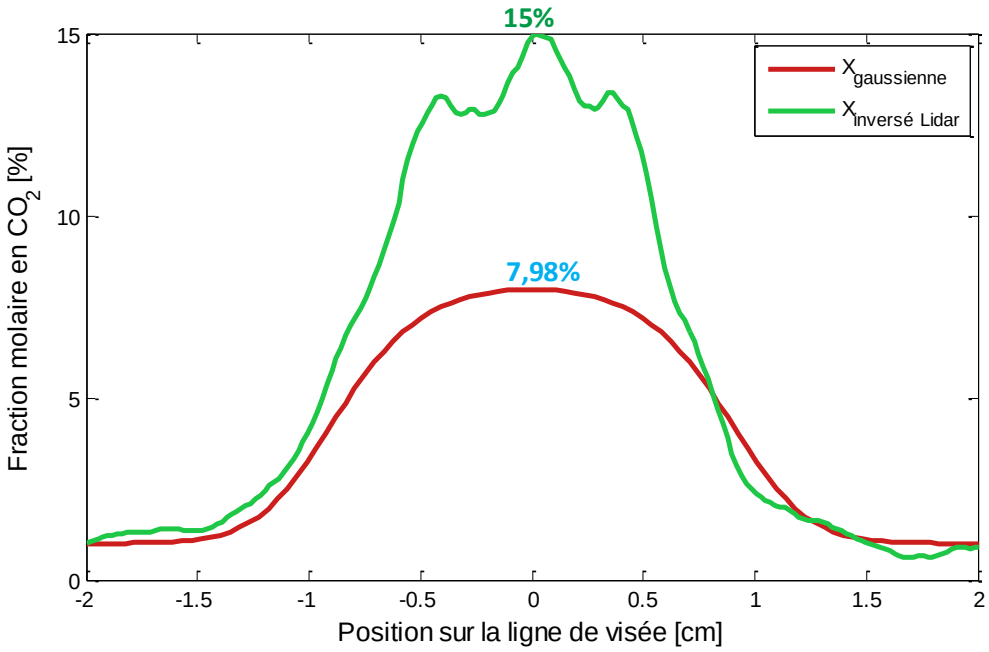


Figure III-70 : Profils de fractions molaires inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe bleue) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe rouge).

Les profils de fraction molaire en CO_2 issus de l'inversion Figure III-70 donnent respectivement 7,9% et 15% pour la paramétrisation en gaussienne et en courbe de référence. Le profil gaussien donne donc une fraction molaire en CO_2 avec une erreur de 11% par rapport à la valeur théorique. La fraction molaire obtenue à partir de la paramétrisation en courbe de référence est en revanche plus éloignée de la valeur simulée puisque l'on obtient 15% au lieu de 7,1%.

Le choix d'une paramétrisation pour l'inversion avec la courbe de référence Lidar pour déterminer le profil de température est naturel puisque le profil de rétrodiffusion suit la température via la loi des gaz parfaits. En revanche, ce choix ne l'est pas en ce qui concerne la fraction molaire car a priori, le profil de fraction molaire ne suit pas nécessairement le profil de température. La Figure III-71 suivante représente la fraction molaire en CO_2 et H_2O en fonction de température le long de la ligne verticale pour une flamme CH_4/Air comme définie III.C.3.2 précédent. Les deux profils sont monotones croissants ce qui dans le cadre d'une combustion adiabatique implique que les variations du profil de fraction molaire suivent les variations du profil de température. Un pic de température correspondra à un pic de fraction molaire. L'utilisation du profil de référence pour la fraction molaire est donc légitime dans ce cas.

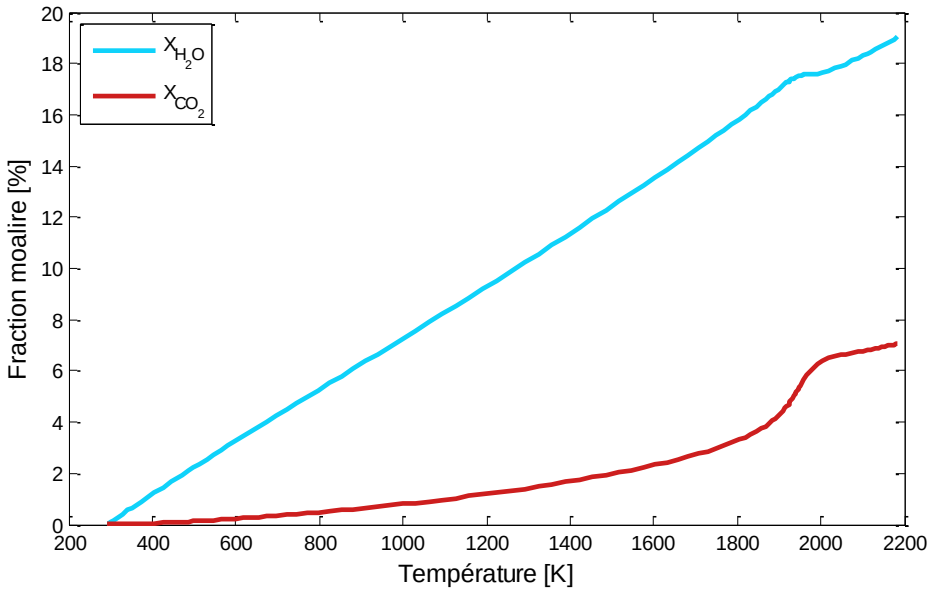


Figure III-71 : Fractions molaires en H_2O et CO_2 en fonction de la température pour une combustion adiabatique méthane/Air avec une richesse initiale de 1,13

Les spectres de la tête de bande du CO_2 sont représentés sur les Figure III-72 et Figure III-73.

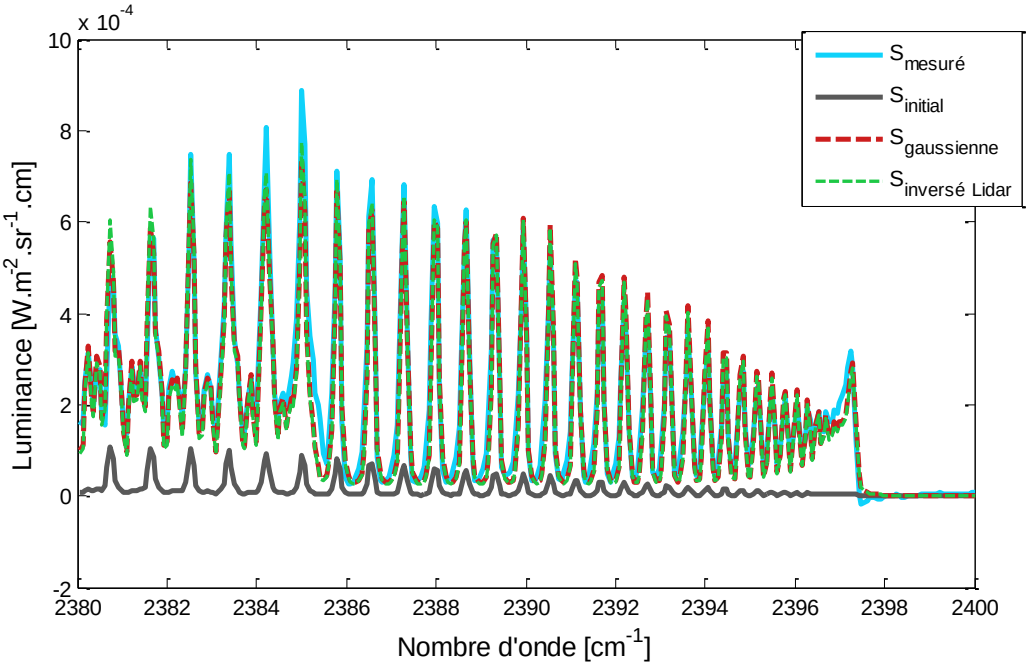


Figure III-72 : Spectres d'émission de la tête de bande du CO_2. $S_{mesuré}$ correspond à la mesure, $S_{gaussienne}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation gaussienne et $S_{référence}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation avec la courbe de référence.

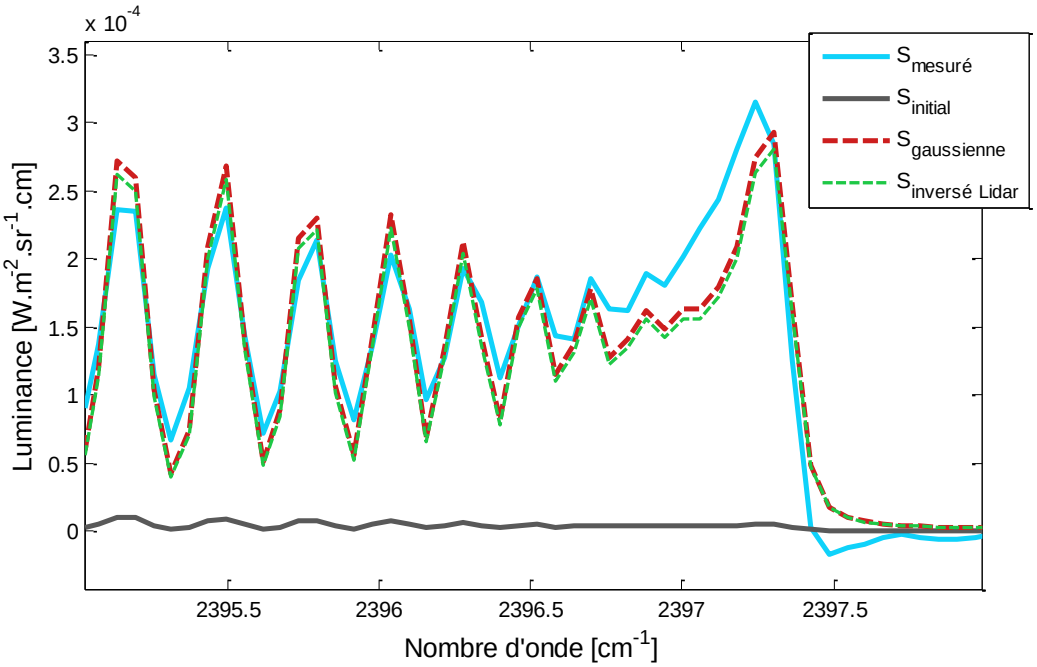


Figure III-73 : zoom sur une portion du spectre de la tête de bande du CO_2 de la Figure III-72

Les spectres inversés correspondent bien au spectre mesuré. En particulier, la correspondance spectrale (calculée selon la relation Eq. III-43) est de 84,1% pour la paramétrisation avec courbe de référence et de 84,6% pour la paramétrisation gaussienne. Afin de montrer le travail effectué par l'algorithme d'optimisation, nous présentons également le spectre obtenu avec les profils de température et fraction molaire initiaux ($S_{initial}$). La correspondance spectrale est dans ce cas de 8,5%.

Le raisonnement quant à l'utilisation du profil de référence pour la fraction molaire, valable pour la réaction méthane/air est également valable pour la réaction H_2/Air (voir Figure III-74 obtenue pour une combustion H_2/air dans les proportions stœchiométriques).

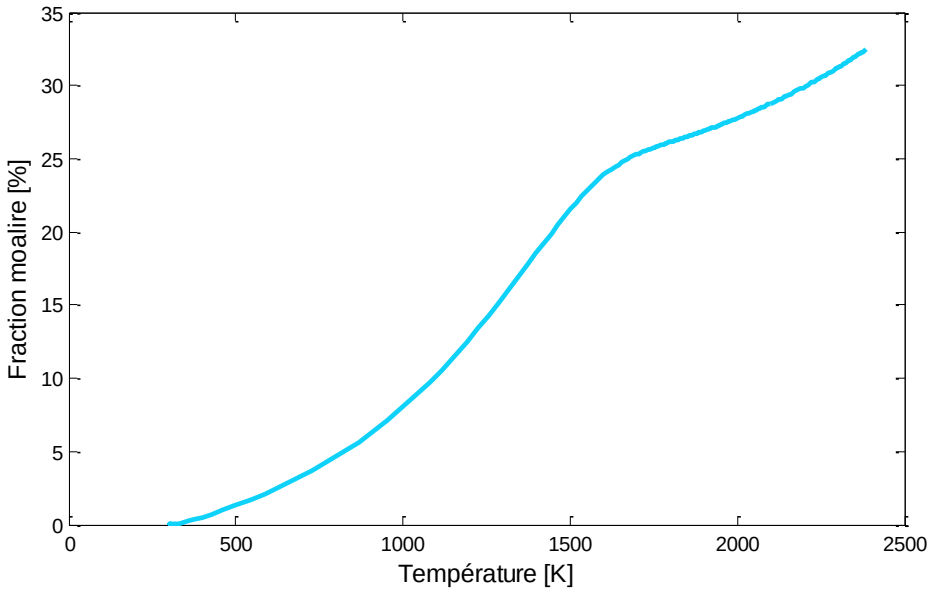


Figure III-74 : Fraction molaire en H_2O en fonction de la température pour une combustion adiabatique Hydrogène/Air avec une richesse initiale de 1

III.C.3.4 Conclusions sur la validation du modèle

Pour conclure sur la validation de notre modèle. Les mesures en rétrodiffusions sont répétables avec un écart absolu à la moyenne inférieur à 5% pour les températures supérieures à 1500K et un écart inférieur à 10% ailleurs.

La simulation numérique d'une flamme adiabatique laminaire de pré-mélange méthane/Air prise dans les mêmes conditions que celles expérimentales nous donne un profil de température surestimé mais cohérent compte tenu des pertes par émission de rayonnement de la flamme expérimentale.

Les profils de température issus de l'inversion sont de 50% supérieurs à la température Lidar. Or, l'écart ne devrait pas être de plus de 21%. La différence s'explique par la petite dimension de la flamme par rapport à la résolution spatiale du Lidar. La conséquence est que le Lidar donne un profil moyenné sur environ 5mm et sous-estime la température.

Concernant les profils de fraction molaire, l'inversion avec une paramétrisation gaussienne correspond à 11% près à la fraction molaire obtenue par la simulation. En revanche, la paramétrisation en courbe de référence donne une fraction molaire de 15% ce qui est le double de celle attendue. La faible sensibilité de l'algorithme d'optimisation à la fraction molaire conduit à obtenir des profils de fractions molaires allant du simple au double avec une très faible conséquence sur la température maximale et les spectres obtenus. Une étude approfondie est nécessaire afin d'expliquer et tenter de ne plus avoir autant d'écart entre les deux autres paramétrisations. Une nouvelle paramétrisation développée pour les profils de concentration s'impose.

Le profil de température obtenu à l'issue de l'inversion avec la paramétrisation en courbe de référence est proche de celui obtenu avec la paramétrisation gaussienne mais n'aurait pu être en aucun cas obtenu autrement. Les deux pics de températures de part et d'autre du maximum global proviennent de la combustion au niveau de l'interface entre l'air ambiant et la flamme. La mesure Lidar est indispensable à leur observation (Voir annexe VI.F sur une flamme de diffusion seule mise en œuvre sur un bec bunsen).

Enfin, le raisonnement tenu pour valider l'utilisation du profil de référence pour le profil de fraction molaire est valable pour la réaction méthane/air ainsi que pour la réaction H_2/Air (voir Figure III-74 obtenue pour une combustion H_2/air dans les proportions stœchiométriques).

Chapitre IV : Applications de la méthode couplée

Ce chapitre présente les applications de la méthode qui justifient la faisabilité de notre méthode couplée dans différentes configurations.

- La première application est réalisée sur les gaz d'échappement d'un turboréacteur (IV.A).
- La deuxième application a été menée sur une double flamme méthane/air mise en œuvre à partir de deux brûleurs (IV.B).
- Une troisième application a été réalisée sur le banc expérimental d'un statoréacteur de l'entreprise MBDA (IV.C).
- La dernière application s'inscrit dans le cadre de faisabilité d'un banc de mesure couplée pour la caractérisation de la réaction sodium/eau pour le CEA Saclay. Cette étude de faisabilité consiste en la mesure par diffusion Rayleigh latérale du profil de température dans une déflagration H_2/air. La réalisation de mesures spectrales en des temps de l'ordre de la milliseconde avait été réalisées au laboratoire avant le présent travail de thèse [**8**]. Nous ne présentons ici que la faisabilité d'une analyse du profil de température par diffusion Rayleigh latérale (IV.D).

IV.A Mesures sur flammes isolées avec la méthode LIDAR seule

Nous présentons dans cette section les profils de températures issus de mesure LIDAR seules (sans mesures de spectres d'émission) sur des profils de flammes aux caractéristiques différentes. Les mesures sur les trois flammes présentées ci-dessous ont été traitées selon le protocole défini au chapitre I.A. La première flamme étudiée est une flamme de pré-mélange H_2/Air inclinée (IV.A.1). La deuxième flamme analysée est une flamme méthane/air de diffusion mise en œuvre sur le même brûleur et dans les mêmes configurations que pour la flamme hydrogène/air (IV.A.2). Enfin, la troisième flamme est une flamme méthane/air de pré-mélange mise ne œuvre sur un bruleur rampe de 15cm de long (IV.A.3).

IV.A.1 Flamme H_2/Air inclinée

Une mesure en rétrodiffusion sur une flamme H_2/air a été réalisée. Le bruleur était incliné afin d'augmenter l'épaisseur de gaz traversée par l'impulsion laser (voir photo Figure IV-1).

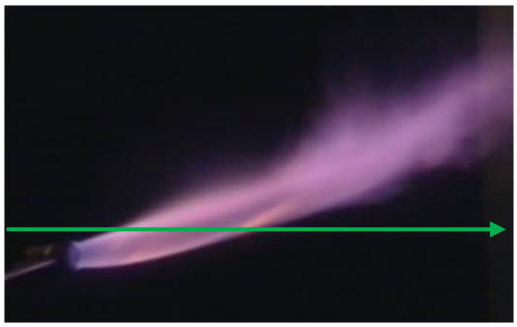


Figure IV-1 : photo de la flamme hydrogène/air de pré-mélange inclinée avec le passage du faisceau laser (flèche verte)

Nous obtenons le profil de température de la Figure IV-2.

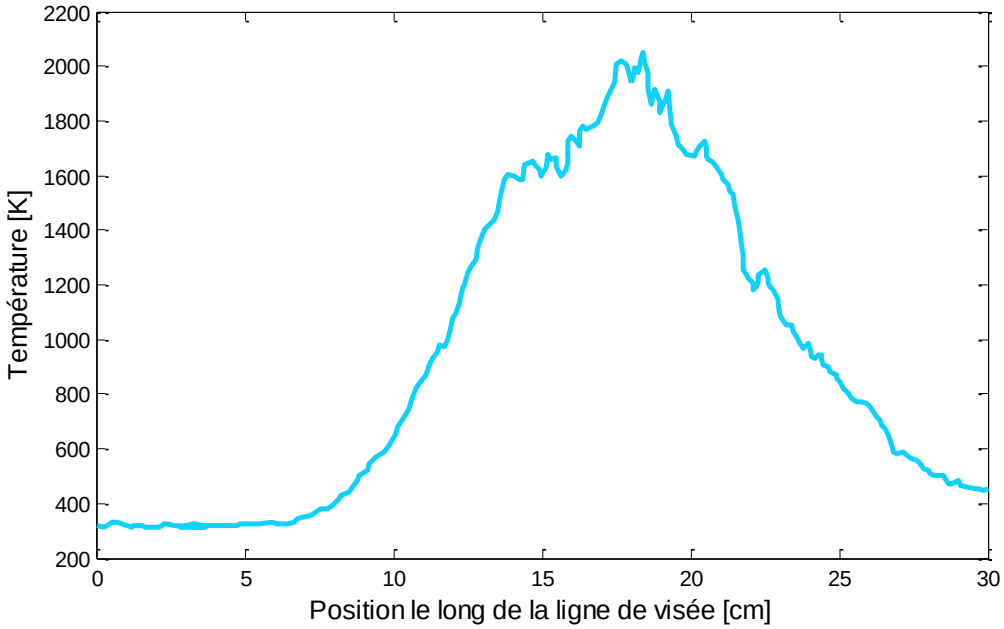


Figure IV-2 : Profil de température de la flamme hydrogène/Air mise en œuvre sur le brûleur de pré-mélange incliné.

Le profil de température est caractéristique des flammes de pré-mélange. La température est plus basse que celle d'une combustion stœchiométrique (2388K selon le calcul Chemkin avec les données thermodynamiques de Li 2003). Ceci s'explique par la richesse du mélange que nous avons augmentée afin d'augmenter la longueur de notre flamme. Nous ne pouvons contrôler la température par une mesure au thermocouple car même les thermocouples platine-rhodié ne résistent pas aux températures mises en jeu dans une réaction H_2/Air.

IV.A.2 Flamme Méthane/air inclinée

Une mesure a été menée sur une flamme méthane/air de diffusion inclinée. Nous visons dans la zone bleue de la base, ainsi la distance de parcours du laser au cœur de la flamme est comprise entre 5 et 8cm (voir photo Figure IV-3).



Figure IV-3 : photo de la flamme méthane/air de diffusion inclinée avec le passage du faisceau laser (flèche verte)

Nous obtenons le profil de température obtenu par la méthode LIDAR de la Figure IV-4 et le profil de température obtenu par une mesure au thermocouple de la Figure IV-5.

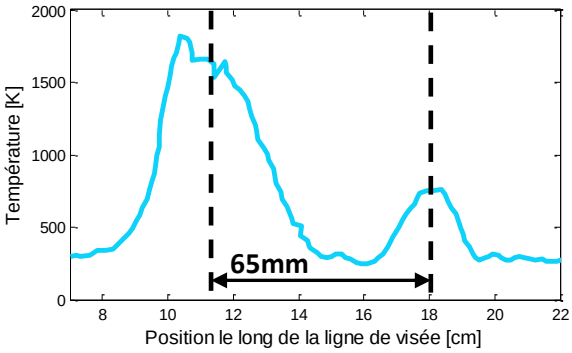


Figure IV-4 : Profil de température par mesure LIDAR

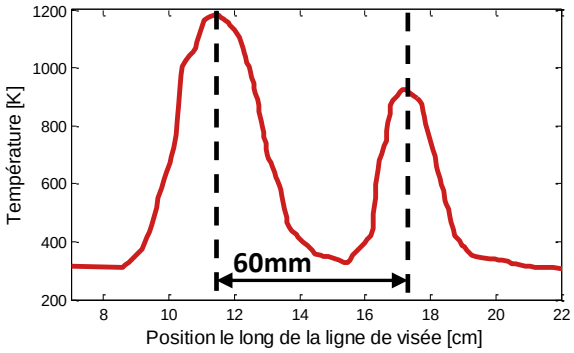


Figure IV-5 : Profil de température obtenu par thermocouple de type S

Nous remarquons la présence de deux pics. Le premier pic est plus élevé et plus large que le second dans les deux profils. La mesure au thermocouple sous-estime d'environ 400K la température obtenue par voie optique. Cette erreur est caractéristique des mesures par thermocouple. Cependant, nous observons le phénomène inverse concernant le second pic. Ceci s'explique par la résolution spatiale de la mesure par voie optique qui est de 5mm. En effet, la région de combustion en bordure de flamme est plus étroite qu'au niveau du bord d'attaque et la température est plus faible (comme le montre la mesure au thermocouple), ainsi la température est sous-estimée.

Illustration de l'erreur commise par un thermocouple dans un jet gazeux :

Considérons une flamme méthane/air régie dans les proportions stœchiométriques par l'équation chimique suivante :

$$CH_4 + 2O_2 + 8N_2 = CO_2 + 2H_2O + 8N_2 \qquad \textbf{Eq. IV-1}$$

La zone constituée des produits de combustion contient alors 18% d'eau. Les transferts de chaleur s'effectuent par convection, rayonnement et conduction. Dans un souci de simplicité, nous avons choisi de négliger la conduction au sein du thermocouple. Nous prenons donc en compte le transfert de chaleur par convection entre le gaz et le thermocouple, le rayonnement ambiant, le rayonnement du gaz et les pertes de chaleur par rayonnement (voir Figure IV-6).

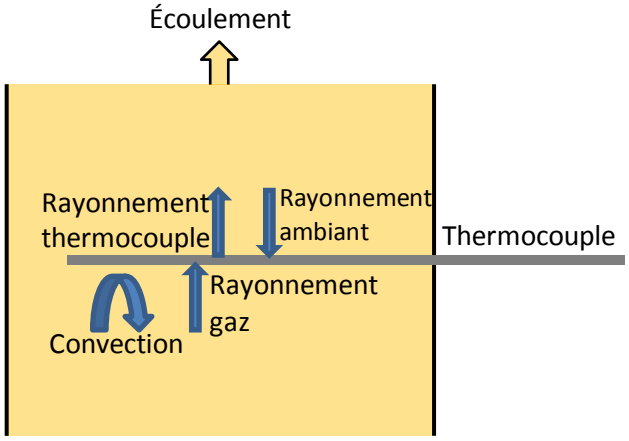


Figure IV-6 : schéma illustrant le bilan des flux de chaleur autour d'un thermocouple plongé dans un jet gazeux chaud.

Le bilan des flux d'énergie à l'équilibre thermique, s'écrit :

$$\varepsilon_{amb}\sigma T_{amb}^4 + \varepsilon_{H_2O}\sigma T_{gaz}^4 + h\left(T_{gaz} - T_{Thermo}\right) - \varepsilon_{thermo}\sigma T_{thermo}^4 = 0 \qquad \textbf{Eq. IV-2}$$

Avec : $\varepsilon_{amb}\ [s.u.]$ l'émissivité de la pièce, $\sigma = 5{,}67.10^{-8}\ [W.m^{-2}]$, $T_{amb}\ [K]$ la température de la pièce, $\varepsilon_{H_2O}\ [s.u.]$ l'émissivité totale de la vapeur d'eau, $T_{gaz}[K]$ la température du jet gazeux, $h\ [W.m^{-2}.K^{-1}]$ le coefficient de convection, $T_{Thermo}[K]$ la température du thermocouple et $\varepsilon_{thermo}\ [s.u.]$ l'émissivité du thermocouple.

Le facteur d'émission total d'une colonne de gaz de 2cm d'épaisseur à la pression atmosphérique et contenant 30% d'eau est d'environ 0,0024 [**36**]. On prend arbitrairement $\varepsilon_{amb} = 1$, $\varepsilon_{thermo} = 0{,}4$ et $T_{amb} = 293K$.

Dans ces conditions, pour des coefficients de convection de 200 $W.m^{-2}.K^{-1}$ et 50 $W.m^{-2}.K^{-1}$, la résolution numérique de l'équation Eq. IV-2 donne en fonction de la température du jet de gaz les écarts absolus de températures entre la température vraie du gaz et celle mesurée par le thermocouple suivants (Figure IV-7et Figure IV-8) :

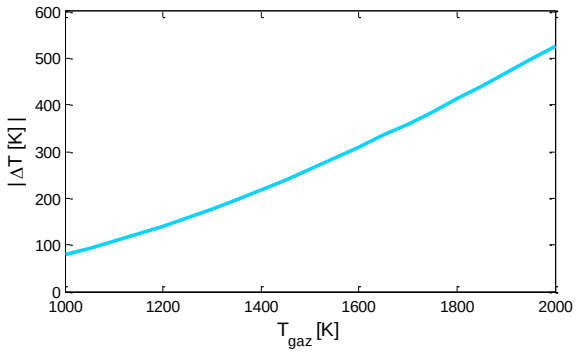


Figure IV-7 : Ecart de température absolue entre la température vraie et la température thermocouple dans un jet gazeux en fonction de se température pour un coefficient de convection h de 200 W.m^{-2}.K^{-1}.

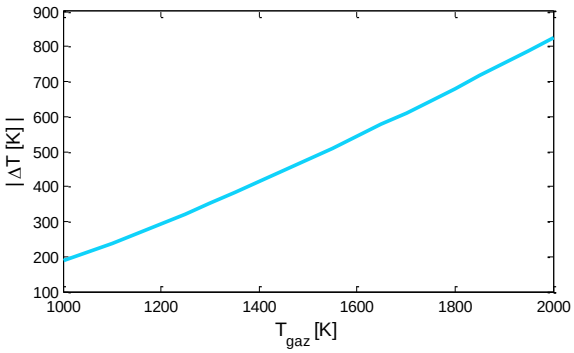


Figure IV-8 : Ecart de température absolue entre la température vraie et la température thermocouple dans un jet gazeux en fonction de se température pour un coefficient de convection h de 50 W.m^{-2}.K^{-1}.

A 1800K, l'écart de température est d'environ 400K pour h=200 W.m^{-2}.K^{-1} et il est d'environ 680K pour h=50 W.m^{-2}.K^{-1}. Ceci est en accord avec l'écart de température obtenue entre les premiers pics de températures entre la Figure IV-4 et la Figure IV-5.

IV.A.3 Flamme méthane/air sur brûleur rampe

Une mesure a été menée sur une flamme méthane/air de pré-mélange mise en œuvre sur un brûleur rampe de 15cm de long (voir photo Figure IV-9). Le débit en air est de 10l.min^{-1} et le débit en méthane est de 1,5l.min^{-1} (soit une richesse de 1,13).

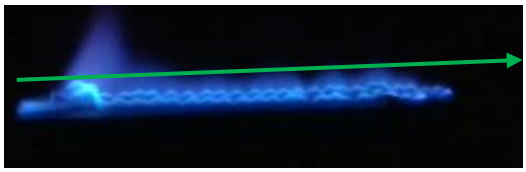


Figure IV-9 : Photo de la flamme de pré-mélange méthane/air mise en œuvre sur le brûleur rampe.

Le profil de température de la Figure IV-10 est obtenu par l'inversion de l'équation du LIDAR dont la méthode de traitement est présentée dans le chapitre III.A.3 de la page 83. Le profil d'entrée d'inversion correspond à l'initialisation du programme d'inversion et la courbe bleue correspond au profil de température issu de l'optimisation.

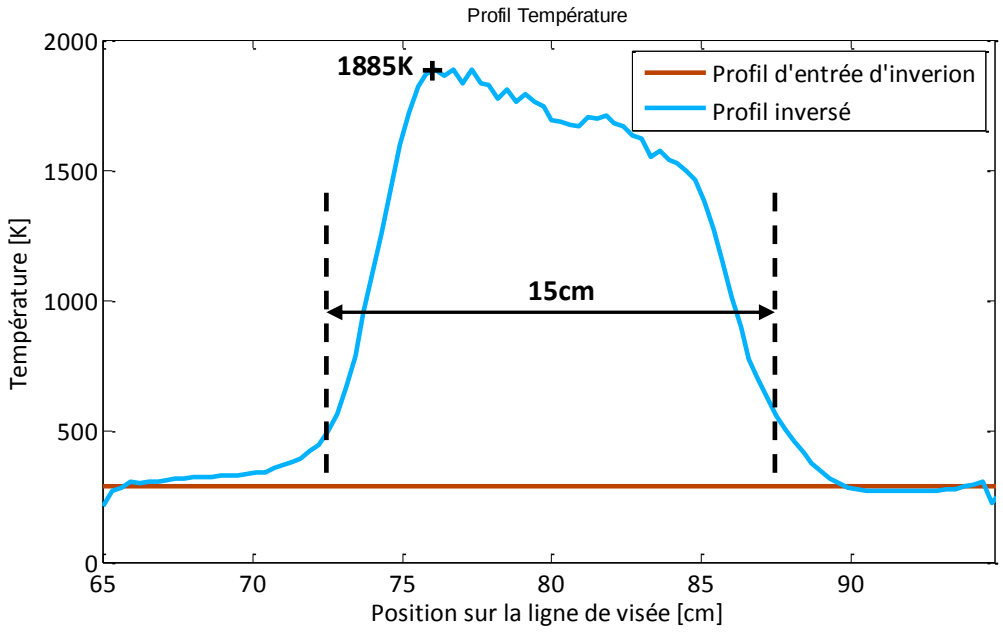


Figure IV-10 : Profil de température de la flamme méthane/Air mise en œuvre sur le brûleur rampe. Traitement effectué par l'inversion de l'équation du LIDAR.

La température maximale atteinte est de 1885K. La température adiabatique dans les mêmes conditions de combustion (richesse de 1,13) est de 2190K (calculée avec Gaseq). La largeur du profil de flamme correspond à la longueur du brûleur rampe, soit environ 15cm.

IV.A.4 Conclusion

L'analyse des profils de température de ces trois flammes aux configurations très différentes met en évidence la pertinence de la mesure LIDAR dans l'estimation du profil spatial de la température. En effet, aucune de ces trois flammes n'a un profil simple (gaussienne en particulier) et une inversion sans information quant à ces profils n'aurait pas de sens.

Les trois sections suivantes sont dédiées à des mesures couplées…

IV.B Gaz d'échappement d'un turboréacteur

Afin de tester le potentiel de notre méthode couplée pour l'industrie aéronautique, nous avons réalisé en commun avec Jérémy LEBEDINSKY une mesure sur les gaz d'échappement d'un turboréacteur de modélisme. La Figure IV-11 est une photo du turboréacteur que nous avons utilisé (modèle JetCat 100PX d'une poussée maximale de 100N). La Figure IV-12 est une thermographie infrarouge des raies d'émission du CO_2 qui nous a permis de placer la ligne de visée laser et celle de mesure d'émission de rayonnement dans une zone non turbulente.

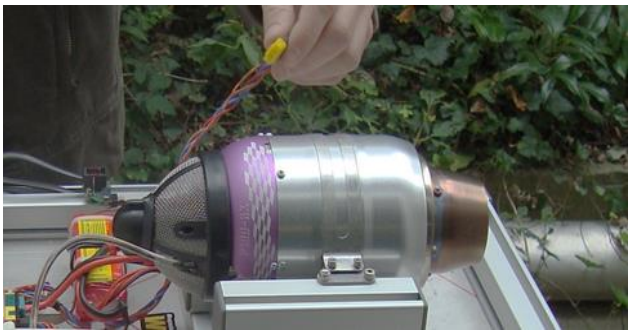


Figure IV-11 : Photo du turboréacteur modèle JetCat 100px.

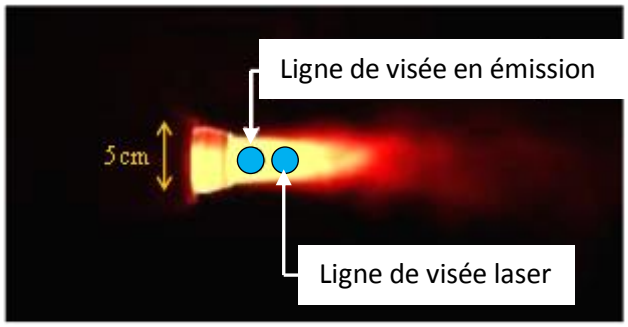


Figure IV-12 : Thermographie infrarouge des gaz d'échappement du turboréacteur obtenue par une caméra infrarouge dotée d'un filtre CO_2 avec la ligne de visée laser

Le schéma du dispositif expérimental est représenté sur la Figure IV-10. Le profil Lidar est obtenu en moyennant 100 signaux rétrodiffusés et le spectre est obtenu en faisant une moyenne sur 50 spectres. Les mesures sont effectuées l'une après l'autre en 5 minutes environ. La mesure de l'émission de rayonnement est effectuée en premier lieu. Ensuite, le miroir M3 est ôté pour laisser passer le faisceau laser. Un soin particulier doit être fourni à l'installation du banc expérimental car des réflexions sur les surfaces dures peuvent causer des dommages irréversibles à la photocathode de la caméra Streak. En outre, même si les réflexions spéculaires sont déviées afin qu'elles ne soient pas visibles par la caméra, les phénomènes de fluorescence peuvent se produire et surnager le signal rétrodiffusé. Une image de 2ns est acquise toutes les dix secondes. Par conséquent, les émissions continues (rayonnement de flamme, du soleil, des néons, etc. ...) ne perturbent pas la mesure.

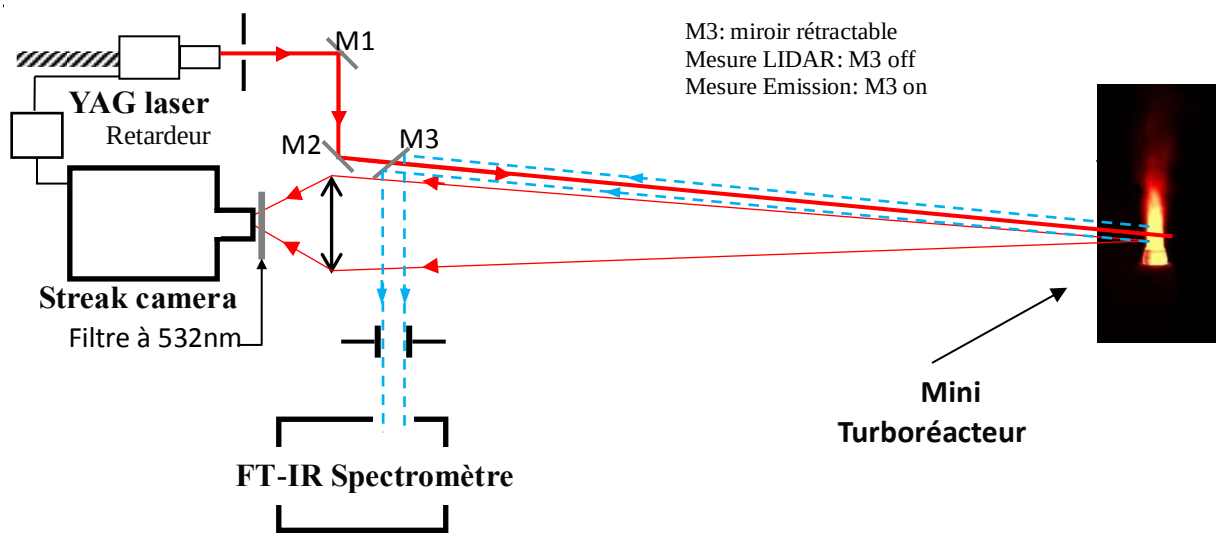


Figure IV-13 : Schéma du banc expérimental mis en œuvre pour la mesure des profils de température et concentration du turboréacteur de modélisme.

IV.B.1 Spectre démission du CO_2

Nous obtenons le spectre d'émission de rayonnement de la tête de bande du CO_2 suivant (Figure IV-14) :

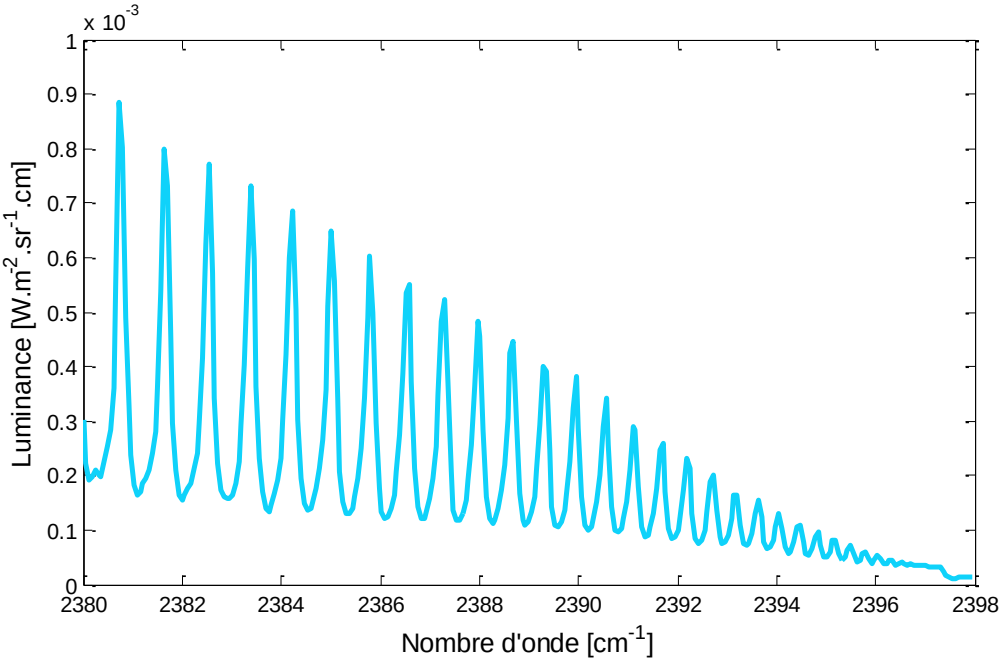


Figure IV-14 : Spectre d'émission de la tête de bande du CO_2 des gaz d'échappement du turboréacteur

IV.B.2 Mesure Lidar

La Figure IV-15 provient du signal rétrodiffusé d'une impulsion laser dans l'air et la Figure IV-16 provient du signal rétrodiffusé dans les gaz d'échappement du petit turboréacteur. Pour ces deux figures, l'axe horizontal correspond à la position spatiale du signal diffusé. L'axe vertical correspond à la position des photons rétrodiffusés sur la fente d'entrée de la caméra Streak. On observe sur la Figure IV-16 le creux de

diffusion dû à l'élévation de température - donc à la baisse de la concentration totale - au passage des gaz d'échappement.

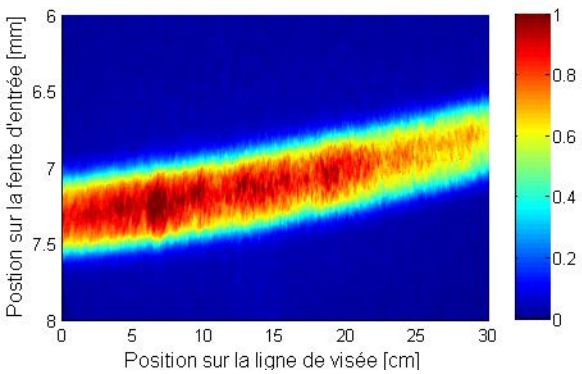


Figure IV-15 : Image de diffusion d'une seule impulsion laser dans l'air obtenue par la caméra Streak configurée avec une fenêtre temporelle de 2ns.

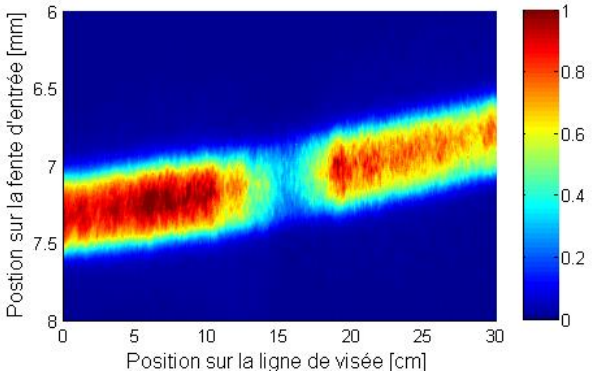


Figure IV-16 : Image de diffusion d'une seule impulsion laser traversant les gaz d'échappement du turboréacteur obtenue par la caméra Streak configurée avec une fenêtre temporelle de 2ns.

A partir de ces deux images (Figure IV-15 et Figure IV-16), nous déterminons le profil de diffusion dans les gaz d'échappement et dans l'air (Figure IV-17) selon le traitement décrit au chapitre III.C.1. Nous y observons à nouveau le creux de diffusion repéré sur la Figure IV-16.

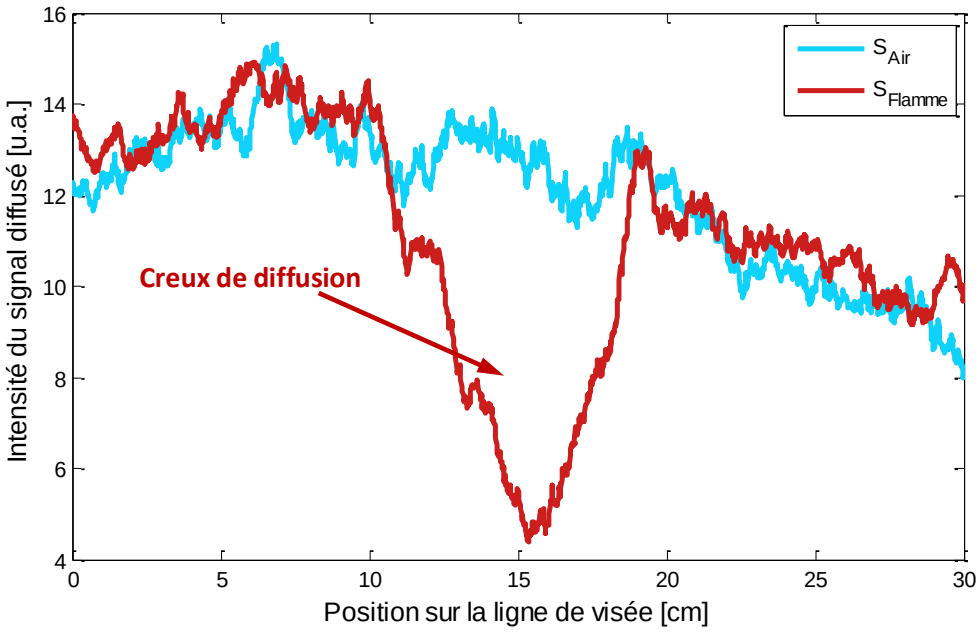


Figure IV-17 : Signal de rétrodiffusion intégré le long de l'axe spatial associé à la fente d'entrée de la caméra Streak pour une impulsion laser traversant la flamme (courbe rouge) et l'air (courbe bleue).

Les profils de diffusions de la Figure IV-17 permettent de déterminer le profil de température Lidar (Figure IV-18) en appliquant le calcul de la relation Eq. III-8.

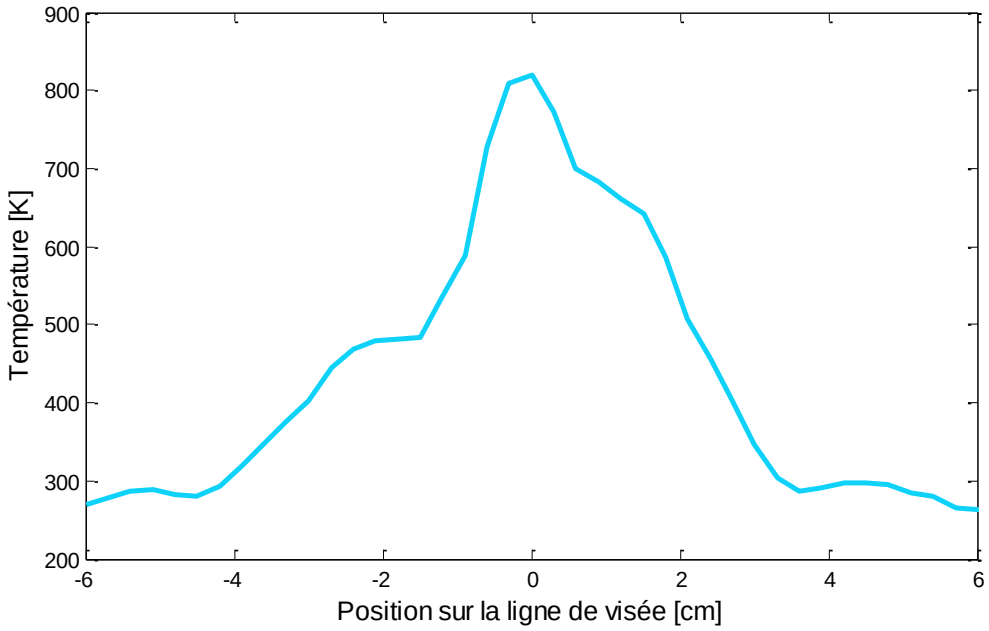


Figure IV-18 : Profil de température Lidar obtenu sur les gaz d'échappement du turboréacteur

IV.B.3 Résultats

Nous avons choisi d'inverser l'équation du transfert radiatif à partir du spectre de la tête de bande du CO_2 (Figure IV-14) avec d'une part une paramétrisation gaussienne et d'autre part une paramétrisation avec le profil de référence Lidar afin de comparer les résultats des deux méthodes. En inversant sur l'intégralité de la tête de bande du CO_2, la correspondance (calculée selon l'équation Eq. III-43) entre le spectre mesuré et les spectres inversés est de 56% pour la paramétrisation avec le profil de référence Lidar et de 69% avec la paramétrisation gaussienne. Les spectres ainsi obtenus sont très éloignés du spectre mesuré (voir Figure IV-19). En particulier, l'erreur relative sur J_2 est de 4,2% et 255% sur J_1 entre le spectre mesuré et le spectre issu de l'inversion avec la paramétrisation gaussienne. Dans le cas de la paramétrisation avec le profil de référence, l'erreur relative sur J_2 est de 12% et 558% sur J_1.

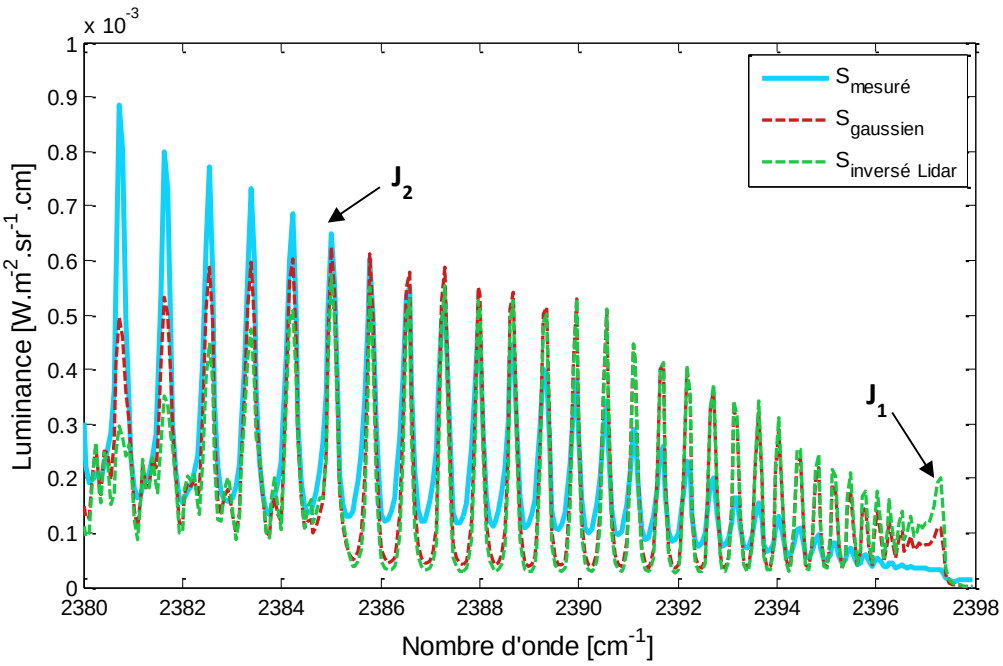


Figure IV-19 : Spectres d'émission de l'intégralité du domaine spectrale de la tête de bande du CO_2. $S_{mesuré}$ correspond à la mesure, $S_{gaussien}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation gaussienne et $S_{inversé\ lidar}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation avec la courbe de référence.

Le thermocouple placé en sortie de tuyère indique une température de 788K (voir Figure IV-20).

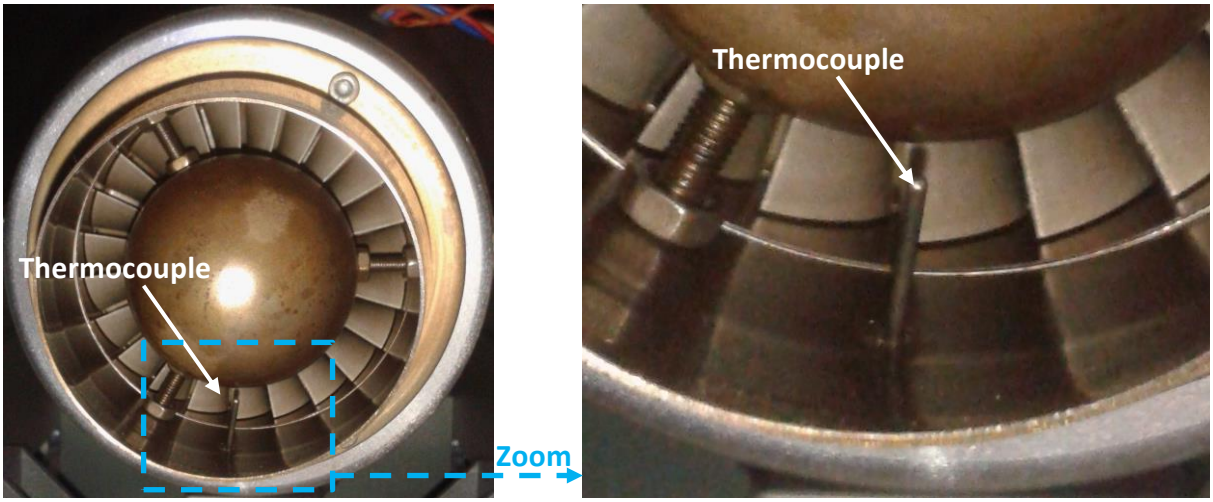


Figure IV-20 : Photo de la tuyère de la petite turbine avec le thermocouple.

Nous obtenons alors des profils de températures dont les valeurs maximales sont bien au-dessus des valeurs maximales atteignables par les gaz d'échappement (voir Figure IV-21) dont une estimation est donnée par la mesure du thermocouple interne.

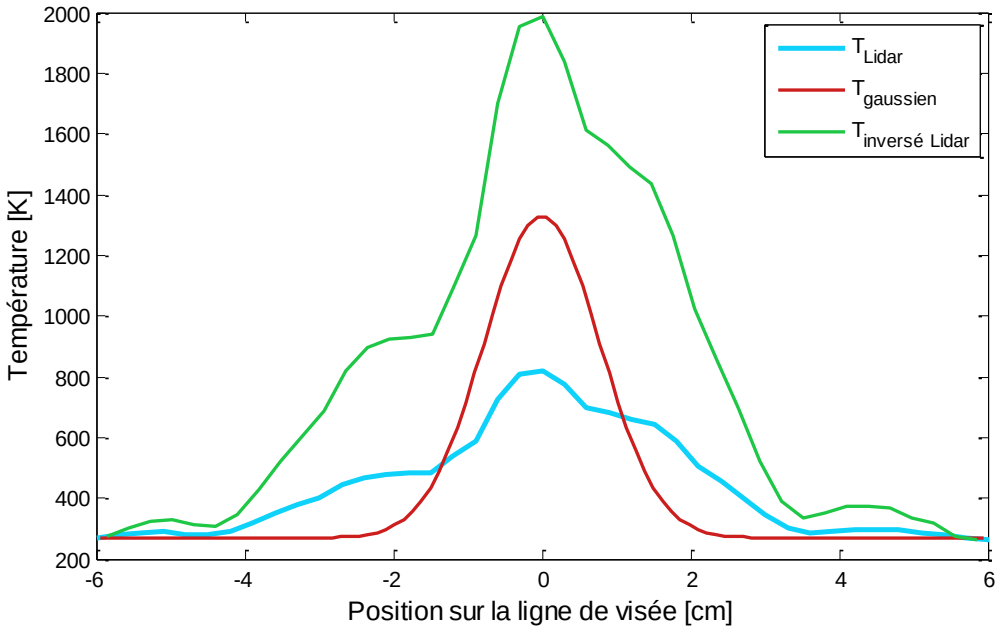


Figure IV-21 : Profils de températures Lidar (courbe bleue), profil inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte) en prenant la tête de bande entre 2380cm^{-1} et 2400cm^{-1}.

Nous avons étudié l'influence du domaine spectral pris en compte dans l'inversion sur les profils obtenus et la correspondance spectrale qui en sort. Nous faisons une inversion avec une paramétrisation gaussienne et avec une paramétrisation avec la courbe de référence Lidar pour des domaines spectraux d'émission du CO_2 dont nous augmentons la valeur de la borne inférieure. Nous la faisons varier de 2380cm^{-1} à 2396cm^{-1}. La Figure IV-22 ci-après représente la correspondance des spectres issus des inversions avec le spectre mesuré en fonction de la borne inférieure (avec un pas de 0,5cm^{-1}) du domaine spectrale pris en compte dans l'inversion. On observe un maximum situé à 2393,5cm^{-1} pour la paramétrisation gaussienne (courbe bleue) avec une correspondance de 80,2% et un maximum situé à 2394cm^{-1} pour la paramétrisation avec le profil de référence Lidar (courbe rouge) avec une correspondance de 82,5%.

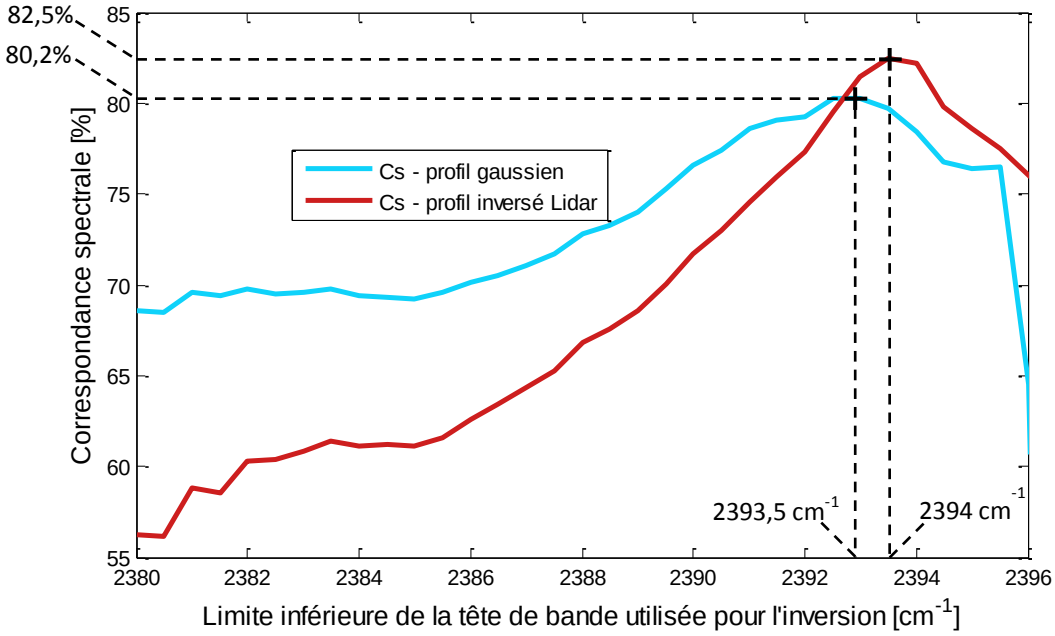


Figure IV-22 : Niveau de correspondance entre le spectre mesuré et les spectres inversés en fonction de la borne inférieure du spectre de la tête de bande du CO_2 utilisé pour l'inversion des données spectroscopiques.

Les profils de températures issus des inversions donnant la meilleure correspondance spectrale pour chacune des deux paramétrisations sont présentés sur la Figure IV-23. Les températures maximales atteintes par les profils gaussien et de référence Lidar ont un écart de 13K, soit un écart relatif de 1,5%. L'écart relatif entre la température Lidar maximale et la température maximale inversée issu de la paramétrisation avec la courbe de référence Lidar est de 5%. L'écart relatif entre la température mesurée par le thermocouple et la température maximale inversée issu de la paramétrisation avec la courbe de référence Lidar est de 9,5%. Ces températures sont cohérentes par rapport à la mesure au thermocouple réalisée au centre des gaz d'échappement qui donne 800K.

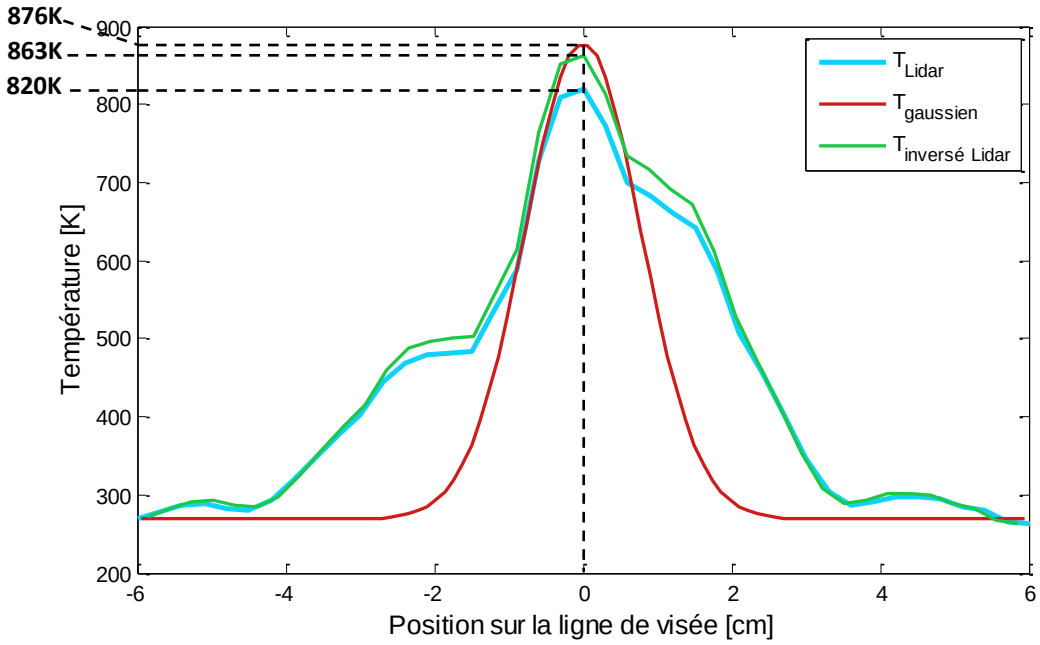


Figure IV-23 : Profils de températures Lidar (courbe bleue), profil inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte).

En revanche, les profils de fraction molaire en CO_2 issus des deux inversions présentent tous les deux un maximum de 100%. La fraction maximale que l'on peut obtenir en CO_2 est de 13,1% (voir annexe VI.G page 201). Le résultat de l'inversion n'a donc pas de sens.

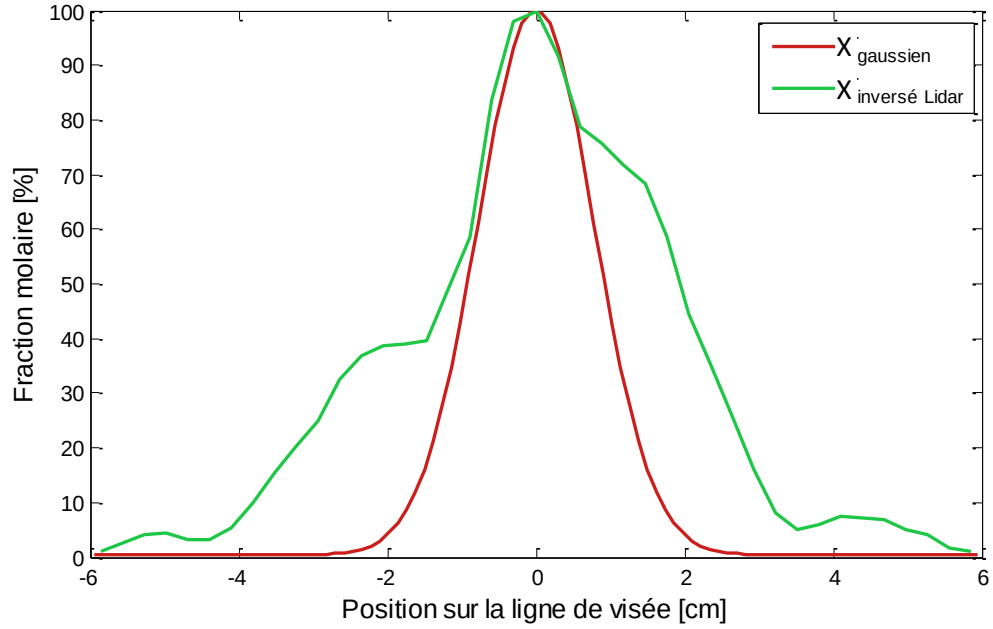


Figure IV-24 : Profils de fractions molaires inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte).

Les spectres issus de l'inversion correspondent à 80,2% et 82,5% au spectre mesuré respectivement pour la paramétrisation gaussienne et avec le profil de référence Lidar. Le spectre issu de l'inversion avec le profil Lidar correspond davantage au spectre mesuré sans différence notable sur J_1 avec le spectre issu de l'inversion avec le profil gaussien.

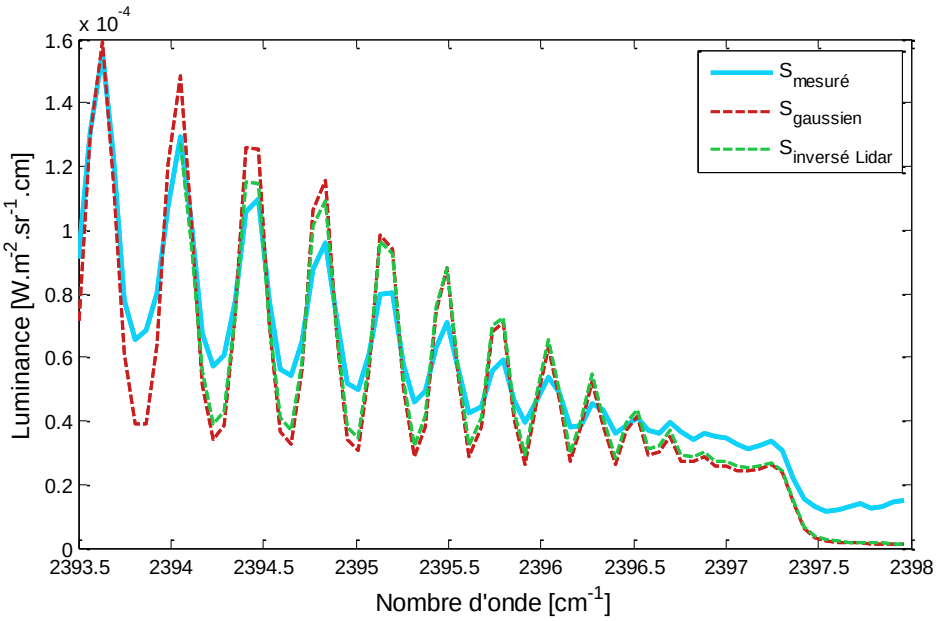


Figure IV-25 : Spectres d'émission de la tête de bande du CO_2. $S_{mesuré}$ correspond à la mesure, $S_{gaussien}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation gaussienne et $S_{inversé\ lidar}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation avec la courbe de référence.

IV.B.4 Conclusions

La première observation est qu'il existe ici un domaine spectral optimal qui permet d'obtenir des correspondances de spectres maximales entre ceux issus de l'inversion et le spectre mesuré. En conservant la borne supérieure de 2400cm^{-1}, la borne inférieure optimale est de 2394cm^{-1} pour la paramétrisation avec le profil de référence Lidar et de 2393,5cm^{-1} pour la paramétrisation gaussienne.

En considérant le domaine spectral optimal, les pics de température sont respectivement de 876K et 863K pour le profil gaussien et le profil avec courbe de référence Lidar, soit un écart relatif de 1,5%. Ces températures sont en accord avec la mesure thermocouple réalisée au centre des gaz d'échappement sur la ligne de visée laser qui donne 800K. En effet, les thermocouples vont sous-estimer la température à cause des pertes par rayonnement et conduction. Enfin, les températures maximales obtenues selon les deux paramétrisations sont supérieures à la température maximale Lidar. Ceci est cohérent car la section efficace moyenne est considérée égale à celle de l'air alors qu'elle est supérieure à celle de l'air à cause de la présence du CO_2 qui a une section efficace 2,38 fois supérieure à celle de l'air.

Les deux paramétrisations donnent des fractions molaires incohérentes puisqu'elles atteignent toutes les deux 100%. Ceci provient de la faible sensibilité de l'algorithme d'inversion à la fraction molaire.

Des essais d'inversion ont été réalisés en faisant varier la valeur de la borne supérieure du domaine spectral de la tête de bande du CO_2. La fraction en CO_2 est supérieure à celle atteignable dans le cas de la paramétrisation gaussienne mais elle est de 2% dans le cadre de la paramétrisation avec le profil de référence. En revanche, les profils de températures présentent des maxima de 1500K et 2700K respectivement. Ces températures n'ont pas de sens puisque bien supérieures aux températures mesurées par les thermocouples.

Ces différentes observations nous conduisent à nous interroger sur deux facteurs :

- Quelles sont les limites de validité du modèle direct d'émission de rayonnement et en particulier, quelles sont les limites de validité de la base données HITRAN-08 ?
- La tête de bande du CO_2 présente-t-elle des effets thermométriques et de concentration tels qu'une partie du spectre serait plus sensible à la fraction molaire et l'autre plus sensible à la température ? Des essais pourraient être réalisés dans ce sens et si tel est le cas, une évolution du programme d'inversion pourrait être envisagée afin de prendre en considération cette caractéristique de la tête de bande du CO_2.

Les spectres issus des deux inversions correspondent à 80,2% au spectre mesuré pour le profil gaussien et à 82,5% au spectre mesuré pour le profil avec courbe de référence. Les correspondances sont proches mais on observe une meilleure correspondance entre le spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation avec courbe de référence Lidar qu'avec une paramétrisation gaussienne. Ceci conforte le gain apporté par la mesure Lidar.

IV.C Flamme Méthane/Air double bosse

Nous avons testé notre méthode sur une flamme CH_4/Air mise en œuvre par deux bruleurs (voir Figure IV-26). Les deux flammes sont de pré-mélange et la ligne de visée se situe à 20mm au-dessus des brûleurs. Le premier bruleur est un bruleur de pré-mélange avec une arrivée d'air et une arrivée de combustible indépendantes alors que le second bruleur est un bec Bunsen, puisant l'air ambiant.

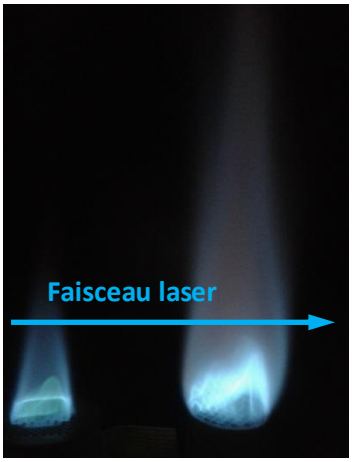


Figure IV-26 : Photo de la double flamme de méthane/Air étudiée

Le montage mis en œuvre est celui de la Figure III-50. Nous avons utilisé la caméra Streak, le laser picoseconde Ekspla ainsi que le spectromètre à transformée de Fourier nous autorisant une résolution spectrale de 0,125cm^{-1}. Le traitement des données est effectué selon le protocole défini aux paragraphes III.C.1 et III.C.2. Afin d'augmenter le rapport signal sur bruit, nous faisons une moyenne sur 50 spectres d'émission et sur 10 mesures Lidar. Les mesures d'émission de rayonnement et Lidar sont effectuées l'une après l'autre selon la même ligne de visée.

IV.C.1 Spectre d'émission du CO_2

Nous obtenons le spectre d'émission du CO_2 de la Figure IV-27.

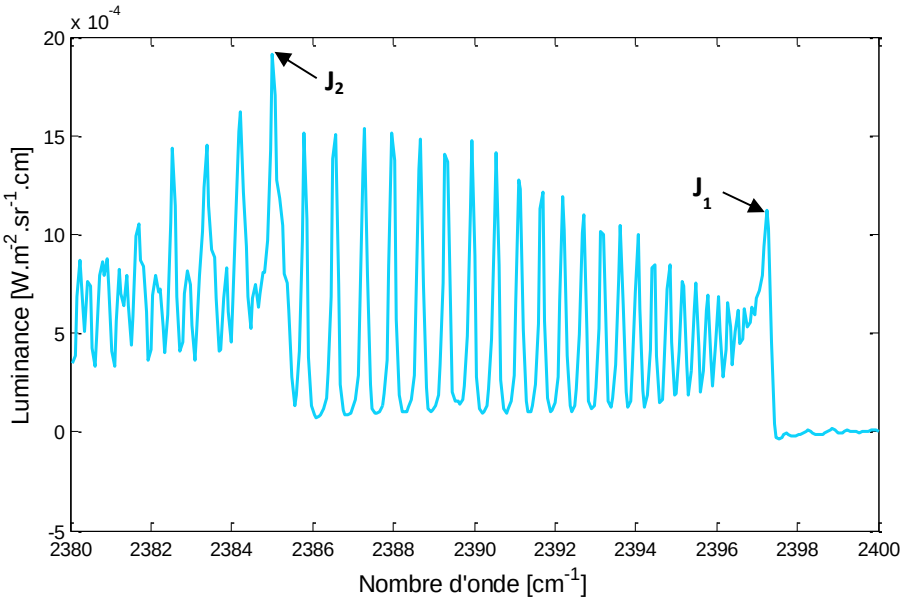


Figure IV-27 : Spectre d'émission de la tête de bande du CO_2 de la double flamme CH_4/Air

IV.C.2 Mesures Lidar

La Figure IV-28 provient du signal rétrodiffusé d'une impulsion laser traversant les deux flammes. L'axe horizontal correspond à la position spatiale du signal diffusé. L'axe vertical correspond à la position des photons rétrodiffusés sur la fente d'entrée de la caméra Streak. On y observe les deux creux de diffusion dus à l'élévation de température - donc à la baisse de la concentration totale - au passage des flammes.

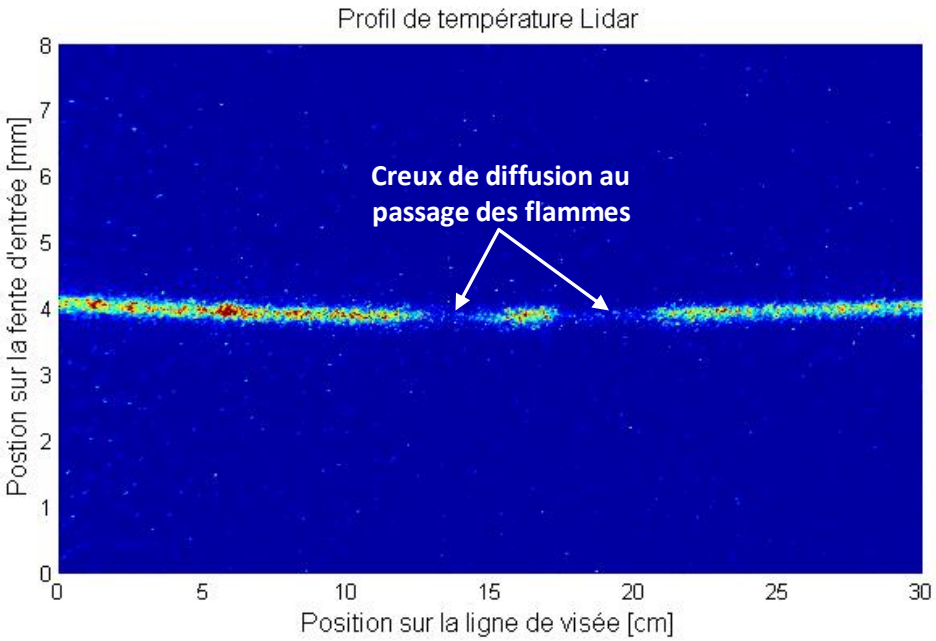


Figure IV-28 : Image de diffusion d'une seule impulsion laser traversant la flamme obtenue par la caméra Streak configurée avec une fenêtre temporelle de 2ns.

A partir de cette image (Figure IV-28), nous déterminons le profil de diffusion dans la flamme (Figure IV-29) selon le traitement décrit au chapitre III.C.1. Nous y observons à nouveau les deux creux de diffusions repérés sur la Figure IV-28. Le profil de référence est déterminé à partir du signal rétrodiffusé dans l'air en suivant le même traitement (Figure IV-29).

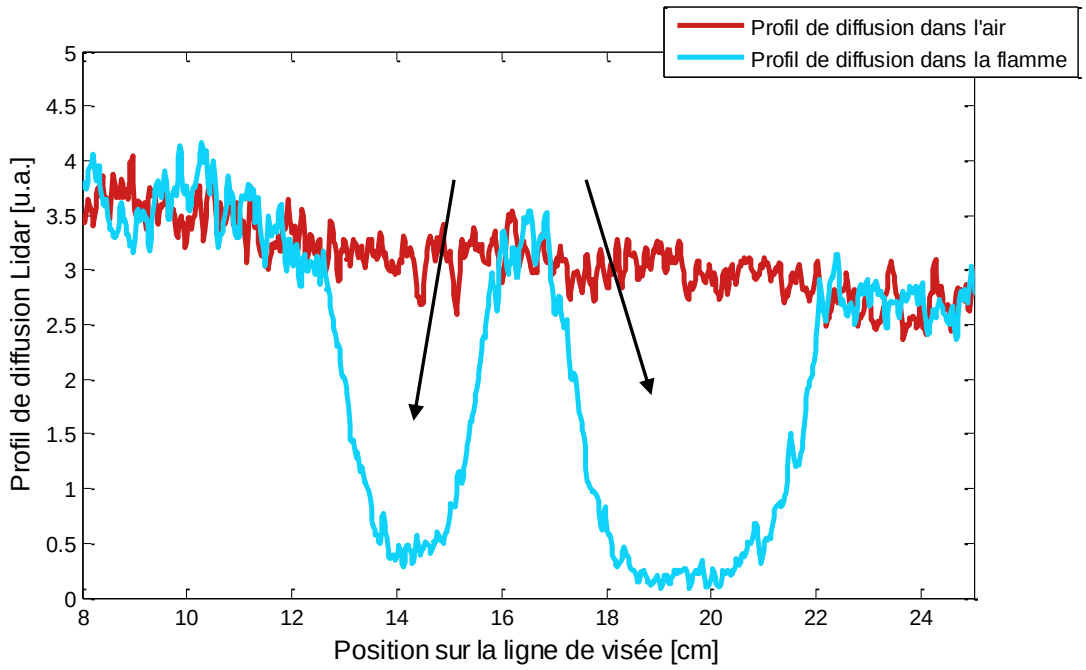


Figure IV-29 : Signal de rétrodiffusion intégré le long de l'axe spatial associé à la fente d'entrée de la caméra Streak pour la moyenne des impulsions laser traversant la flamme (courbe bleue) et l'air (courbe rouge).

Les profils de diffusions de la Figure IV-29 permettent de déterminer le profil de température Lidar (Figure IV-30) en appliquant le calcul de la relation Eq. III-8.

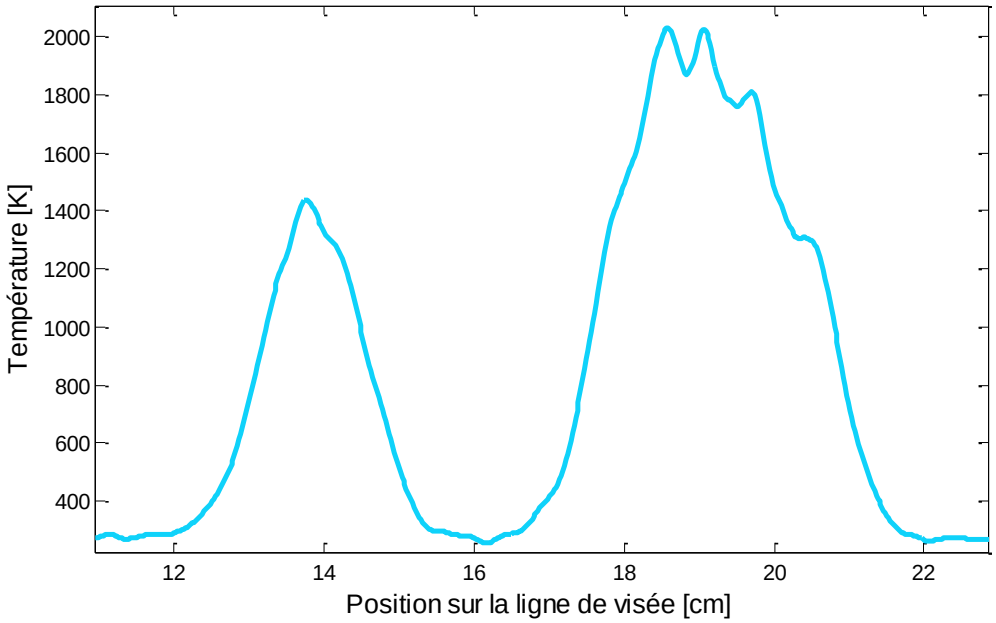


Figure IV-30 : profil de température Lidar.

IV.C.3 Résultats

A partir du profil de température Lidar (Figure IV-30) et du spectre d'émission du CO_2 (Figure IV-27), nous effectuons une inversion avec une paramétrisation gaussienne et une inversion avec la courbe de référence. Nous avons choisi les points de contrôle A, B, C. Les profils de températures issus de ces inversions sont présentés Figure IV-31.

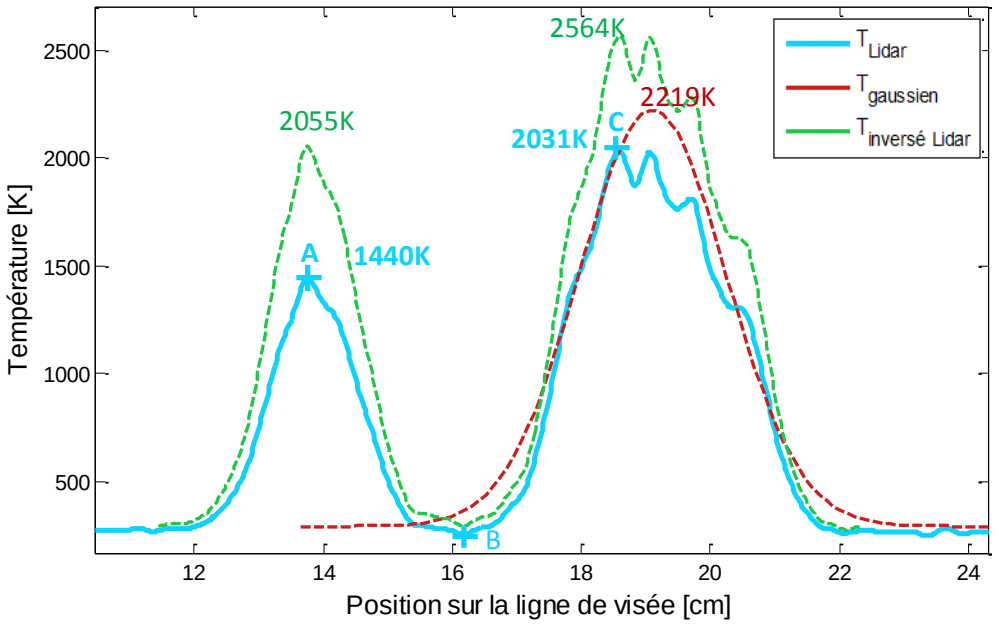


Figure IV-31 : Profil de température Lidar (courbe bleue), profil inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte).

Les profils de fraction molaires en CO_2 sont présentés Figure IV-32.

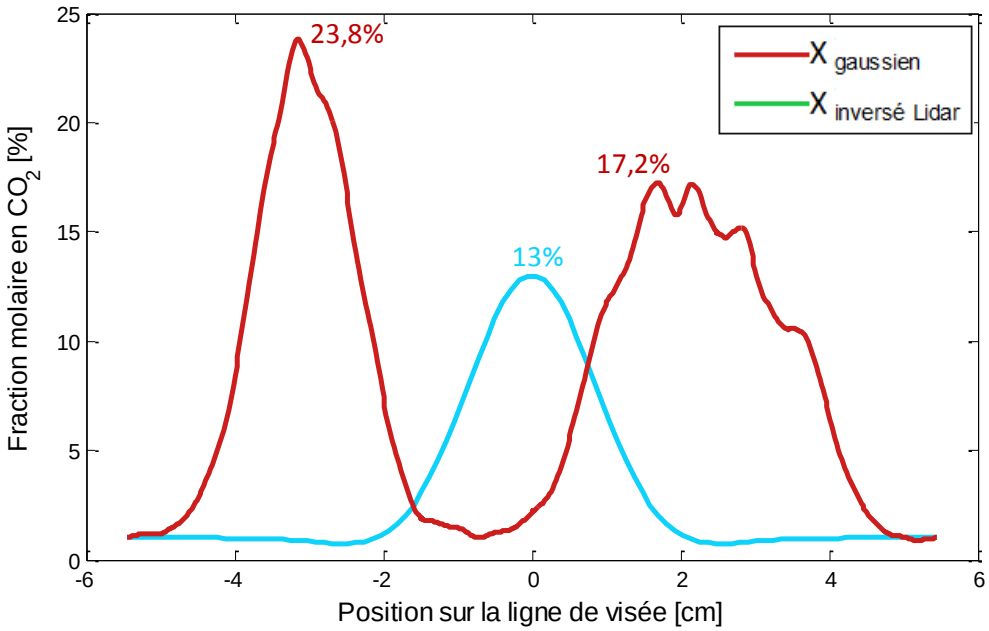


Figure IV-32 : Profils de fractions molaires inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe bleue) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe rouge).

Enfin, la Figure IV-33 ainsi que la Figure IV-34 montrent le spectre mesuré avec les spectres issus des deux inversions.

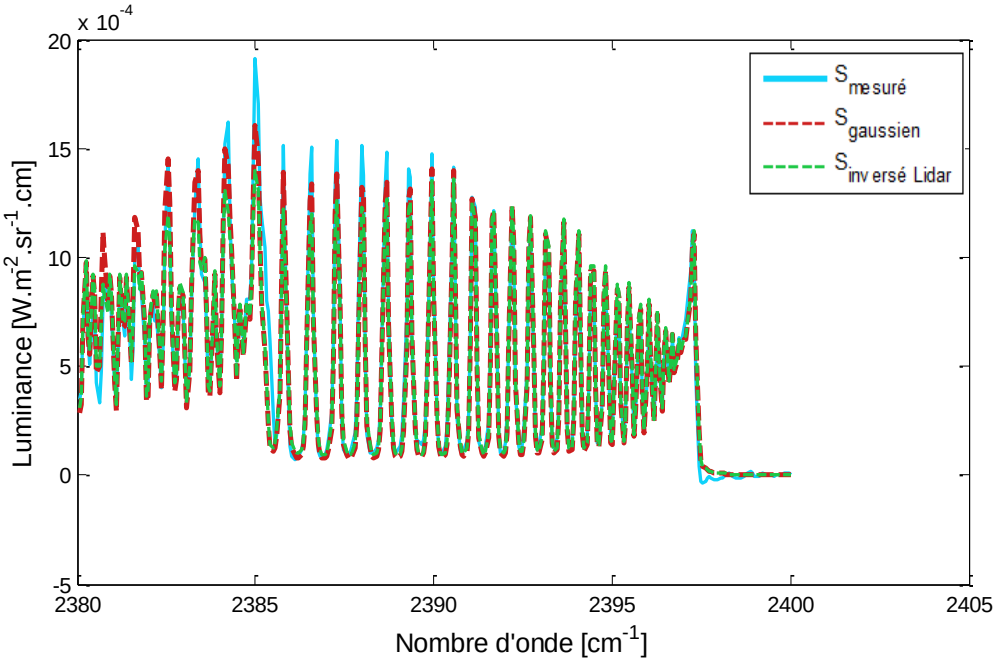


Figure IV-33 : Spectres d'émission de la tête de bande du CO_2. $S_{mesuré}$ correspond à la mesure, $S_{gaussienne}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation gaussienne et $S_{référence}$ correspond au spectre issu de l'inversion avec une paramétrisation avec la courbe de référence.

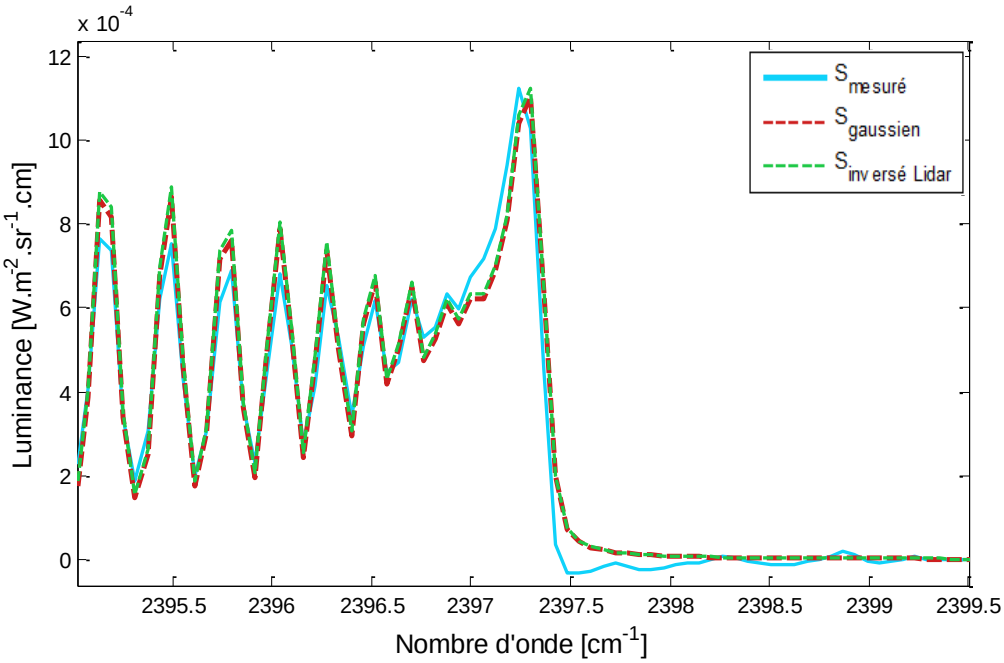


Figure IV-34 : zoom sur une portion du spectre de la tête de bande du CO_2 de la Figure IV-33

IV.C.4 Conclusions

L'inversion avec le profil gaussien nous donne un pic de température de 2219K ce qui est supérieur à la température Lidar maximale. Cette observation confirme la sous-estimation de la température par la méthode Lidar. Le profil gaussien correspond très bien au second pic de température du profil Lidar. En effet, la luminance étant très sensible aux températures les plus élevées, le programme d'inversion convergera naturellement vers le pic de plus haute température. La température maximale du profil gaussien est surestimée puisqu'elle est à 5K près égale à la température adiabatique de flamme pour un mélange stœchiométrique (2226K).

Le profil de température obtenu suite à l'inversion avec profil de référence présente deux pics de températures. L'écart sur les températures maximales entre le profil gaussien et le profil avec courbe de référence est de 13,5% et il est de 20,7% entre le pic de température du profil Lidar et du profil inversé avec courbe de référence (point C). Il est de 29,9% au niveau des pics de température du point A. La température maximale du premier pic (point A) croit plus que celle du second en sortie d'inversion car la dimension de la première flamme est plus petite que celle de la seconde. La résolution spatiale de 5mm induite par la durée de l'impulsion laser du Lidar a pour conséquence de sous-estimer davantage la température en la moyennant sur la largeur de l'impulsion (voir paragraphe III.A.2 pour plus d'information à ce sujet).

Enfin, la température obtenue sur la première flamme à l'issu de l'inversion est vraisemblable alors que la température obtenue pour le second est nettement au-dessus de la température adiabatique. Plusieurs facteurs peuvent expliquer cette surestimation de la température :

- L'air ambiant introduit dans les réactifs par le bec bunsen peut contenir des éléments perturbant la mesure (CO_2 notamment) ;
- La présence de particules (visibles à l'œil lors de l'expérience) peut également être une cause de perturbation de la mesure ;
- Enfin, les imperfections du modèle et de la base de données peuvent conduire à des erreurs.

Avec plus de temps disponible, une étude approfondie des facteurs d'erreurs dans le résultat pourrait être entreprise. En particulier, il serait nécessaire de mettre au point un banc expérimental avec deux bruleurs identiques, de dimensions plus importantes (diamètre supérieur à 3cm) afin de ne plus être limités par la résolution spatiale du Lidar. Les flammes mises en œuvre sur ces bruleurs doivent être maitrisées avec des débitmètres pour chaque gaz introduit.

Les deux paramétrisations donnent des fractions molaires supérieures aux fractions molaires maximales obtenues dans le contexte d'une combustion adiabatique dans les proportions stœchiométriques. Ceci provient de la faible sensibilité de l'algorithme d'inversion à la fraction molaire. Une étude plus approfondie sur les limites de la méthode à déterminer les profils de fraction molaire s'impose. En particulier, il faudrait mettre au point un banc d'essai sur lequel les profils de fractions molaires sont connus et maitrisables.

Les spectres issus des deux inversions correspondent à 85,6% au spectre mesuré pour le profil gaussien et à 83,8% au spectre mesuré pour le profil avec courbe de référence.

La différence entre les deux spectres inversés est faible comparée à la différence entre les profils de températures et fractions molaires (profil gaussien ou fidèle au profil de référence). Ceci illustre la limite de la méthode de mesure par émission de rayonnement seule, adaptée aux profils de températures et fractions molaires simples (avec un seul pic, gaussiens en particulier). Dès lors que le profil est plus complexe (plusieurs maxima), une première estimation du profil par méthode LIDAR est indispensable.

IV.D Flamme de statoréacteur (MBDA)

L'objectif de cette campagne de mesure est de caractériser les profils de température et concentration dans la flamme d'un statoréacteur expérimental mis en œuvre sur le site de MBDA à Bourges. La campagne de mesure s'est déroulée entre le 04 et le 14 Novembre 2014. Les essais ont été réalisés les 12 et 13 Novembre. Les deux figures suivantes (Figure IV-35 et Figure IV-36) sont des vues d'ensembles réalisées sous Catia.

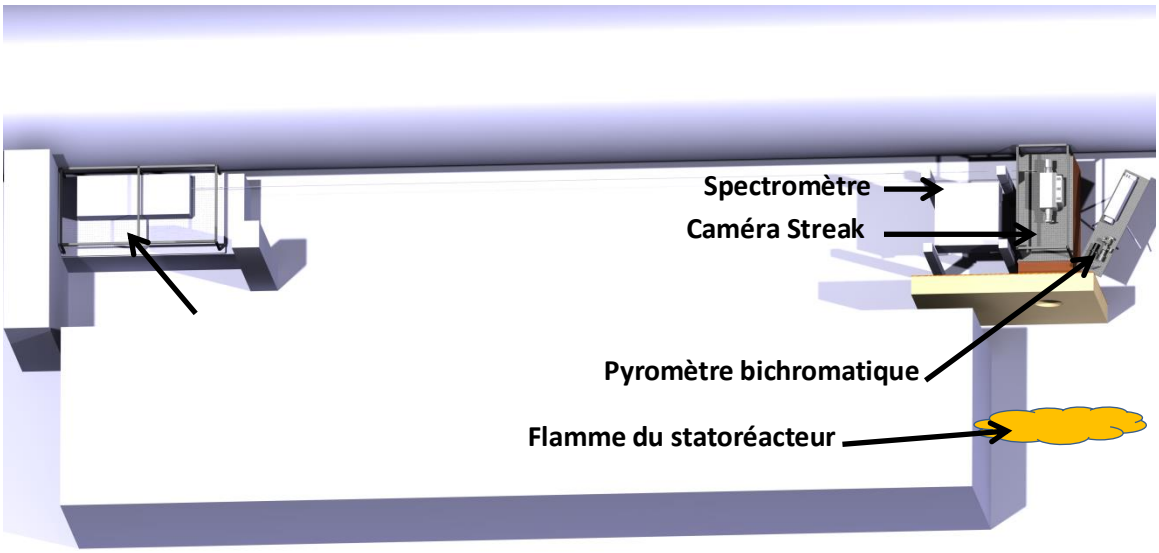


Figure IV-35 : plan Catia de l'installation des différents appareillages sur le banc expérimental

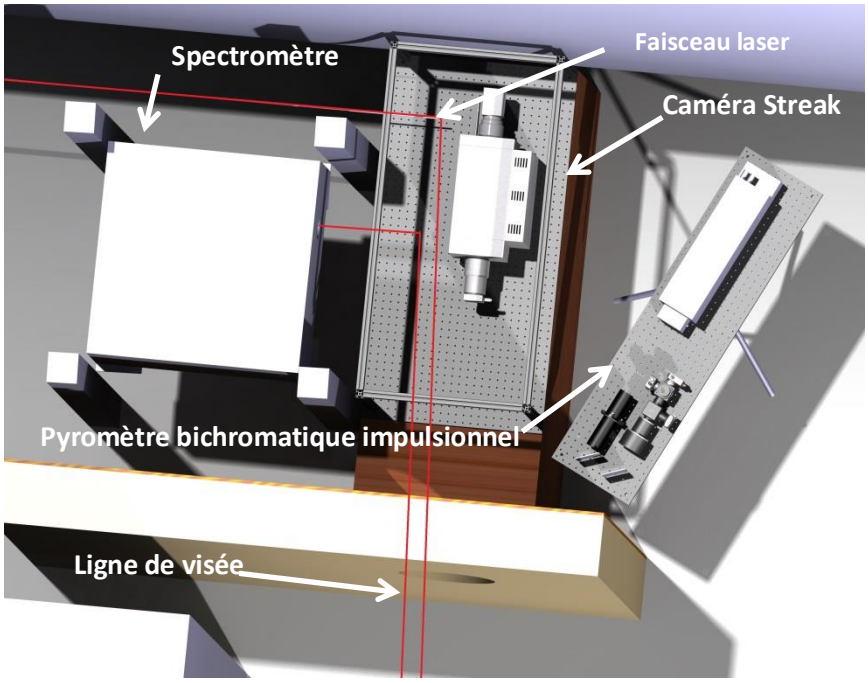


Figure IV-36 : Plan Catia sur les appareillages de détection mis en œuvre sur le banc expérimental.

Trois appareillages ont été mis en œuvre simultanément (voir la photo Figure IV-37) :

- Un spectromètre à transformée de Fourier (résolution spectrale maximale : 0,125cm^{-1}) afin d'obtenir les spectres de la flamme dans le proche infrarouge et plus particulièrement la gamme spectrale de la tête de bande du CO_2 (2380-2400cm^{-1}) ;
- Un Lidar (laser YAG picoseconde et caméra Streak) afin d'obtenir le profil de température de la flamme le long de la ligne de visée du laser ;
- Un pyromètre bichromatique impulsionnel, afin d'obtenir la température de paroi de la sortie de ligne [**42**].

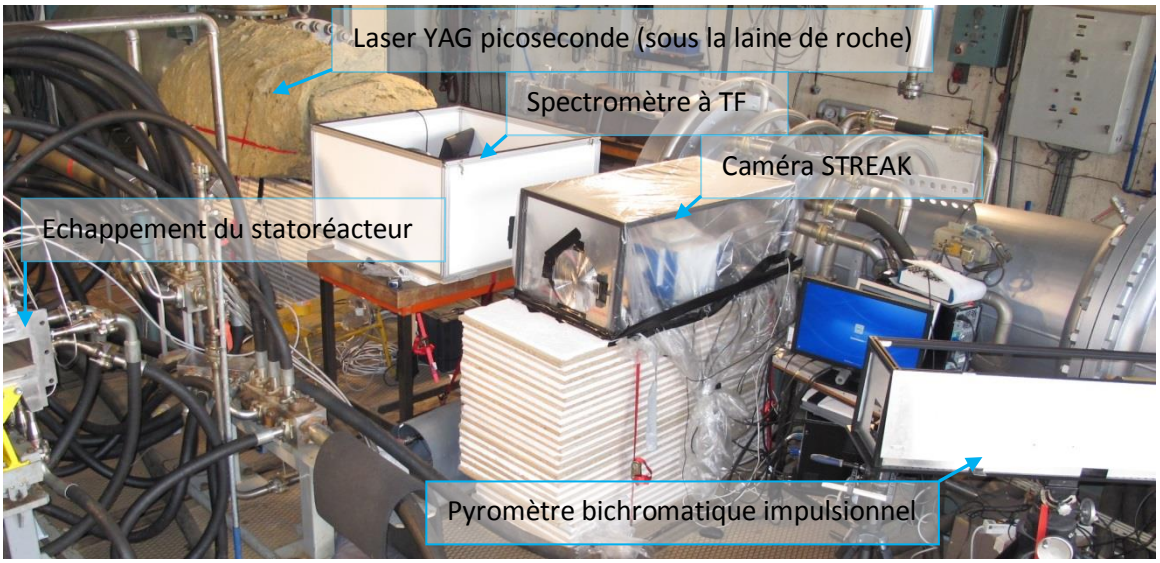


Figure IV-37 : Photo des appareillages mis en œuvre sur le banc statoréacteur MBDA.

Dans la première partie nous traitons de la méthode utilisée pour isoler du bruit et vibrations du sol nos appareils. Dans la seconde partie nous présentons les résultats des mesures des trois appareillages.

IV.D.1 Banc de mesures

La Figure IV-38 est un schéma du banc de mesure mis en œuvre pour la caractérisation du profil de température et concentration de la flamme du statoréacteur ainsi que la détermination de la température de la paroi.

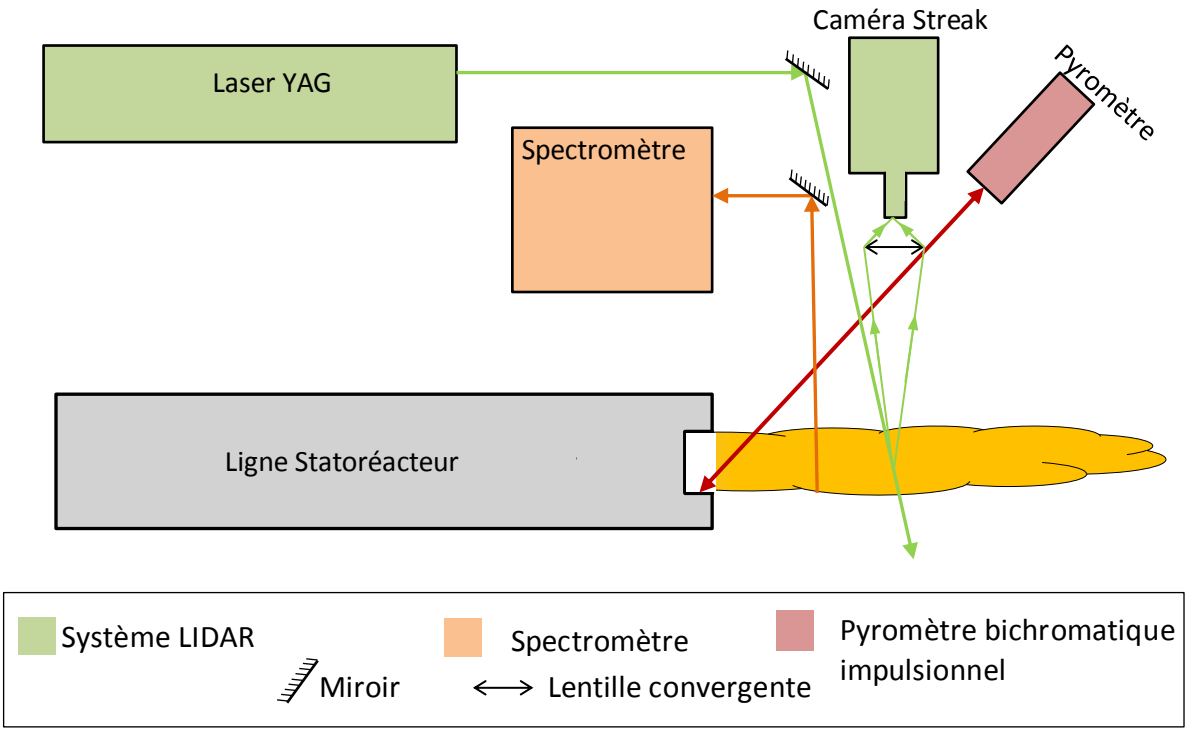


Figure IV-38 : Schéma du banc de mesure mis en oeuvre

IV.D.2 Spécificités acoustiques de l'environnement de mesure

L'environnement acoustique autour du statoréacteur en fonctionnement est particulièrement hostile. Les mesures réalisées à l'aide d'un microphone sans protections ont montré que le niveau de bruit dépassait les 184dB. Nous avons réalisé nos propres mesures acoustiques en plaçant le microphone dans le caisson présenté Figure IV-39 et Figure IV-40.

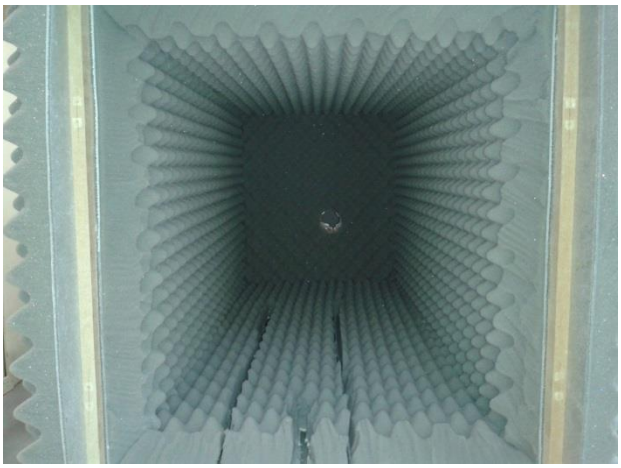


Figure IV-39 : Caisson d'isolation acoustique

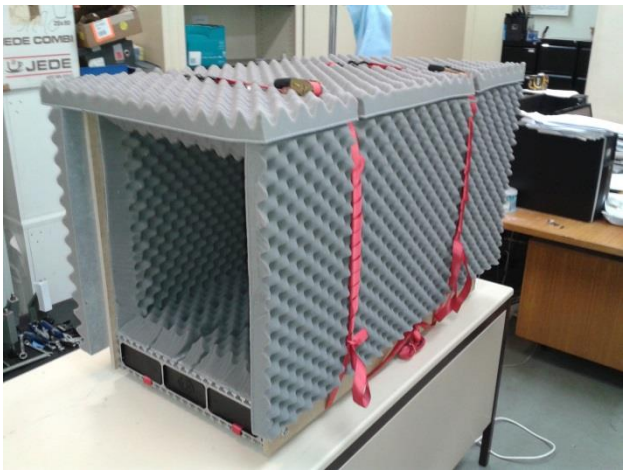


Figure IV-40 : caisson d'isolation acoustique

Nous avons obtenu la courbe du niveau sonore en fonction du temps suivante, Figure IV-41 :

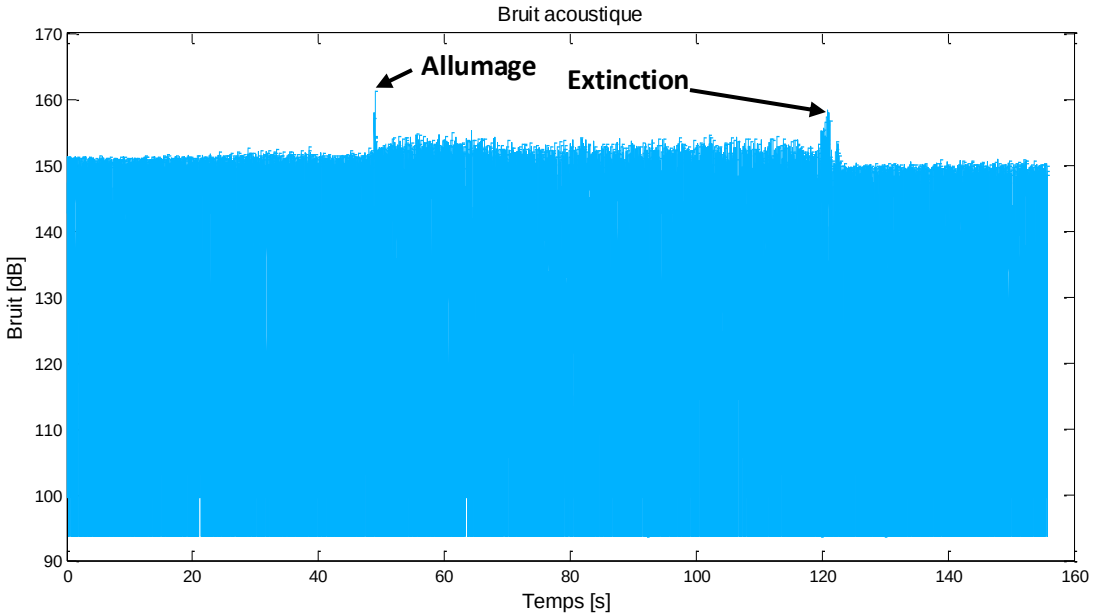


Figure IV-41 : Niveau sonore au cours du temps

Les deux pics de niveau sonore correspondent à l'allumage et à l'extinction du statoréacteur. Le niveau sonore ne dépasse pas les 164 dB, contrairement à des niveaux supérieurs à 184 dB sans isolation, ce qui démontre l'efficacité du caisson d'isolation mis au point.

De nos mesures, nous avons également extrait le spectre acoustique (voir Figure IV-42). Nous observons deux régions spectrales de forte intensité. La première se situe en dessous de 100Hz et le seconde entre 3300Hz et 4000Hz.

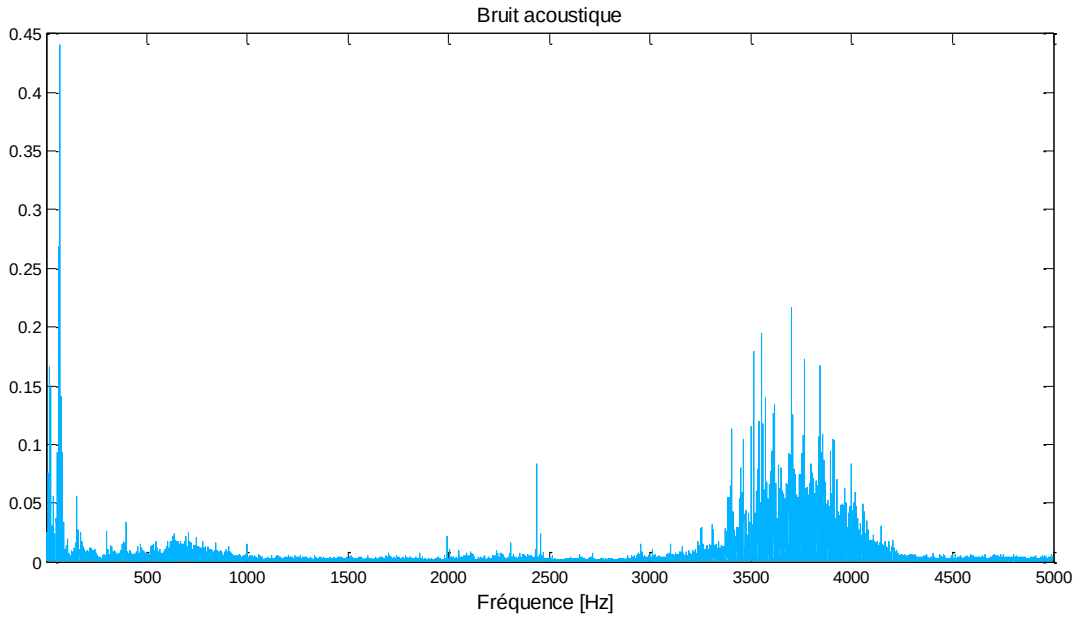


Figure IV-42 : Spectre acoustique

Pour les essais présentés ci-après, nous avons utilisé de la laine de roche de 200mm d'épaisseur afin d'isoler le matériel des fréquences supérieures à 100Hz. Nous avons également construit des tables optiques

avec des empilements de planches de bois et plaques de polystyrène (22mm et 20mm d'épaisseur respectivement), afin d'isoler les appareilles des vibrations mécaniques provenant du sol.

IV.D.3 Spectre d'émission

Le programme d'acquisition des spectres d'émission ne s'est déclenché que lors du premier essai sur les deux réalisés. Lors de ce premier essai, le brûleur ne s'est pas déclenché et nous n'avions qu'un fond à température ambiante à observer. Aux températures ambiantes, l'intensité du signal est faible et le rapport signal sur bruit l'est également (Voir Figure IV-43).

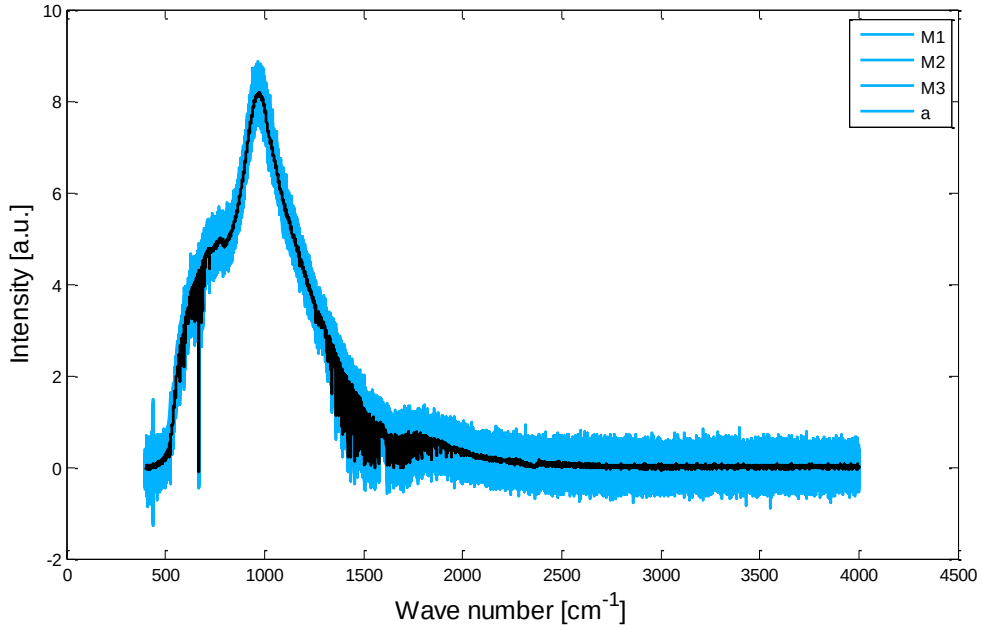


Figure IV-43 : Spectre du fond à température ambiante.

Pour les essais pendant la combustion, la température prévue est supérieure à 2000K. Le rapport signal sur bruit entre 300K et 2000K s'améliore d'un facteur supérieur à 15 000 au niveau de la tête de bande du CO_2. Voici le calcul conduisant à ce résultat :

Soit $\delta_1 = \frac{L_{\lambda,T_1}}{L_N}$ le rapport signal sur bruit de la luminance à T_1 et $\delta_2 = \frac{L_{\lambda,T_2}}{L_N}$ le rapport signal sur bruit de la luminance à T_2 pour $\lambda = 4{,}18\mu m$ (centre de la tête de bande du CO_2).

$$\frac{\delta_1}{\delta_2} = \frac{\frac{L_{\lambda,T_1}}{L_N}}{\frac{L_{\lambda,T_2}}{L_N}} = \frac{L_{\lambda,T_1}}{L_{\lambda,T_2}}$$

$$\delta_2 = \frac{L_{\lambda,T_2}}{L_{\lambda,T_1}}\delta_1$$

Entre 300K et 2000K, nous trouvons $\delta_2 = 1{,}67.10^4\delta_1$

Le spectromètre et la transmission des données ont permis d'avoir les spectres attendus tout au long de l'essai.

IV.D.4 Mesures Lidar

Le Lidar est resté actif pendant l'intégralité du second essai. En revanche, dès le début du premier essai, un câble Ethernet s'est déconnecté et nous n'avons pas pu collecter de données.

Dans la suite, les courbes sont obtenues en intégrant le signal des images sur chacune des 1400 colonnes de l'axe temporel.

La Figure IV-43 et la Figure IV-44 présentent le signal rétrodiffusé le long de la ligne de visée juste avant le tir. La Figure IV-46 et la Figure IV-47 sont obtenues juste après le lancement du tir. L'intensité du signal croit énormément et ceci est dû à la présence de particules sur la ligne de visée. Le taux de particule est tel que le détecteur de la caméra a localement saturé.

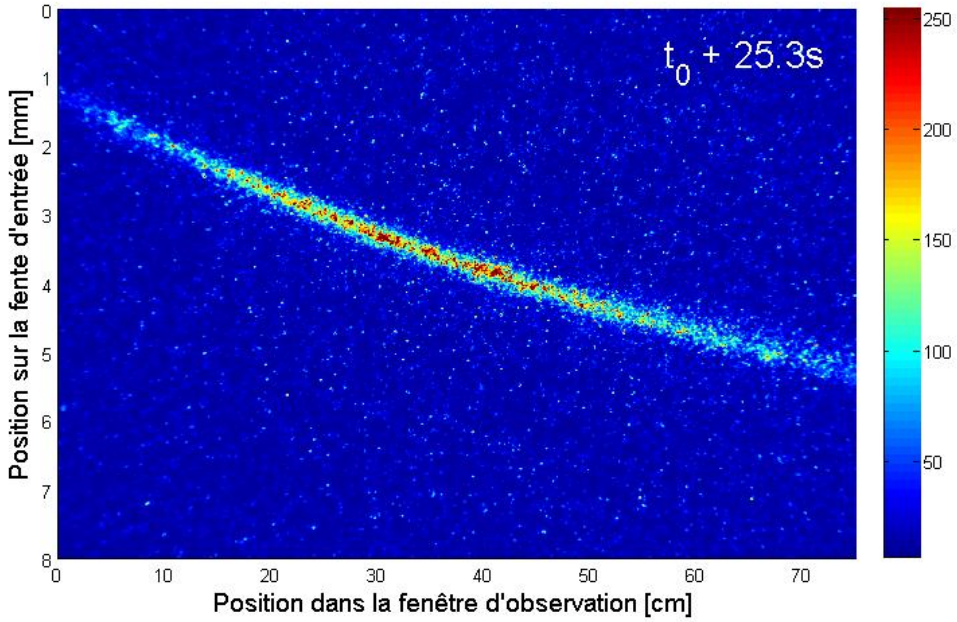


Figure IV-44 : Image à t = t = t_0 + 25,3s

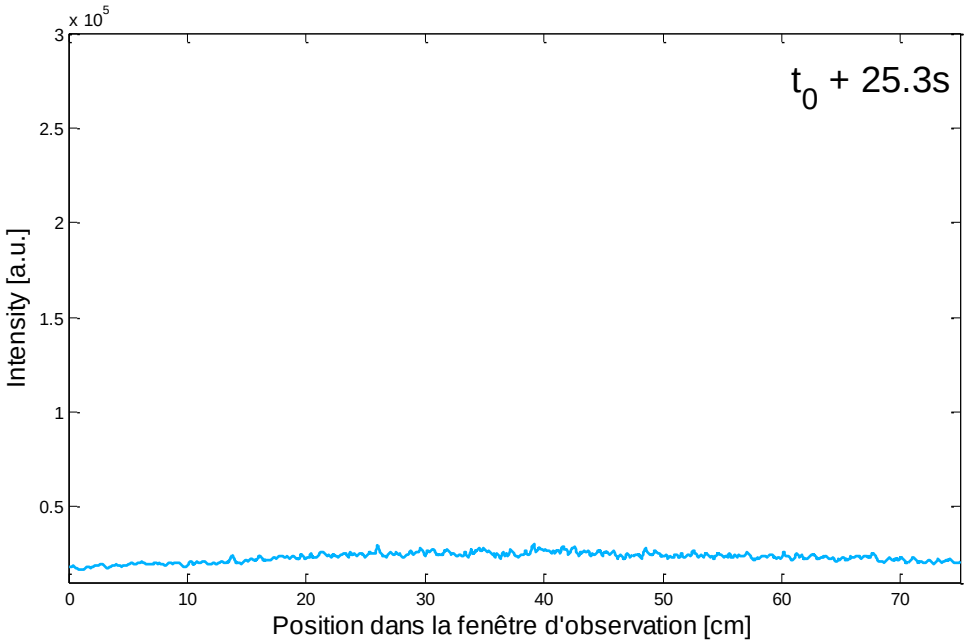


Figure IV-45 : profil de diffusion obtenu à partir de l'image de la Figure IV-44

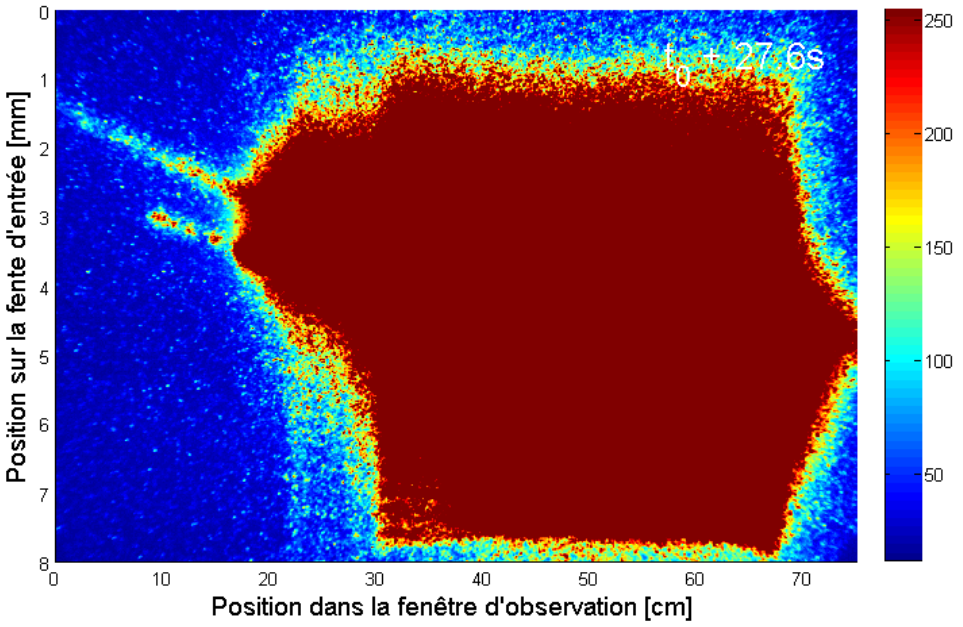


Figure IV-46 : Image à t = t = t_0 + 27,6s

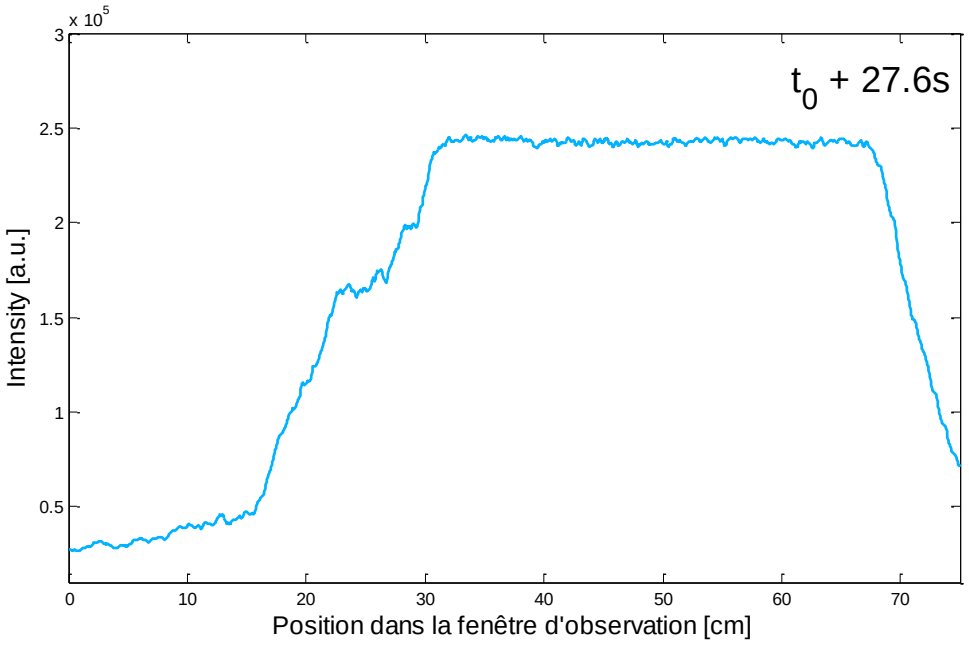


Figure IV-47 : profil de diffusion obtenu à partir de l'image de la Figure IV-46

Certaines images font apparaitre un creux de diffusion au niveau des gaz sortant du statoréacteur. De ces creux, nous ne pouvons pas extraire d'information sur la température car ils sont noyés dans la diffusion des particules. En revanche, s'ils sont bien dus à l'expulsion d'un gaz chaud, il y a de quoi être optimistes quant au potentiel de la méthode de mesure sur le banc.

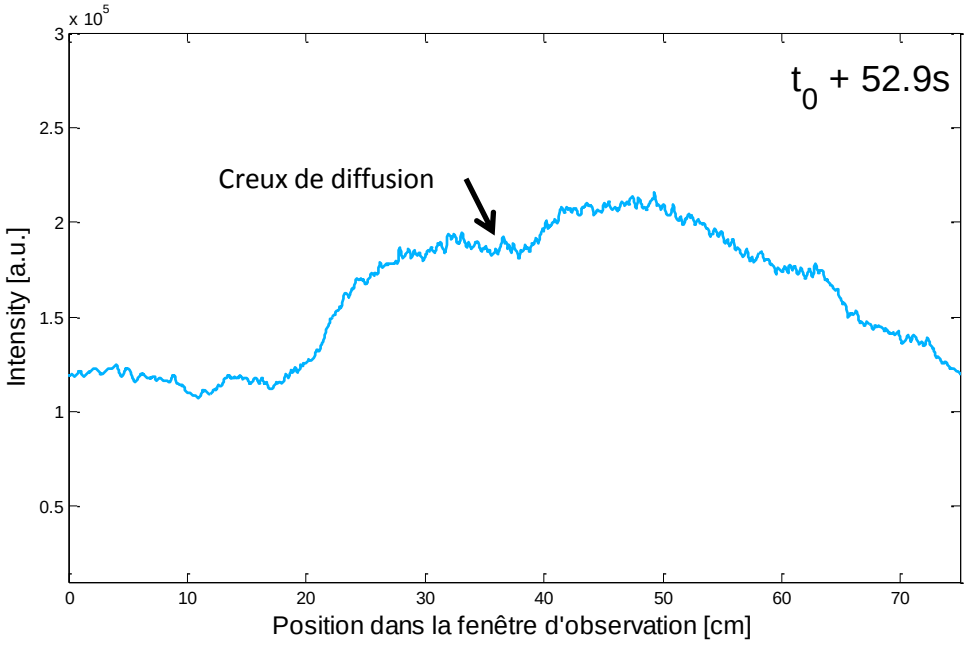


Figure IV-48 : profil de diffusion à t = t_0 + 52,9s

Nous avons deux hypothèses quant à l'origine de ces particules :

- Elles peuvent venir de l'intérieur de la ligne du statoréacteur (soit formées par des imbrulées de combustion, la flamme n'ayant pas eu le temps de se stabiliser, soit par dépôts de rouille sur les parois intérieures).
- Elles peuvent également venir de la laine de roche.

IV.D.5 Conclusion et perspectives

Les résultats, bien que non exploitables à cause de la présence de suies et particules sont très encourageants car d'une part, les mesures ont pu être réalisées tout au long de l'essai et que d'autre part le matériel a résisté aux conditions acoustiques extrêmes. Une nouvelle campagne d'essais est prévue avant la fin de l'année 2015.

Pour le premier cas de figure, il est probable qu'après un temps de stabilisation de la flamme, les éventuelles suies disparaissent et/ou que les particules provenant des parois intérieures de la ligne soient en très grande partie évacuées.

Il est envisageable d'utiliser le laser YAG dans l'UV (355nm), afin de réduire la contribution de la diffusion de Mie (voir paragraphe II.A.1) relativement à la contribution de la diffusion Rayleigh (diffusion sur les atomes et molécules pour des longueurs d'ondes visibles ou proche infrarouge). Les figures suivantes (Figure IV-49 et Figure IV-50) justifient cette évolution de contribution pour trois rayons de particules différents (1, 10 et 100µm). Les croix noires sont les différentes longueurs d'ondes (532nm, 355nm, 266nm) prises en comparaison avec la longueur d'onde de référence (1064nm, première harmonique du laser YAG repérée par un cercle rouge). La Figure IV-49 permet de comparer l'évolution de la diffusion de Mie et Rayleigh par rapport à une diffusion à 1064nm. La Figure IV-50 représente l'élasticité de la diffusion Rayleigh par rapport à la diffusion de Mie, c'est-à-dire la variation de la section efficace de diffusion Rayleigh par rapport à la variation de section efficace de diffusion de Mie lorsque l'on change de longueur d'onde.

$$E = \frac{\frac{\Delta\sigma_{Rayleigh}}{\sigma_{Rayleigh,1064nm}}}{\frac{\Delta\sigma_{Mie}}{\sigma_{Mie,1064nm}}}$$

Dans un souci de clarté, nous avons noté en légende $\frac{\sigma_{Rayleigh}}{\sigma_{Mie}}$.

Dans tous les cas, nous avons considéré des particules sphériques de suie d'indice complexe : 1.5 + 0.1i.

Pour le second cas de figure, dans la perspective d'une prochaine campagne, nous prévoirions une méthode nous permettant de contenir la laine de roche.

Contribution de la diffusion Rayleigh par rapport à la diffusion de Mie pour des particules sphériques de 10µm de rayon :

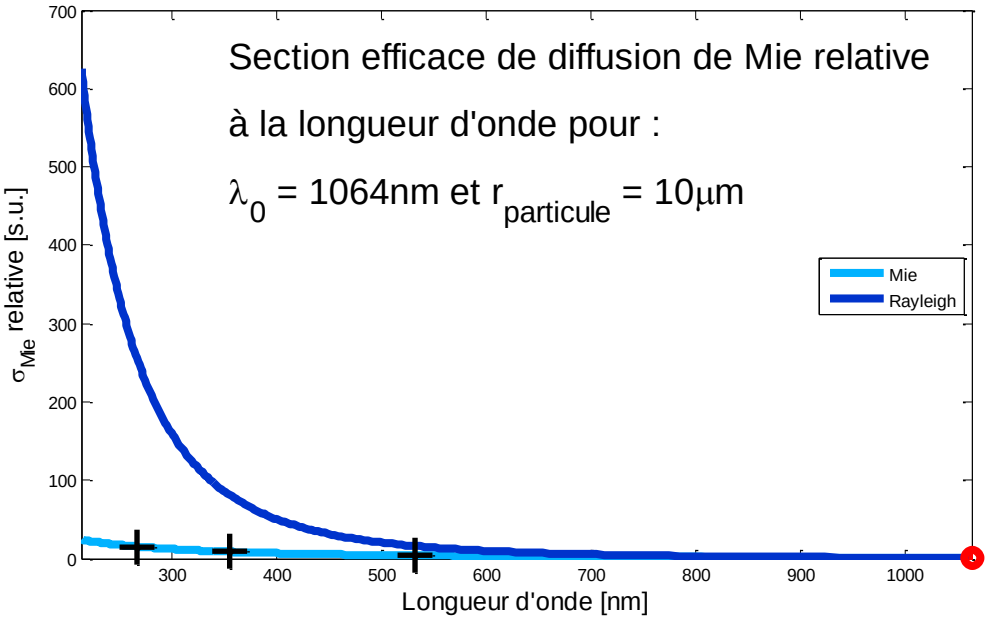


Figure IV-49 : Evolution de la diffusion Rayleigh par rapport à la diffusion de Mie en fonction de la longueur d'onde pour des particules de rayon de 10µm

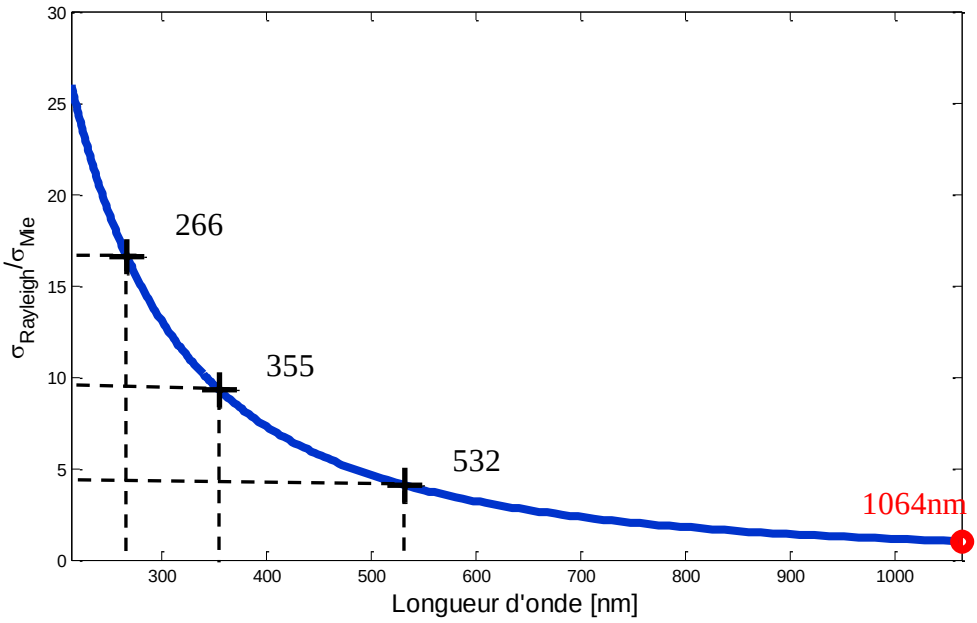


Figure IV-50 : diffusion Rayleigh sur la diffusion de Mie en fonction de la longueur du laser pour des particules de rayon de 10µm

Le tableau suivant présente le gain potentiel sur le rapport diffusion Rayleigh / diffusion de Mie avec la baisse de la longueur d'onde du laser en fonction de la taille des particules diffusantes (Tableau IV-1 : Gain en diffusion Rayleigh sur la diffusion de Mie en fonction de la taille des particules et de la longueur du laser

GAIN Rayleigh/Mie		Rayon des particules (µm)		
		1	**10**	**100**
Longueur d'onde (nm)	**1064**	1	1	1
	532	5	4,5	4,5
	355	11	9,5	9,5
	266	20	16,5	16,5

Tableau IV-1 : Gain en diffusion Rayleigh sur la diffusion de Mie en fonction de la taille des particules et de la longueur du laser

Diminuer la longueur d'onde de 532nm à 355nm permet de gagner un facteur deux sur la contribution de la diffusion de Mie sur le signal Rayleigh mesuré.

IV.E Mesures sur déflagrations H_2/Air

Afin de démontrer la faisabilité de la mesure Lidar dans le cadre d'une réaction Na/H_2O, nous avons mis au point un banc de mesure sur une déflagration H_2/air de petites dimension (quelques mm). L'objectif est d'effectuer une mesure de température de la flamme avec une seule impulsion laser. Il s'agit de mettre au point le système de déflagration ainsi que la chaine de déclenchement du laser, de la caméra Streak et de la bougie initiant la déflagration.

IV.E.1 Banc expérimental

Un faisceau laser passe au travers d'une cellule de déflagration spécialement conçue en alumide (mélange de résine et d'aluminium procurant résistance mécanique et thermique à la cellule) par un procédé d'impression 3D (Figure IV-52). L'impulsion laser traverse la déflagration et le signal diffusé latéralement est détecté par la caméra Streak. Un système de synchronisation est utilisé pour que l'impulsion laser traverse la cellule au moment de la déflagration.

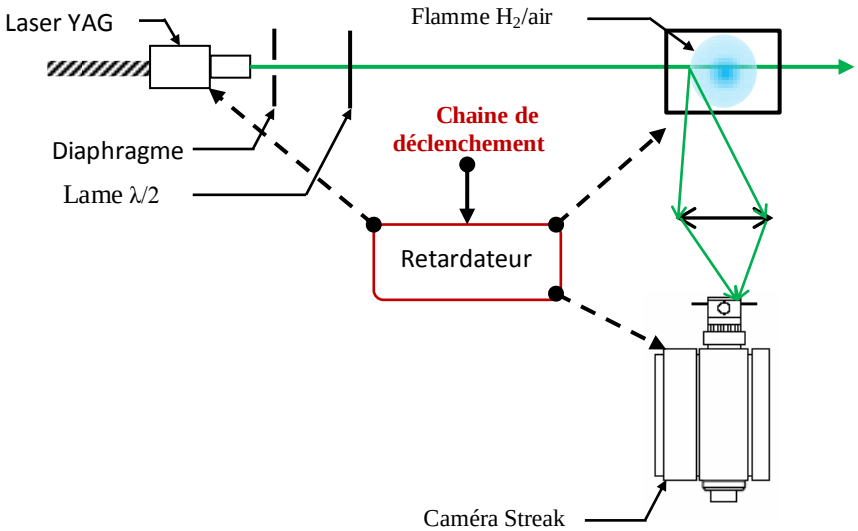


Figure IV-51 : Schéma du banc expérimental de la mesure de la température de la déflagration

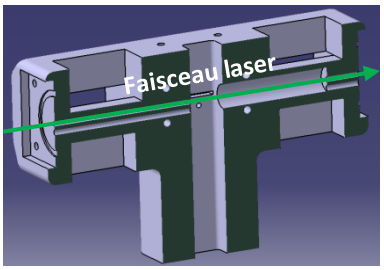


Figure IV-52 : Schéma de la cellule de déflagration en coupe

La difficulté principale provient des multiples diffusions sur les parois. L'intensité diffusée depuis les parois peut être de plusieurs ordres de grandeurs au-dessus de l'intensité issue de la diffusion Rayleigh. Un soin particulier a donc été pris quant à la réduction du signal diffusé sur les parois.

Afin de supprimer l'influence des réflexions et diffusions multiples dans la cellule nous avons décidé de changer leur longueur d'onde et filtrer optiquement à la longueur d'onde du laser. Nous avons choisi de peindre l'intérieur de la cellule d'une peinture fluorescente quand elle est excitée à 532nm. La rhodamine 6G est la molécule la plus adaptée à notre application et nous avons dû concevoir le procédé de fabrication, une peinture fluorescente déjà préparée n'existant pas sur le marché. Les signaux provenant de la diffusion de photons issus du faisceau laser sont réémis à des longueurs d'ondes plus grandes (dans le jaune à la place du vert). En plaçant un filtre à 532nm devant la caméra Streak, nous faisons fi du signal diffusé sur les parois de la cellule.



Figure IV-53 : Photo d'un échantillon de peinture fluorescente à base de rhodamine 6G réalisée au laboratoire.

La fluorescence s'observe bien sur les courbes ci-après, Figure IV-54, intensité du signal diffusé en fonction du temps.

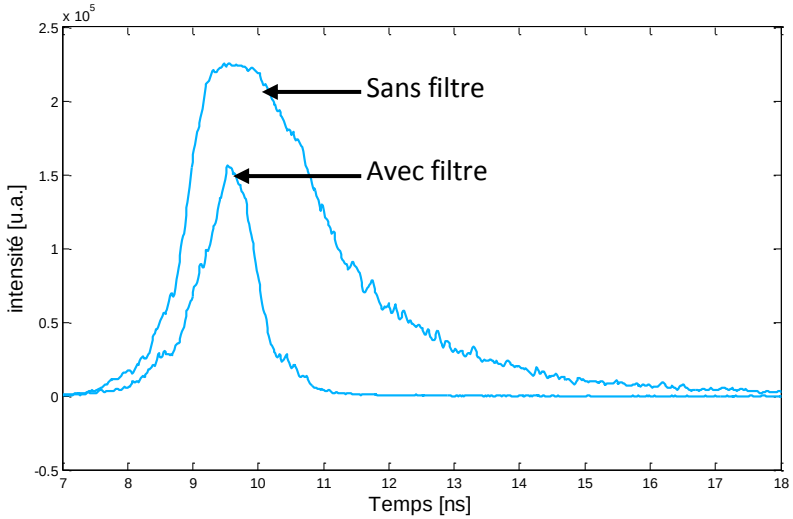


Figure IV-54 : Intensité du signal diffusé intégré le long de la fente d'entrée en fonction du temps.

La cellule en alumide a pour objectif premier de diminuer au maximum les diffusions sur les parois avec un passage laser étroit entre son entrée dans la cellule et la zone de déflagration et large entre la zone de déflagration et la sortie (voir Figure IV-55).

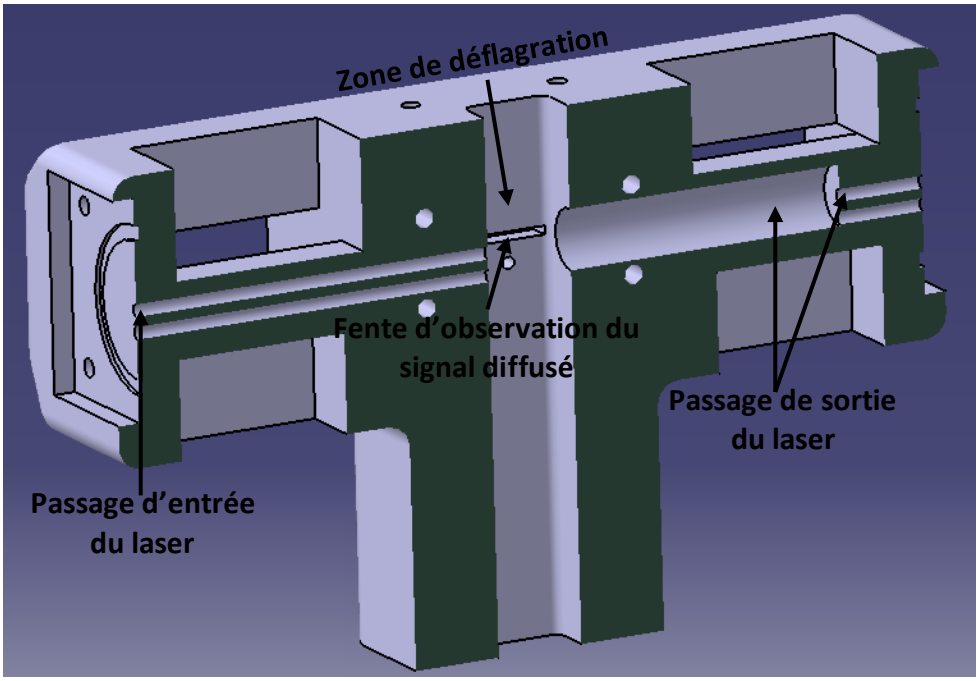


Figure IV-55 : Coupe transversale de la cellule de déflagration

La Figure IV-56 est une photo du montage du point de vue de la caméra Streak et la Figure IV-57 est une photo d'ensemble du banc de mesure.

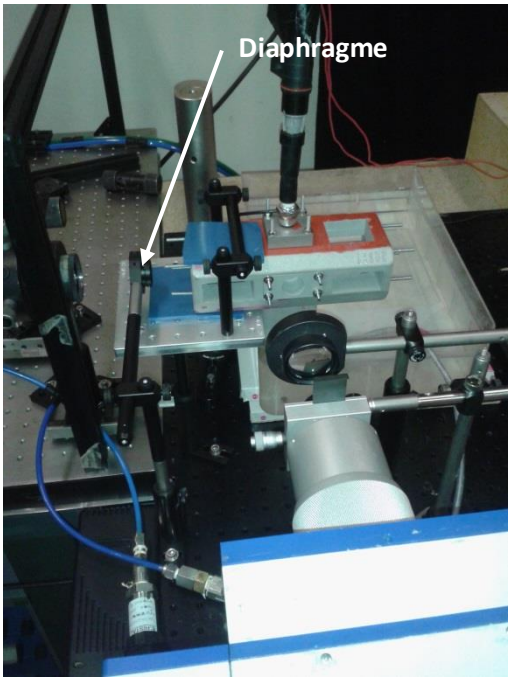


Figure IV-56 : photo caméra Streak & cellule de déflagration

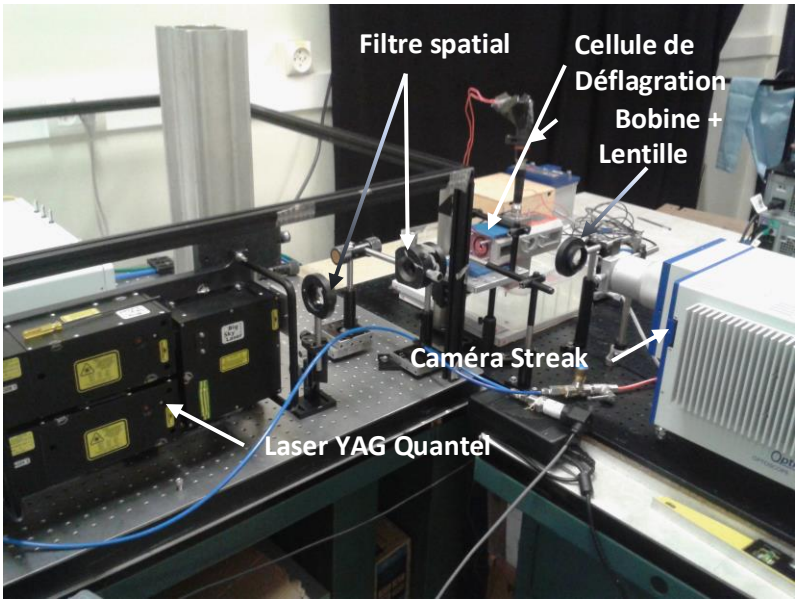


Figure IV-57 : photo du montage dans son ensemble

IV.E.1.1 Laser YAG 250mJ/Pulse

Le laser Pico seconde Ekspla PL2250 dont nous disposons au laboratoire émet des impulsions de 30ps d'environ 10mJ par impulsion. Le mesure de température par diffusion Rayleigh n'est possible que sur une impulsion ce qui conduit à un trop faible rapport signal sur bruit. Afin d'améliorer ce rapport d'un facteur 50,

nous nous sommes fait prêter par Yannick BAILLY du laboratoire FEMTO-ST un laser YAG (Big Sky Laser CFR400 de la marque Quantel) émettant des impulsions de 9ns de 250mJ.

La divergence de ce laser est d'environ 3,5mrad. Même après réduction du faisceau, le signal laser se diffuse sur les parois du tube d'accès à la cellule de déflagration et ne permet pas d'isoler le signal provenant de la diffusion du laser sur le gaz, avant ou pendant la déflagration (voir illustration Figure IV-55).

Afin d'atténuer un peu plus encore les effets de la diffusion du faisceau laser sur les parois, nous avons mis en œuvre plusieurs techniques…

IV.E.1.2 Purification du faisceau laser

Nous avons dans un premier temps inséré sur le chemin optique un filtre spatial. L'objectif est de ne conserver que la tache centrale de la figure de diffraction due au passage du faisceau laser par une première lentille convergente.

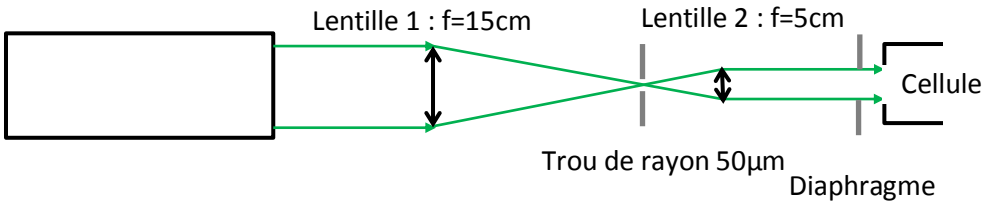


Figure IV-58 : Schéma du filtre spatial avec collimateur

La figure de diffraction du faisceau laser au passage d'une lentille de focale de f est définie par la Figure IV-59 ci-après à partir d'une fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1, J_1.

$$I = I_0 \left(\frac{2J_1(Z)}{Z}\right)^2, \text{ avec } Z = \frac{2\pi a r}{\lambda f}$$

a est le rayon du faisceau laser, λ sa longueur d'onde, f la distance focale et r la distance à l'axe optique dans le plan focal image.

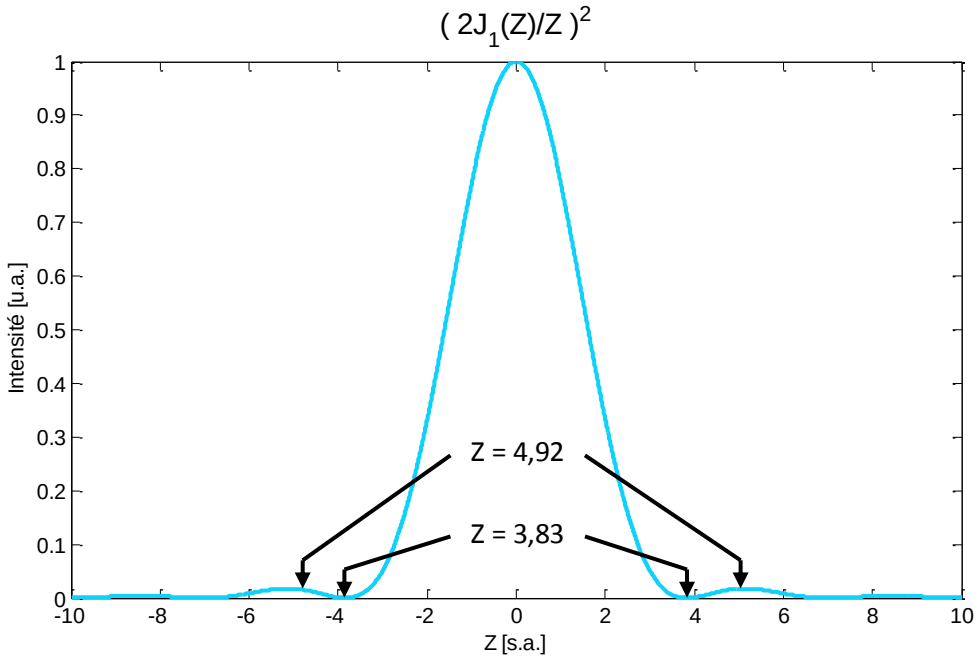


Figure IV-59 : figure de diffraction

Le calcul du rayon du diaphragme s'effectue à partir de l'équation suivante :

$$\frac{2\pi ar}{\lambda f} = 3{,}83$$

$$\Leftrightarrow r = 3{,}83\frac{\lambda f}{2\pi a}$$

$$\Leftrightarrow r = 20\mu m$$

Nous avons utilisé un diaphragme de 25µm de rayon ce qui conduit à Z = 4 ,92. Toutefois, la puissance de chacune des impulsions laser (28MW) est telle qu'elle a augmenté le diamètre du trou. L'amélioration due au filtre spatial, est moins importante que ce à quoi nous pouvions nous attendre (voir Figure IV-60).

Nous avons réduit le faisceau d'un facteur 3 avec une première lentille convergente de 15cm de focale et une seconde lentille convergente de 5 cm de focale (voir Figure IV-58 ci-avant).

Enfin, nous avons placé un diaphragme proche de l'entrée de la cellule.

Afin de contrôler les effets de ces éléments optiques, nous avons remplacé la cellule par une caméra. L'évolution de la taille du faisceau laser en fonction des éléments de filtration du faisceau laser est représentée ci-après sur la Figure IV-60. Les courbes de cette figure sont obtenues à partir des intensités extraites le long d'une ligne horizontale depuis les images de la Figure IV-61 à la Figure IV-64.

La courbe « sans optique » correspond au faisceau laser seul. A chacune des courbes suivantes nous ajoutons l'élément optique en légende, le précédent étant conservé sur le chemin optique.

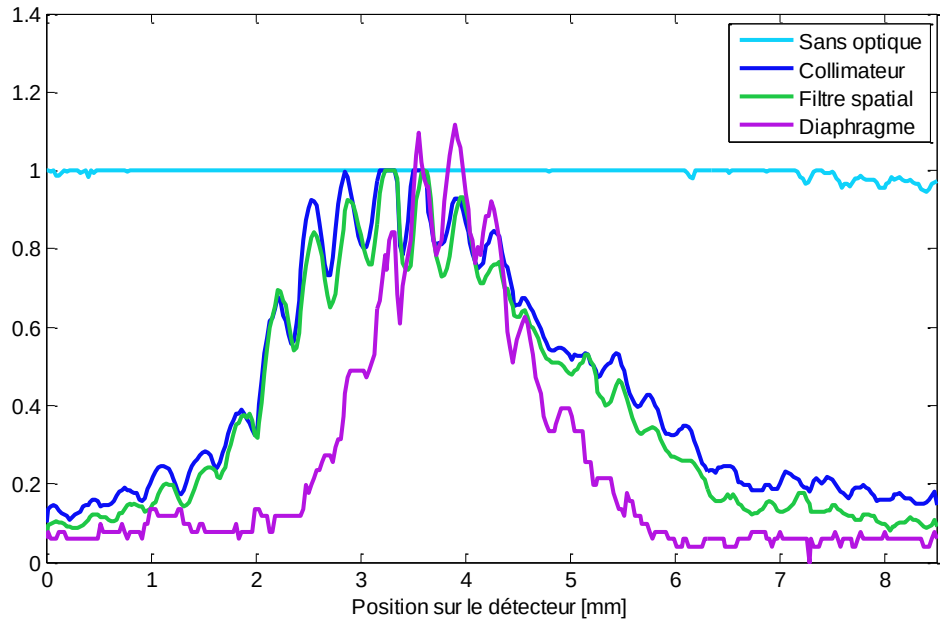


Figure IV-60 : Forme du faisceau laser en fonction des éléments optiques présents sur le chemin.

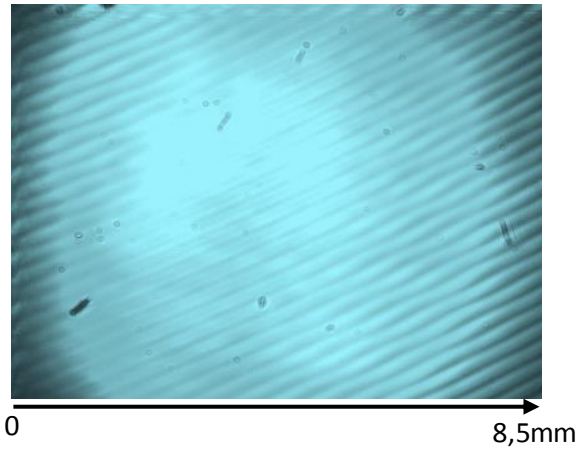


Figure IV-61 : Sans optique

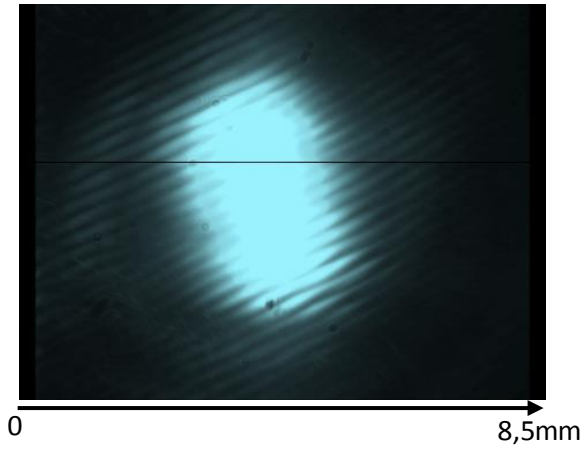


Figure IV-62 : Avec le collimateur

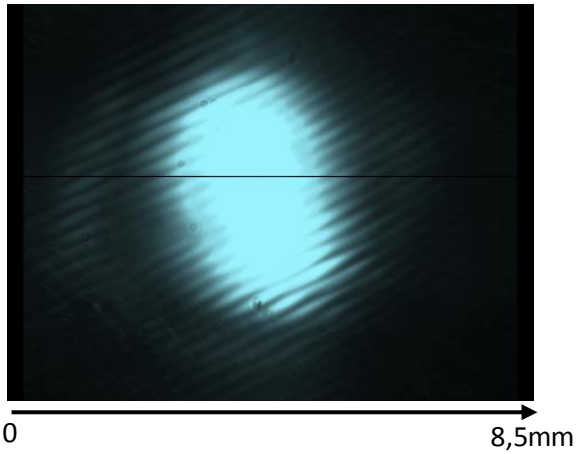


Figure IV-63 : Avec le filtre spatial

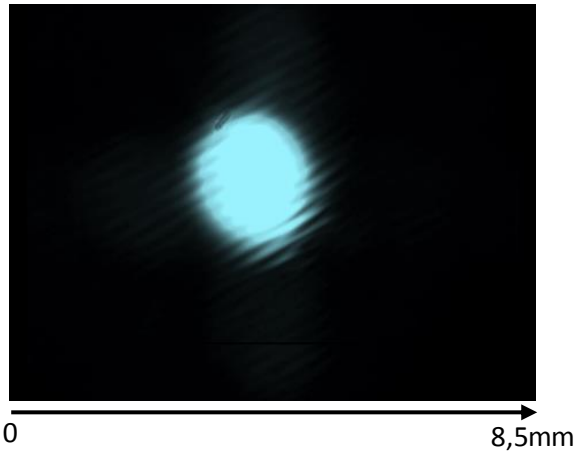


Figure IV-64 : Avec le diaphragme

IV.E.1.3 Modifications sur la cellule

La purification du faisceau laser n'était pas suffisante et nous avons apporté deux modifications à la cellule. La première est l'élargissement du passage du faisceau laser afin d'éliminer la diffusion à la sortie de la cellule. La seconde est la suppression des hublots d'entrée et de sortie du passage laser afin de ne plus avoir de diffusions aux interfaces. Par conséquent, le passage laser est obstrué pendant l'injection d'air et H_2 dans la cellule et les caches sont retirés juste avant le tir alors que l'on injecte toujours le mélange Air/H_2.

IV.E.2 Résultats expérimentaux sur des déflagrations H_2/Air

Les mesures sont réalisées sur des déflagrations H_2/Air avec une fraction molaire en H_2 de 10%, 12,5%, 16% et 20%.

IV.E.2.1 Détermination du fond continu et calcul des incertitudes

Nous considérons que chaque signal brut est défini comme suit :

$$S_a = \sigma_a C_a f + b$$

Où a représente la molécule de H_2 ou O_2, S_a est le signal brut, σ_a la section efficace de l'espèce a et C_a la concentration de l'espèce a.

Nous déterminons le fond continu *b à* partir des profils de diffusion dans l'oxygène et l'hydrogène via la résolution du système d'équations suivant :

$$\begin{cases} S_{O_2} = \sigma_{O_2} C_{O_2} f + b \\ S_{H_2} = \sigma_{H_2} C_{H_2} f + b \end{cases}$$

Nous avons $C_{O_2} = C_{H_2}$ et obtenons :

$$b = \frac{\sigma_{O_2} S_{H_2} - \sigma_{H_2} S_{O_2}}{\sigma_{H_2} - \sigma_{O_2}}$$

Nous calculons l'incertitude à partir des mesures faites sur H_2 et O_2 et de leurs écarts types respectifs.

Soit ψ la fonction définie comme suit :

$$\psi(A) = \sqrt{\frac{1}{N-1}\sum_{i=1}^{N}(A_i - \mu)^2},$$

Avec $\mu = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} A_i$

L'incertitude sur la mesure du profil dans l'oxygène est alors :

$$\frac{\Delta S_{O_2}}{S_{O_2}} = \frac{\psi(S_{O_2})}{S_{O_2}}$$

L'incertitude sur la mesure du profil dans l'hydrogène est :

$$\frac{\Delta S_{H_2}}{S_{H_2}} = \frac{\psi(S_{H_2})}{S_{H_2}}$$

A partir de ces deux incertitudes, nous déduisons l'ensemble des autres :

Incertitude sur le fond continu :

$$\frac{\Delta b}{b} = \frac{\sigma_{O_2}}{\sigma_{H_2} - \sigma_{O_2}} \frac{\Delta S_{H_2}}{S_{H_2}} + \frac{\sigma_{H_2}}{\sigma_{H_2} - \sigma_{O_2}} \frac{\Delta S_{O_2}}{S_{O_2}}$$

Incertitude sur la mesure dans la déflagration :

$$\frac{\Delta S_{deflag}}{S_{deflag}} = \frac{\Delta S_{H_2}}{S_{H_2}}$$

Incertitudes sur les signaux auxquels le fond continu a été retranché :

$$\frac{\Delta(S_{O_2} - b)}{S_{O_2} - b} = \frac{\Delta S_{O_2}}{S_{O_2}} + \frac{\Delta b}{b}$$

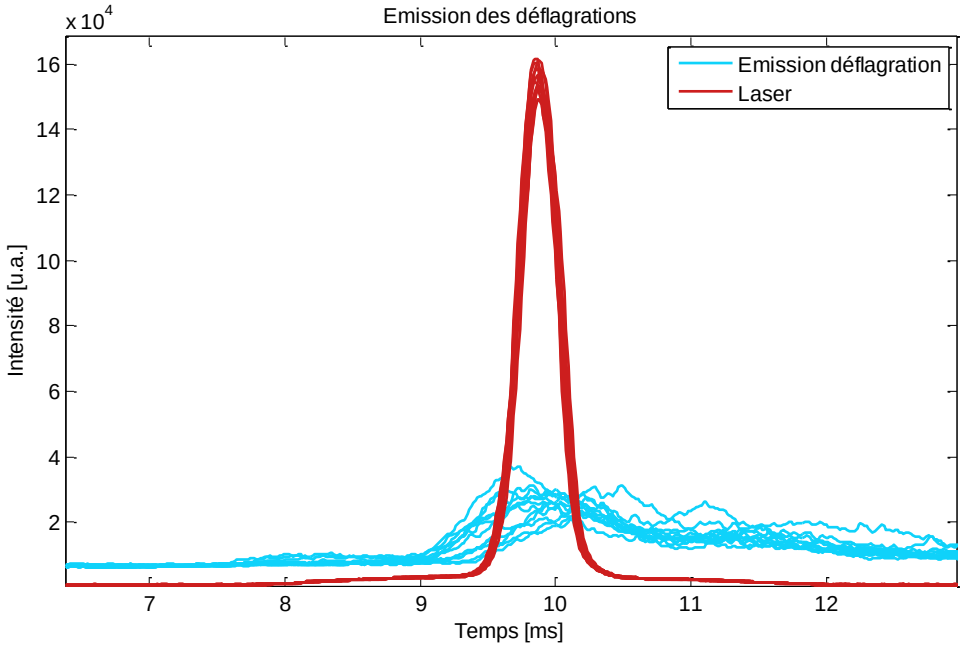
$$\frac{\Delta(S_{H_2} - b)}{S_{H_2} - b} = \frac{\Delta S_{H_2}}{S_{H_2}} + \frac{\Delta b}{b}$$

$$\frac{\Delta\left(S_{deflag}-b\right)}{S_{deflag}-b}=\frac{\Delta S_{deflag}}{S_{deflag}}+\frac{\Delta b}{b}$$

Incertitude sur la température de la déflagration :

$$\frac{\Delta T_{deflag}}{T_{deflag}}=\frac{\Delta S_{O_2}}{S_{O_2}}+\frac{\Delta S_{deflag}}{S_{deflag}}+2\frac{\Delta b}{b}$$

IV.E.2.2 Stabilité temporelle de la déflagration



En appliquant la fonction ψ décrite précédemment aux positions temporelles des maximums d'émission des flammes, on trouve une incertitude de 0,23ms.

IV.E.2.3 Profils d'émission des flammes

Afin de connaitre les durées de déflagration et les décalages temporels d'allumage en fonction de concentration en H_2 du pré-mélange, nous avons effectué une série de mesures de l'émission de rayonnement des déflagrations (voir Figure IV-65 à Figure IV-68). Cette étude nous a permis, pour chaque concentration en hydrogène, de synchroniser temporellement le passage du faisceau laser relativement à l'allumage de la bougie.

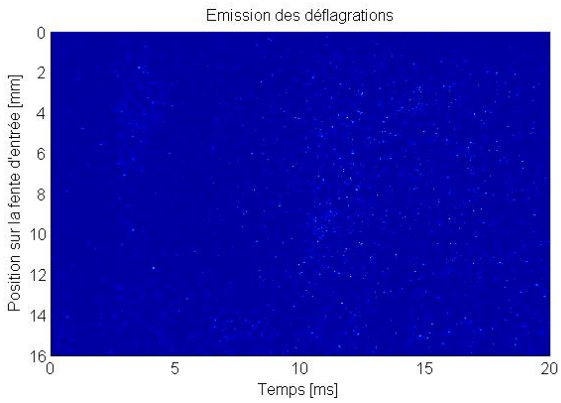


Figure IV-65 : Emission de la flamme avec 10% de H_2

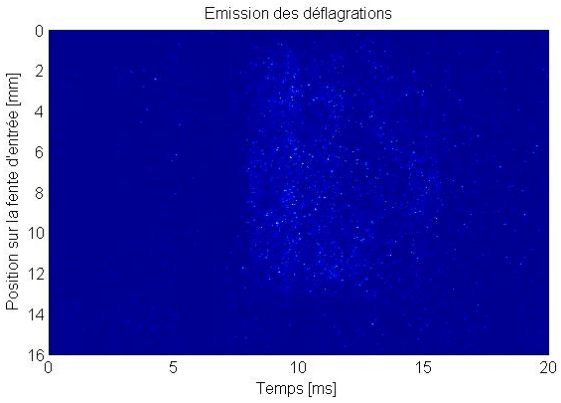


Figure IV-66 : Emission de la flamme avec 12,5% de H_2

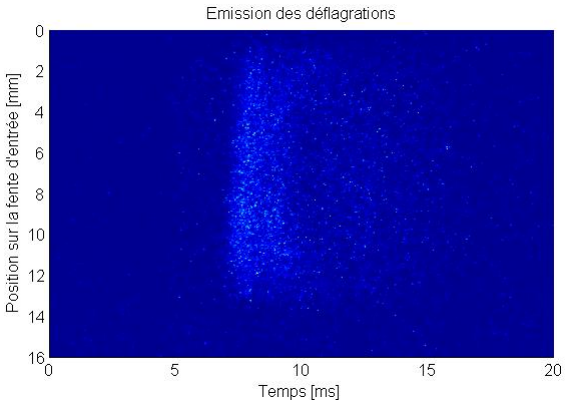


Figure IV-67: Emission de la flamme avec 16% de H_2

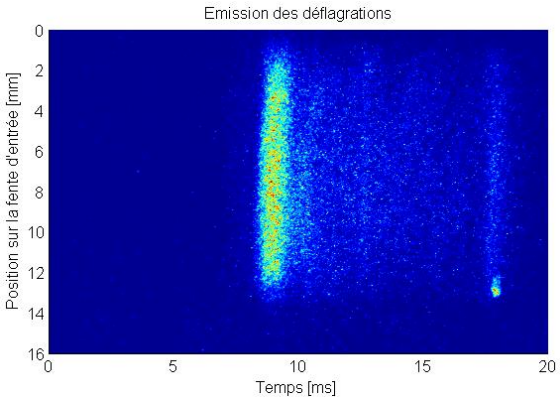


Figure IV-68: Emission de la flamme avec 20% de H_2

Les profils d'émission des flammes déterminés à partir de la Figure IV-65 à la Figure IV-68 par intégration le long de la dimension spatiale sont représentés sur la Figure IV-69. Par exemple, la courbe violette de la Figure IV-69 est obtenue en intégrant le signal de l'image de la Figure IV-68 le long de l'axe spatial (axe des ordonnées) en fonction du temps (axe des abscisses).

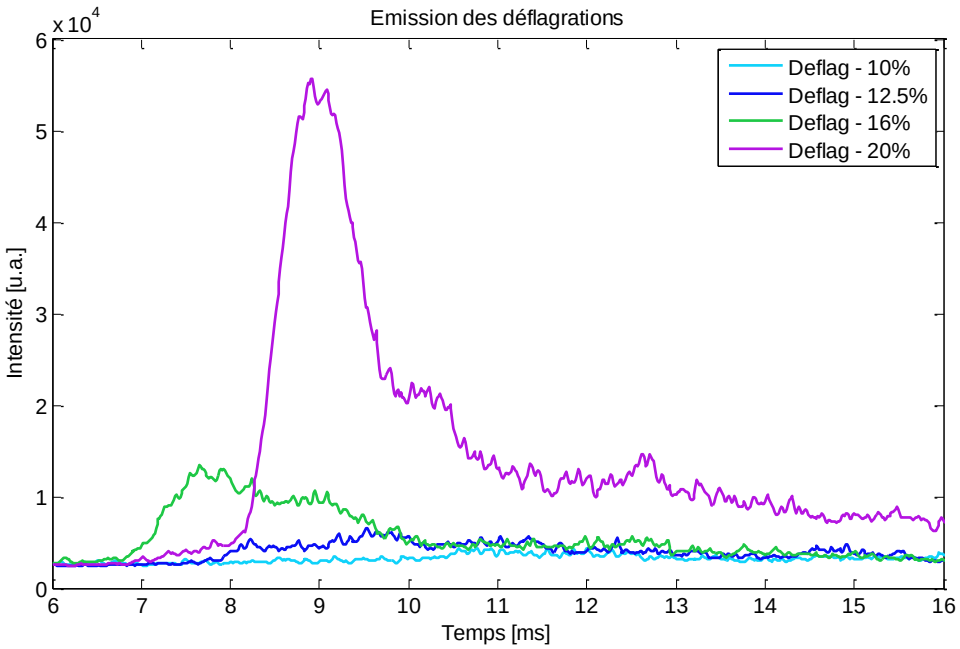


Figure IV-69 : profils d'émission des flammes pour différentes concentrations en hydrogène en fonction du temps. Courbes obtenues par intégration des signaux le long de l'axe spatial des images de la Figure IV-65 à la Figure IV-68.

IV.E.2.4 Courbes de référence et fond continu

La cellule est un tube de section carrée de 20mm d'arête. Cette petite dimension qui est du même ordre de grandeur que la mesure qui sera réalisée sur le sodium fait émerger des problèmes de diffusion du faisceau laser sur les parois. Malgré toutes les techniques mises en œuvre afin de les réduire, le reliquat de diffusion n'est pas négligeable. Il constitue un fond continu fonction de la position et indépendant du temps. Afin de déterminer ce fond, nous avons réalisé deux mesures à température ambiante dans des gaz purs de sections efficaces les plus éloignées possibles. Nous avons choisi O_2 (section efficace de 0,91 par rapport à celle de l'air) et H_2 (section efficace de 0,24 par rapport à celle de l'air). Les résultats bruts de ces mesures (9 mesures pour l'oxygène et 6 mesures pour l'hydrogène) sont présentés Figure IV-70. Le CO_2 a une section efficace de 2,38 par rapport à celle de l'air et était donc une molécule plus adaptée que l'oxygène pour le calcul du fond. Les mesures nous ont révélé la présence de particules et il nous a donc été impossible de réaliser une courbe de référence sur le CO_2.

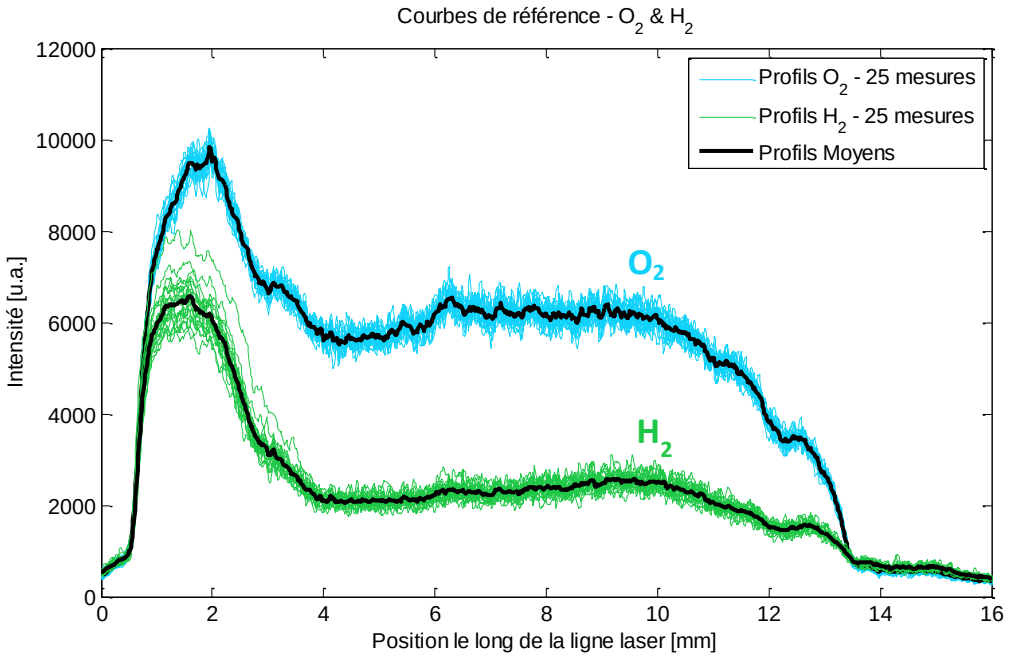


Figure IV-70 : Profils de référence bruts lissés sur 0,76mm

La Figure IV-71 ci-après représente les signaux laser diffusés dans la cellule dans des configurations différentes. La courbe bleue est le profil de référence obtenu dans l'oxygène avec l'incertitude associée (calculée à partir des mesures réalisées). La courbe verte est le profil de référence obtenu dans l'hydrogène avec l'incertitude associée (calculée à partir des mesures réalisées). La courbe rouge est le fond continu calculé à partir des deux courbes de référence et l'incertitude associée (calculée à partir des incertitudes des profils de référence) (voir paragraphe IV.E.2.1 pour le détail du calcul). Enfin, la courbe en pointillés est le signal mesuré dans une déflagration. Les températures associées aux profils de référence et fond continu sont à titre d'indication et permettent de connaitre en particulier les seuils de détection. Si le profil de référence avait été obtenu dans l'air, de section efficace moyenne prise à 1, la température de référence de ce profil serait arbitrairement fixée à 293K (température ambiante). La section efficace de diffusion Rayleigh relativement à l'air de l'oxygène étant de 0,91, la température associée est de 293/0,91=322K. Ce raisonnement appliqué au profil de référence obtenu sur l'hydrogène (section efficace relative à l'air de 0,24) donne 1221K. Enfin, le fond continu correspond à un signal obtenu sans diffusion sur le gaz, ce qui est équivalent à un gaz de section efficace de diffusion nulle et donc à une température qui tend vers l'infini.

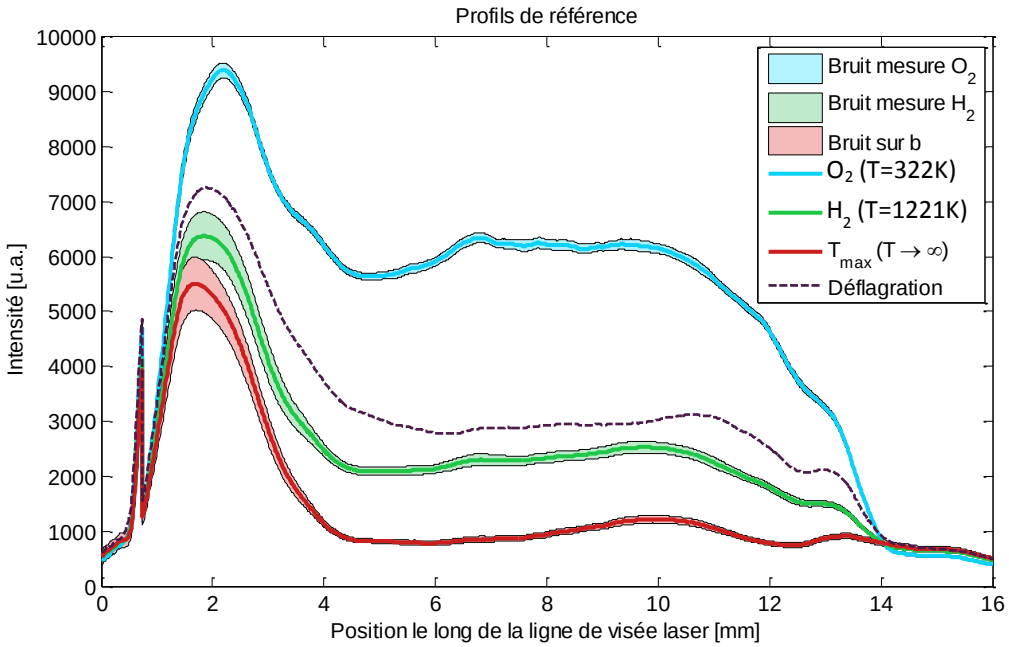


Figure IV-71 : Profils de diffusion dans O_2, H_2, une déflagration et profil du fond continu

La Figure IV-72 ci-après est obtenu par soustraction du bruit aux profils de la Figure IV-71.

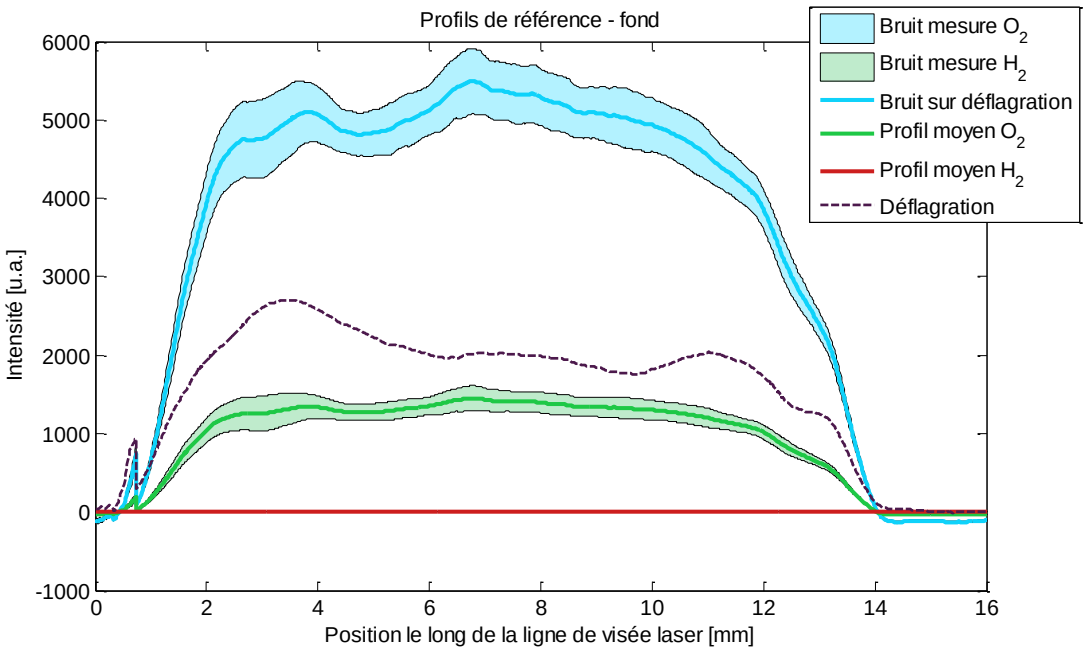


Figure IV-72 : Profils de diffusion de la Figure IV-71 auxquels le fond a été soustrait

IV.E.2.5 Profils de température

Les profils de température sont calculés selon l'équation Eq. III-8, c'est-à-dire en suivant la même méthode que pour les mesures Lidar. Les courbes fines en pointillés pourpres sont les profils de température obtenus pour chacune des mesures. La courbe épaisse en pointillés pourpres est la moyenne sur l'ensemble des profils de température. La section colorée pourpre correspond au domaine d'incertitude calculé à partir des différentes mesures de température. Les lignes vertes et bleues sont les profils de températures de référence provenant respectivement des profils de références mesurés dans l'hydrogène et l'oxygène.

La Figure IV-73 est obtenue pour une fraction molaire en hydrogène de 10%

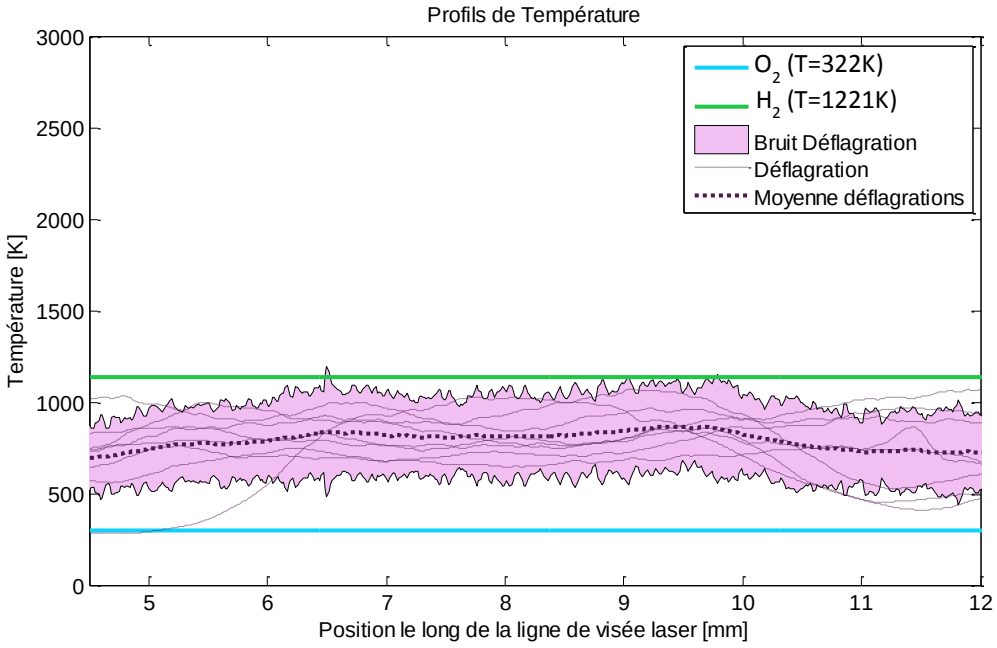


Figure IV-73 : Profils de température et profil moyen pour une fraction molaire en H_2 de 10%

La Figure IV-74 est obtenue pour une fraction molaire en hydrogène de 12,5%

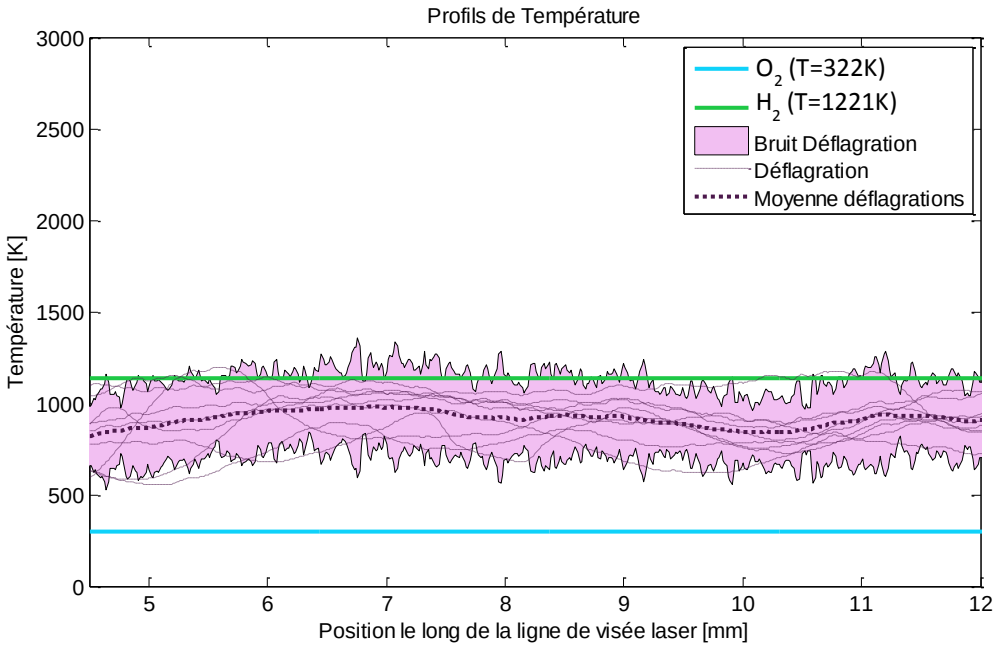


Figure IV-74 : Profils de température et profil moyen pour une fraction molaire en H_2 de 12,5%

La Figure IV-75 est obtenue pour une fraction molaire en hydrogène de 16%

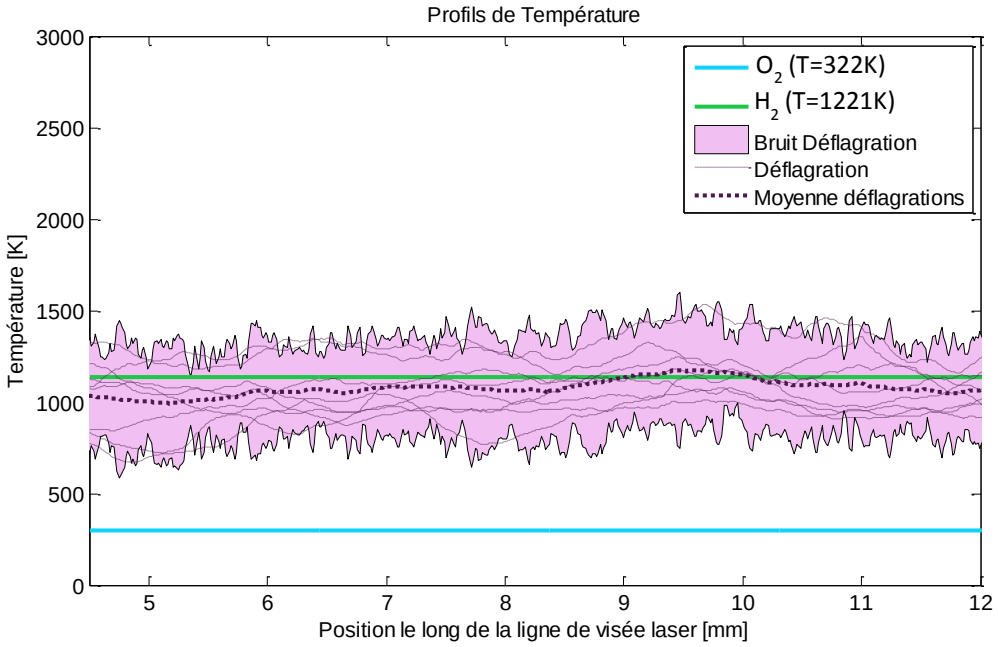


Figure IV-75 : Profils de température et profil moyen pour une fraction molaire en H_2 de 16%

La Figure IV-76 est obtenue pour une fraction molaire en hydrogène de 20%

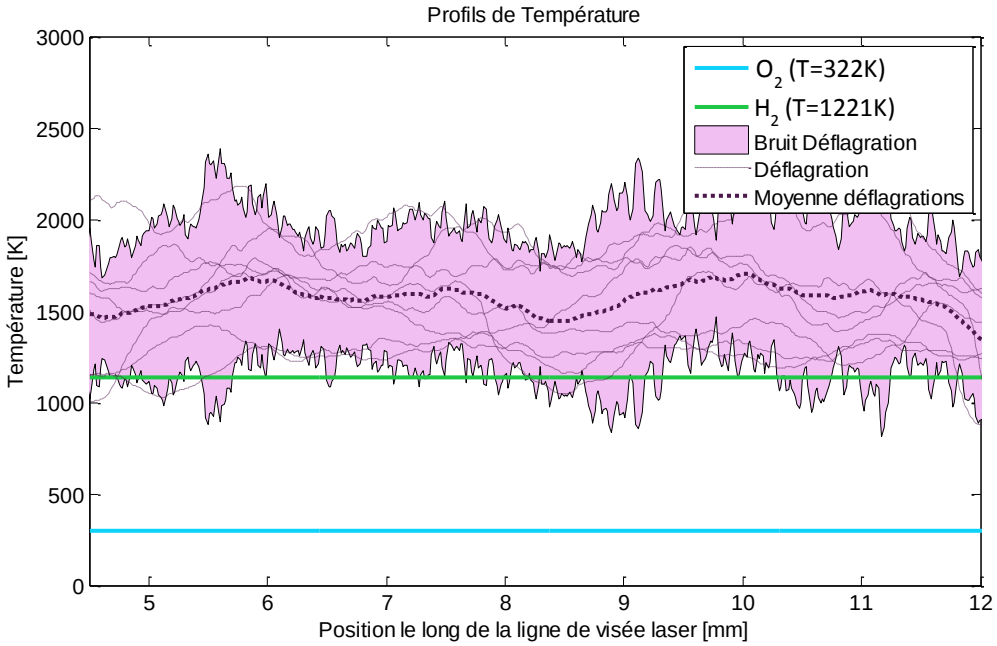


Figure IV-76 : Profils de température et profil moyen pour une fraction molaire en H_2 de 20%

On observe à partir de ces 4 graphes une élévation globale du profil de température avec l'augmentation de la fraction molaire en hydrogène.

La Figure IV-77 représente les profils moyens de températures pour les 4 fractions molaires en hydrogène étudiées (lignes continues) avec les températures adiabatiques simulées avec le logiciel ChemKin.

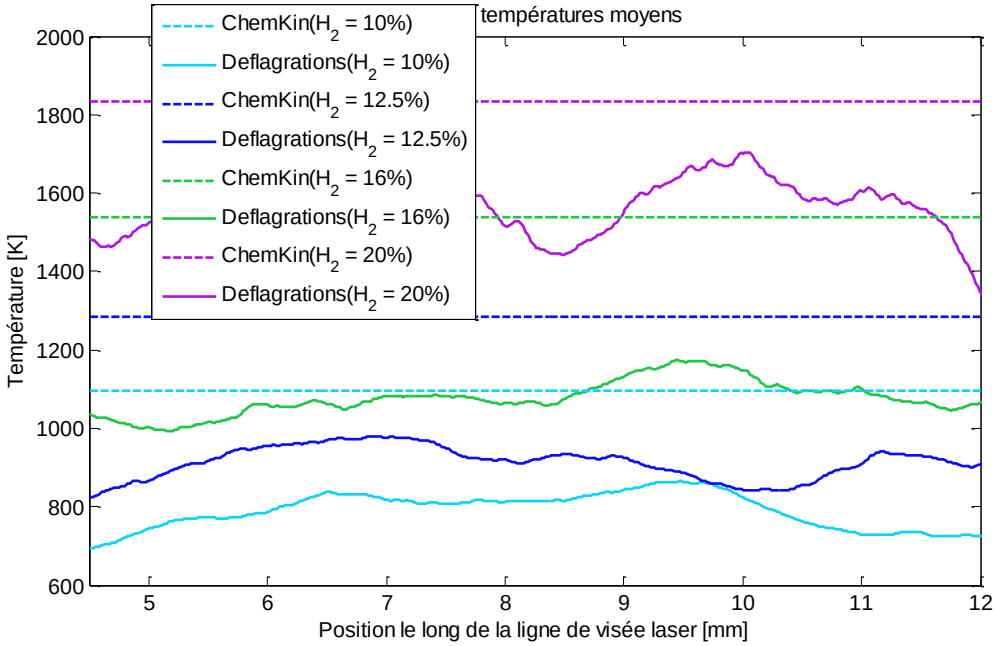


Figure IV-77 : Températures moyennes pour des fractions molaires de 10%, 12,5%, 16% et 20% - comparaison avec les simulations ChemKin.

On remarque que les profils de température mesurés sont toujours en dessous des températures adiabatiques.

La Figure IV-78 est obtenue en moyennant les profils de températures le long de l'axe spatial et sont représentés en fonction de la fraction molaire en hydrogène.

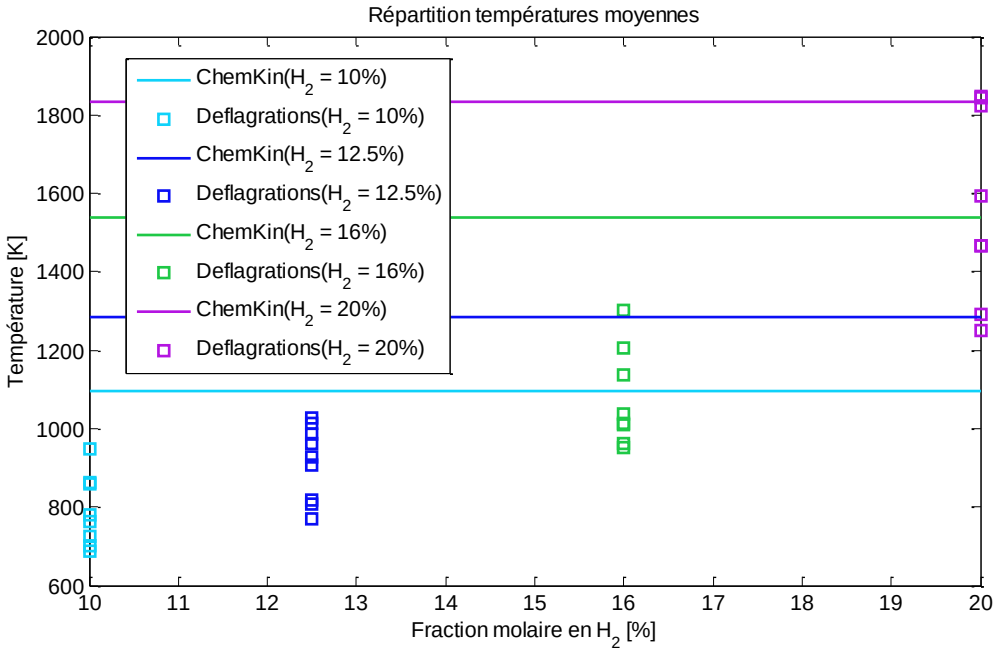


Figure IV-78 : Températures moyennées le long de la ligne laser pour des fractions molaires de 10%, 12,5%, 16% et 20%.

On remarque une forte incertitude sur la température moyenne due au faible rapport signal sur bruit. Enfin, nous avons calculé la température moyennée à la fois selon l'axe spatial et l'ensemble des mesures pour chacune des fractions molaires en hydrogène. Dans une étape ultérieure nous pourrions augmenter la puissance de l'impulsion du laser et diminuer le bruit.

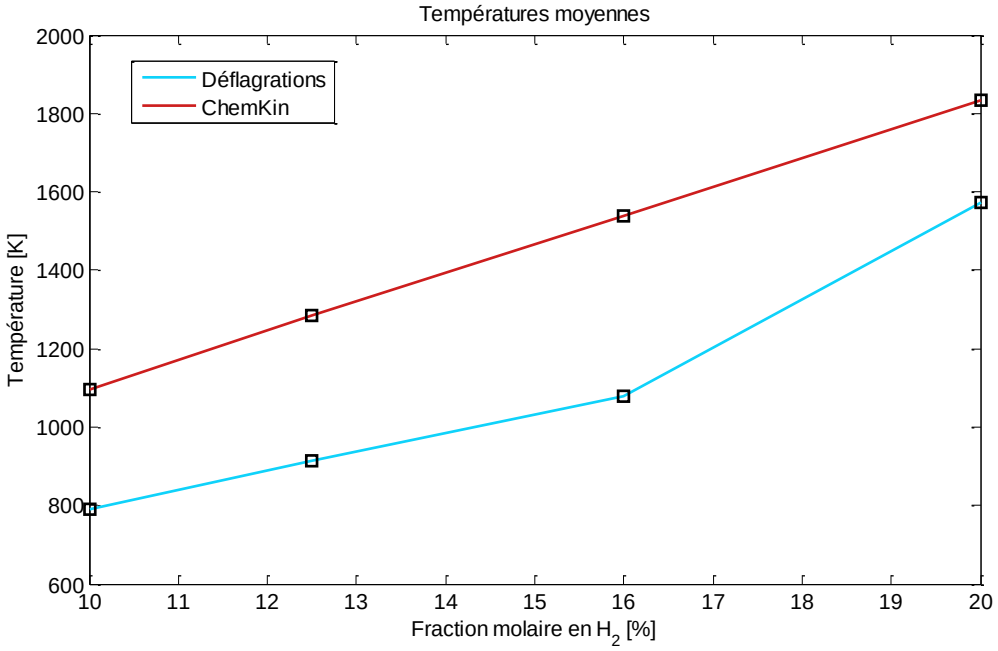


Figure IV-79 : Températures moyennes pour les déflagrations et le long de la ligne de visée laser pour des fractions molaires en H_2 de 10%, 12,5%, 16%, 20%

Nous constatons une élévation de la température avec l'augmentation de la fraction molaire en hydrogène ainsi qu'une température moyenne toujours inférieure à la température adiabatique.

Chapitre V : Conclusions et perspectives

Ce travail de thèse a permis de réaliser une avancée dans la caractérisation des profils de température et concentration d'un jet gazeux. La méthode couplée développée ici permet de déterminer des profils de température complexes (présentant deux maxima par exemple). Pour cela, une mesure Lidar est réalisée afin d'avoir un profil spatial de température avec une incertitude dépendante des gaz à l'origine de la combustion. Par exemple, une flamme méthane/air conduit à une erreur sur le profil de température Lidar comprise entre 7% et 20%. Une mesure en émission de rayonnement, fortement sensible aux températures maximales, permet de réduire l'erreur réalisée sur la température du profil Lidar et apporte l'information nécessaire à la détermination de la concentration de l'espèce choisie (le dioxyde de carbone ou l'eau en particulier puisque ces deux molécules sont les produits principaux de la majorité des réactions de combustion).

La première étape de ce travail de thèse fut de développer la méthode LIDAR. Le LIDAR regroupe un ensemble de méthodes qui à partir du signal rétrodiffusé d'une ou plusieurs impulsions laser dans le milieu étudié permet d'obtenir la distribution spatiale de certaines caractéristiques du milieu (température, concentration, pression, vitesse du vent, concentration en particules,…). C'est l'interaction entre le milieu étudié et l'impulsion laser qui permet l'analyse. Nous avons choisi la diffusion Rayleigh comme interaction fondamentale pour les raisons suivantes :

- Elle est élastique (La longueur de l'onde diffusée est la même que celle de l'onde incidente) ;
- Les sections efficaces de diffusion sont élevées (typiquement 1000 fois supérieures aux sections efficaces de diffusion Raman) ;
- Le temps caractéristique est suffisamment faible pour permettre une analyse des signaux diffusés à la picoseconde (contrairement à la fluorescence qui présente des temps de relaxation pouvant descendre à la microseconde).

La caméra Streak (à balayage de fente) nécessaire à l'acquisition des signaux rétrodiffusés fut approvisionnée dès le début de ce travail mais le laser YAG Ekspla ne le fut qu'un an plus tard. Les premiers essais ont été réalisés avec un laser blanc picoseconde de la marque Koheras prêté par le laboratoire FEMTO-ST. Ce laser émet des impulsions de 5ps sur une gamme spectrale continue de 0,4µm à 2,4µm. L'objectif était de réaliser un laser DIAL en sélectionnant deux signaux rétrodiffusés à deux longueurs d'onde et provenant de la même impulsion laser. L'énergie délivrée par ce laser était trop faible pour une utilisation dans cette configuration, mais il nous a permis d'obtenir les premiers résultats de rétrodiffusion Rayleigh dans une flamme. Une fois approvisionné, nous avons utilisé le laser YAG doublé (532nm) qui délivre des impulsions de 28,5ps de 10mJ. Ce laser nous a permis d'avoir une résolution spatiale de 5mm.

Une étude bibliographique approfondie a permis de comprendre les mécanismes qui régissent la diffusion Rayleigh ainsi que les facteurs d'influence sur la section efficace de diffusion Rayleigh pour une molécule donnée. En particulier, la loi en $1/\lambda^4$ sur la section efficace de diffusion Rayleigh nous a poussé à choisir une longueur d'onde la plus basse possible (532nm au lieu de 1064nm). Nous avons également vu que nombres de paramètres d'influence sur la section efficace de diffusion Rayleigh pouvaient être négligés tels que le facteur de correction qui tient compte de l'anisotropie des molécules ainsi que les effets de la température.

Deux méthodes de traitement des données Lidar ont été développées. La première utilise le signal rétrodiffusé dans la flamme et dans l'air afin d'avoir un profil de référence, correspondant à la fonction d'appareillage du système. La seconde utilise un algorithme de minimisation et permet une utilisation industrielle de la méthode dans des configurations telles que la mesure de référence ne peut pas être réalisée.

Le méthode en émission de rayonnement est un sujet de recherche du laboratoire initié par le Professeur CRABOL depuis les années 60 dont la continuité a été assurée par le Professeur HERVÉ en 1988 alors qu'il en est le directeur. Ce travail s'est donc inscrit dans le prolongement des travaux de recherche menés auparavant. En particulier, une étude a été réalisée avec François CLÉMENT, chercheur de l'INRIA, afin de coupler les mesures Lidar à l'inversion des mesures d'émission de rayonnement. Dans ce cadre, nous avons choisi de considérer le profil Lidar comme profil de référence à l'inversion. Il s'agit alors de sélectionner les points caractéristiques de ce profil. Le programme d'inversion cherche ensuite à optimiser les valeurs (températures et fraction molaire) de ces points afin de minimiser au maximum la fonction coût. Entre chaque point, une transformation affine est appliquée afin de conserver la forme initiale du profil Lidar.

Notre méthode originale a été appliquée à différentes typologies de flammes et dans différentes configurations. Elle a conduit à des résultats encourageants et à de multiples perspectives de développement. En particulier, elle a été appliquée à la mesure des profils de température et concentration dans les gaz d'échappement d'un turboréacteur de petite dimension. La Figure V-1 ci-après présente le profil de température obtenu.

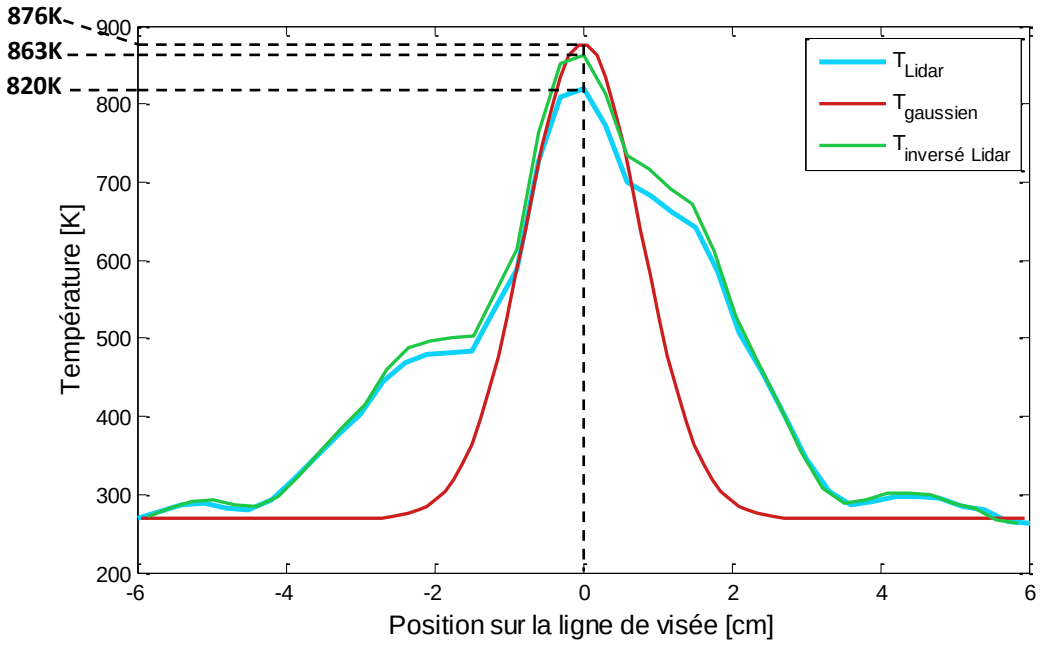


Figure V-1 : Profil de température mesuré par notre méthode couplée dans les gaz d'échappement d'un turboréacteur de petites dimensions. Profil de température Lidar (courbe bleue), profil inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte)

Elle a également été appliquée à un système composé de deux bruleurs méthane/air. La Figure V-2 en présente les profils de températures obtenus.

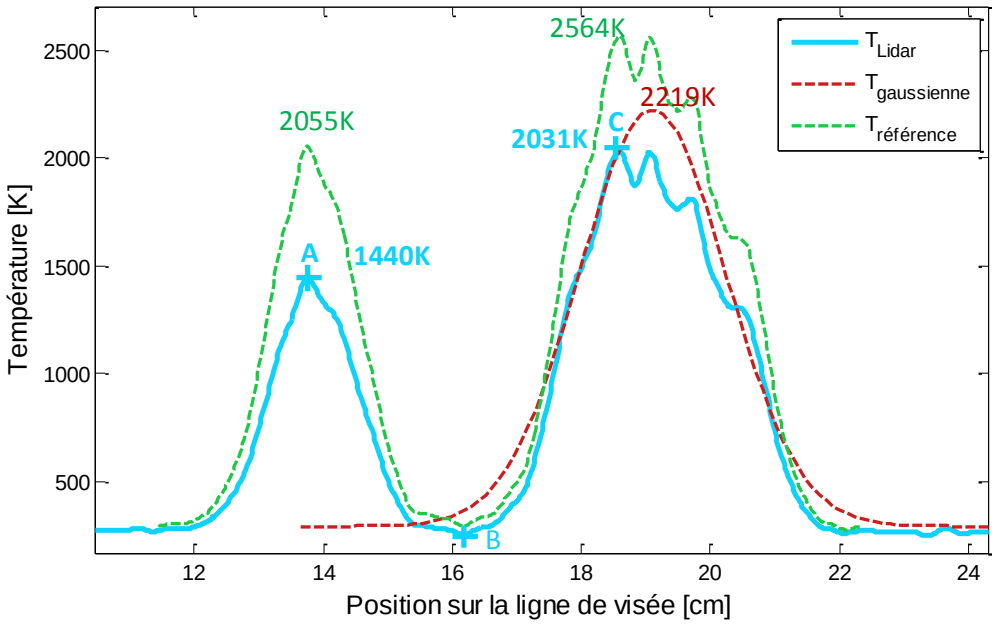


Figure V-2 : Profils de températures Lidar (courbe bleue), profil inversé via une paramétrisation gaussienne (courbe rouge) et inversé via une paramétrisation avec la courbe de référence (courbe verte) obtenus sur le système composé de deux bruleurs méthane/air.

La méthode a également été appliquée au banc d'essai d'un statoréacteur sur le site de MBDA de Bourges. Cette campagne de mesure était un véritable défi tant pour l'utilisation en milieu industriel du banc de mesure que pour la résistance des différents appareillages aux conditions acoustiques extrêmes (supérieures à 180dB sans protection). Les résultats n'ont pas encore pu être exploités à cause de la présence de particules sur le trajet des impulsions laser et de problèmes mécaniques sur la ligne du statoréacteur. Cependant, la campagne a démontré tout le potentiel de la méthode et la possibilité d'une utilisation dans un milieu industriel. Une nouvelle campagne de mesure est prévue avant la fin de l'année 2015.

Enfin, dans le cadre d'un contrat avec le CEA Saclay, une étude de faisabilité d'une mesure de température et concentration dans une réaction Na/H_2O a été réalisée sur une déflagration H_2/Air. Dans cette étude, seule la mesure par diffusion laser était appliquée et nous ne cherchions à obtenir que le profil de température. Les résultats ont aboutis à la faisabilité de la méthode dans le cadre d'une déflagration. La Figure V-3 présente les profils moyens de température le long de la ligne de visée aux cœurs de déflagrations réalisées avec différents mélanges H_2/air.

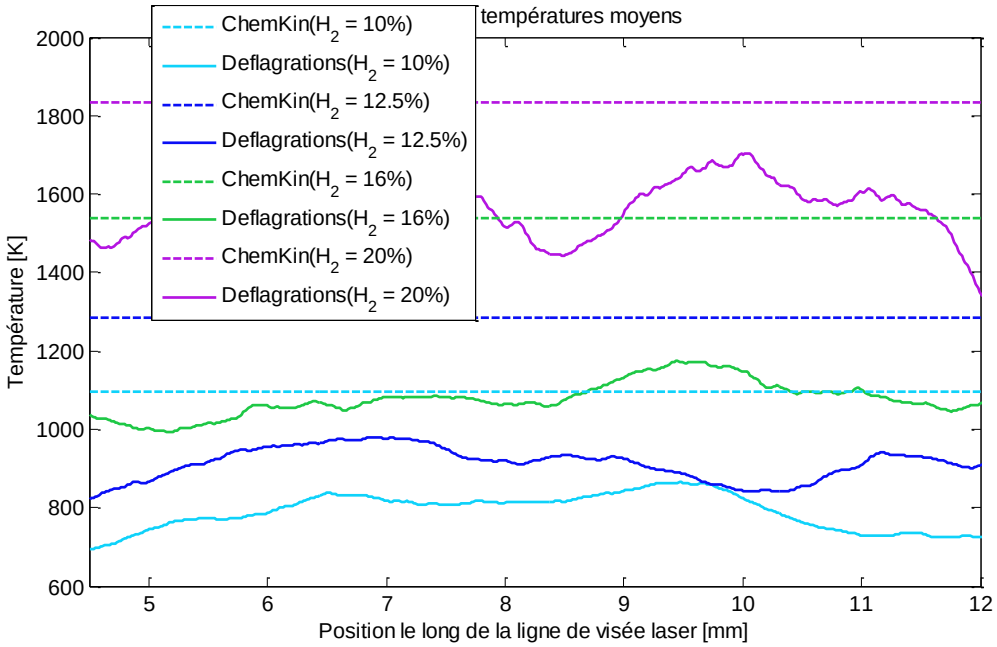


Figure V-3 : Températures moyennes pour des fractions molaires de 10%, 12,5%, 16% et 20% - comparaison avec les simulations ChemKin

Ce travail de thèse met avant le fort potentiel de notre méthode innovante tant pour des applications de recherche dans un contexte de laboratoire que pour des applications industrielles. La mesure des profils de température et concentration dans une réaction Na/H_2O devrait être menée dans les locaux du CEA Saclay dans le courant de l'année 2015/2016. Le banc expérimental prévu est présenté sur la Figure V-4. La mesure sera réalisée dans une sphère métallique dans laquelle il y aura un fond d'eau. Une seringue chauffée permettra de pousser du sodium jusqu'à ce qu'il touche la surface de l'eau. La mesure sera alors réalisée dans les gaz de combustion avec d'une part une mesure laser en diffusion latérale et d'autre part une mesure d'émission de rayonnement de l'eau à l'aide d'un spectromètre à réseau.

A court terme, une amélioration du banc de mesure peut être réalisée afin de pouvoir mener les mesures Lidar et en émission de rayonnement simultanément et selon la même ligne de visée. Ceci pourrait être fait en utilisant un miroir percé en son centre ou avec une lame dichroïque.

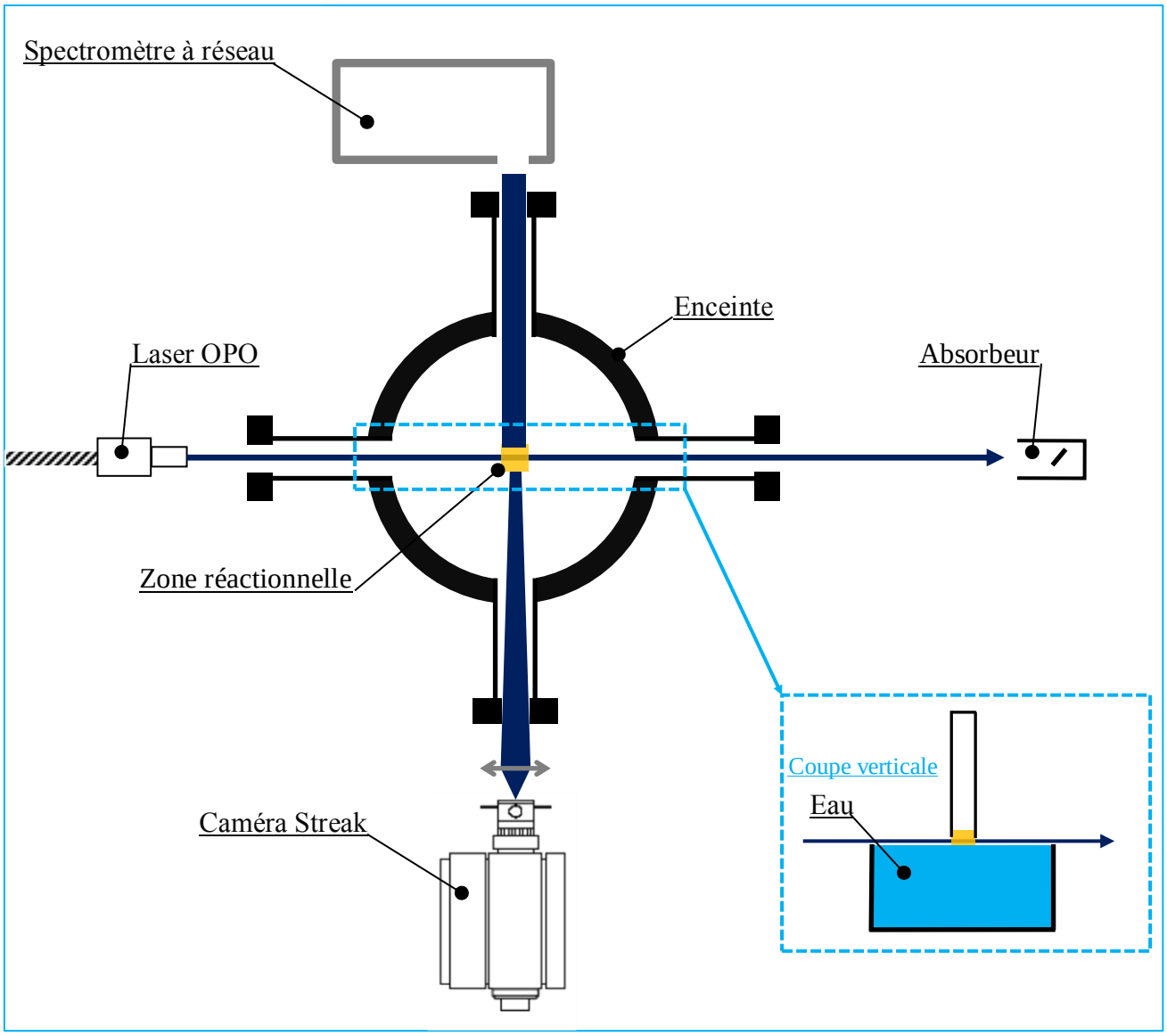


Figure V-4 : schéma de principe du banc de mesure qui sera mis en œuvre dans le cadre d'une mesure couplée sur une réaction Na/H_2O

Les différentes applications de la méthode qui ont réalisées au laboratoire conduisent à remettre en question le modèle utilisé dans l'inversion de l'équation du transfert radiatif et plus particulièrement les données de la base HITRAN-08 qui seraient imprécises. Les profils de température et fractions molaires obtenus dans les gaz d'échappement d'un turboréacteur dépendent du domaine spectral inversé. Nous avons mis en évidence l'existence d'un domaine spectral optimal qui conduit à une correspondance spectrale maximale. En fonction du domaine spectral choisi, la température ou la concentration semble privilégiée. Un travail d'analyse de cette observation doit être réalisé. Il est envisageable que ce travail d'analyse conduise à repenser le modèle d'inversion de l'équation du transfert radiatif. Par exemple en privilégiant une partie du spectre pour l'optimisation de la concentration et une autre partie pour la température. Cependant, ce phénomène peut également provenir de la base de données HITRAN-08 qui présente des erreurs aux températures et pressions élevées. En effet, cette base de données est extrapolée à partir de la température et de la concentration atmosphérique standard. Un travail de validation et/ou de reconstruction de la base de données sur le CO_2 semble donc nécessaire.

La méthode DIAL picoseconde pourrait être développée sur d'autres espèces plus absorbantes que la molécule d'eau. Une étude devra être menée pour trouver la molécule absorbante.

Une autre perspective serait de réaliser un système Lidar articulé autour de la diffusion Raman. Elle présente l'avantage d'avoir un spectre de diffusion dépendant de l'espèce diffusante. Cette caractéristique pourrait être utilisée afin de déterminer plus précisément le ou les profils de fraction molaire des différentes espèces présentes. La Figure V-5 est un exemple de banc expérimental qui pourrait être mis en œuvre dans ce cadre de méthode couplée : Lidar-Raman/émission de rayonnement [**79**] [**80**].

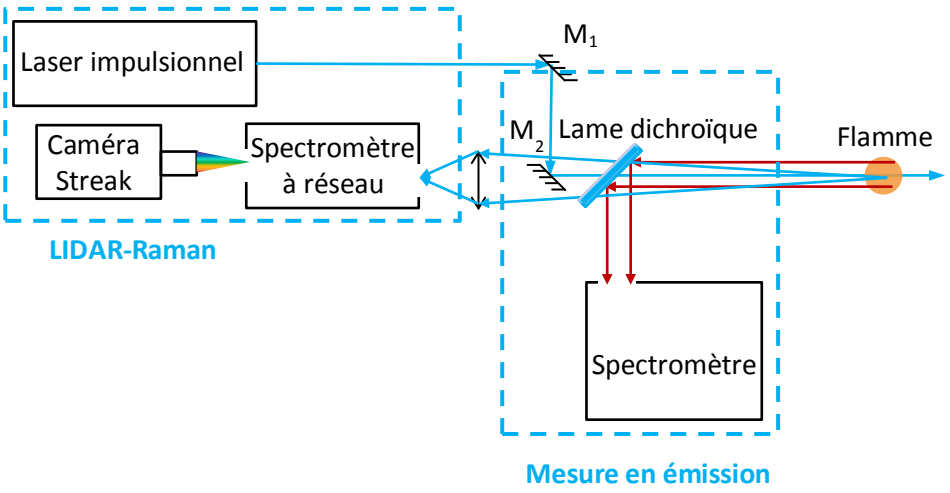


Figure V-5 : schéma de principe d'un banc de mesures couplées Lidar-Raman/émission de rayonnement

Toutefois, la difficulté de cette méthode réside dans la faible intensité du signal diffusé. Les premiers verrous au développement de cette méthode sont donc technologiques (existence d'un laser suffisamment énergétique avec des impulsions toujours de l'ordre de la picoseconde) et financiers.

Enfin, dans le cadre d'une industrialisation, une simplification et une miniaturisation du système sont envisageables en utilisant notamment des diodes laser et un capteur de 30GHz de bande passante associé à un oscilloscope.

Chapitre VI : Annexes

VI.A Section efficace de diffusion Rayleigh – Loi en 1/ λ^4 – Modèle de l'électron élastiquement lié

Nous traitons le problème par une approche classique de l'électrodynamique.

Étapes de calcul de la section efficace de diffusion Rayleigh :

1) Moment dipolaire : $\vec{D} = q\vec{r_e}e^{-j\omega t}$
2) Calcul du potentiel vecteur à partir de la densité de courant : $\vec{A}(\vec{r},t) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0 c^2}\int d^3r' \frac{\vec{j}\left(r',t-\frac{(r-r')}{c}\right)}{|r-r'|}$
3) Calcul du potentiel scalaire à partir de la Jauge de Lorentz : $\vec{\nabla}.\vec{A} + \mu\varepsilon\frac{\partial V}{\partial t} = 0$
4) Calcul de $\vec{B}$ à partir des équations de Maxwell : $\vec{B} = \vec{\nabla}\wedge\vec{A}$
5) Calcul de $\vec{E}$ à partir des équations de Maxwell : $\vec{E} = -\frac{\partial\vec{A}}{\partial t} - \overrightarrow{\nabla V}$
6) Calcul de la force de réaction de rayonnement : $\overrightarrow{F_{RR}} = \frac{q^2}{6\pi\varepsilon_0 c^3}\dddot{r}\vec{u} = \frac{2mr_0}{3c}\dddot{\vec{r}}$
7) Application de la 2ème loi de Newton à l'électron : $m\ddot{\vec{r}} + m\omega_0^2\vec{r} - \frac{2mr_0}{3c}\dddot{\vec{r}} = q\vec{E}(t)$
8) Calcul de la section efficace à partir de 7) et de : $\vec{r} = \overrightarrow{S_0}e^{-(\Gamma_{cl}t/2)\cos\omega_0 t}$ et $\vec{E}(t) = \overrightarrow{E_0}\cos\omega t$ avec $\Gamma_{cl} = \frac{2r_0}{3c}\omega_0^2 = \frac{4\pi r_0}{3\lambda_0}\omega_0$

On arrive à l'expression de la section efficace de diffusion Rayleigh ($\omega \ll \omega_0$) suivante :

$$\sigma(\omega) \approx \frac{8\pi}{3}r_0^2\left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^4$$

$$I_s = \frac{8\pi^4 N a^6}{\lambda^4 r^2}\left|\frac{m^2-1}{m^2+2}\right|^2 (1+cos^2\theta)I_i$$

VI.B Comparaison des Loi de Van der Waals et gaz parfait

La Figure VI-1 représente l'écart relatif de pression obtenue à partir des lois de Van der Waals et des gaz parfaits en fonction de la densité moléculaire pour une température de 293K.

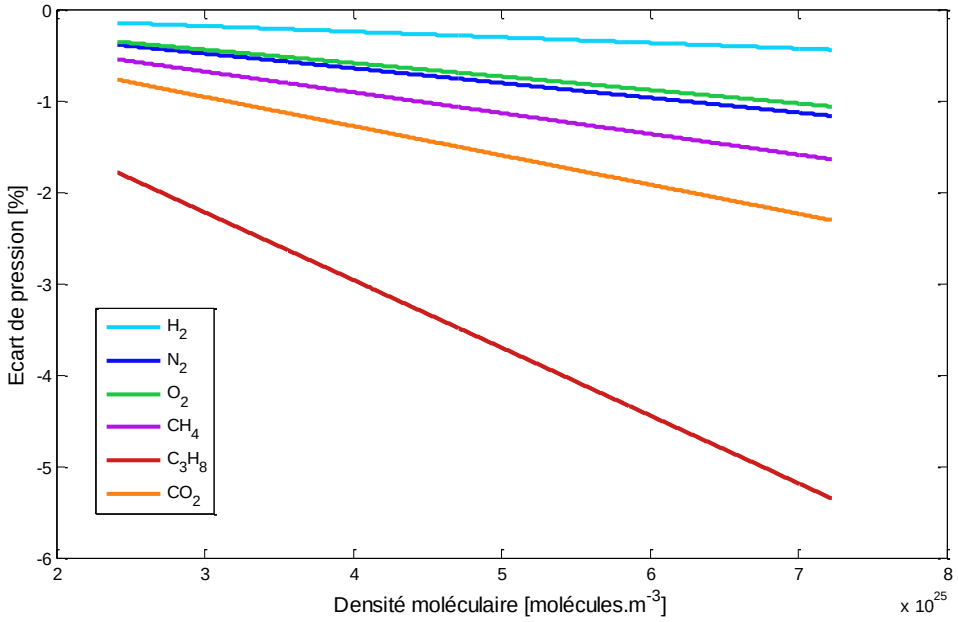


Figure VI-1 : Ecart relatif des pressions obtenues avec la loi de Van der Waals et la loi des gaz parfaits en fonction de la densité moléculaire à 293K.

Pour des densités moléculaires de l'ordre de $2{,}5.10^{25}$ molécules.m^{-3} (concentration type d'une atmosphère standard), l'écart de pression obtenu est inférieur à 2%.

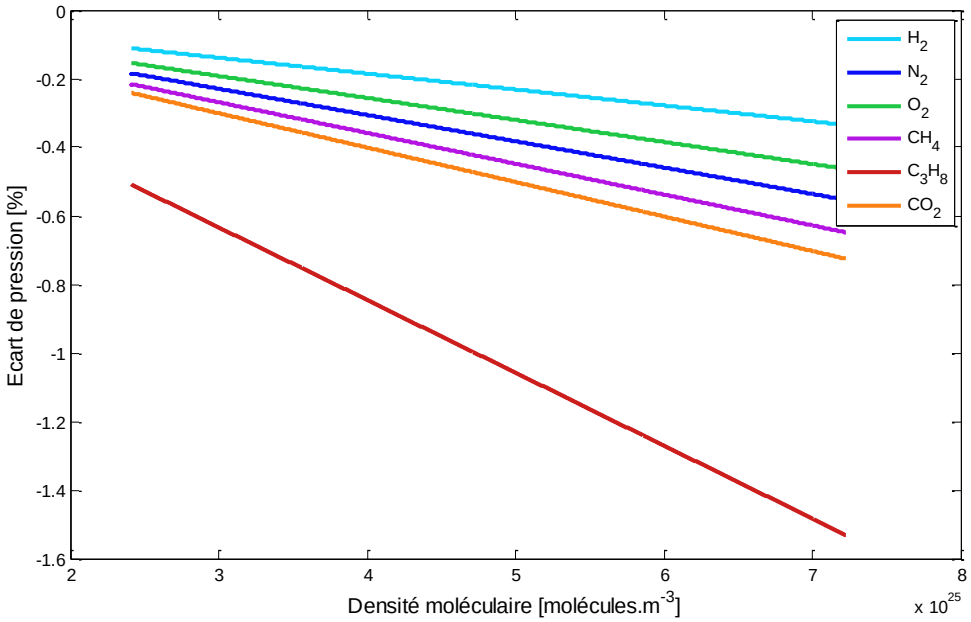


Figure VI-2 : Ecart relatif des pressions obtenues avec la loi de Van der Waals et la loi des gaz parfaits en fonction de la densité moléculaire à 2500K.

Aux températures élevées, ici 2500K, l'écart de pression calculée selon la loi de Van der Waals ou celle des gaz parfaits diminue. A 2500K, à une concentration égale à trois fois celle d'atmosphère ambiante, l'écart entre les deux méthodes de calcul est inférieur à 1,6%.

VI.C Vitesse d'une particule soumise au champ électrique d'une impulsion du laser YAG Picoseconde.

Nous considérons dans ce paragraphe des particules parfaitement sphériques de densité égale à 2. La durée d'impulsion Δt est égale à 30ps.

I.1.1. Energie d'un photon

Longueur d'onde $\lambda = 532nm$

$h = 6{,}63.10^{-34}\ SI$

$c = 2{,}99.10^{8}\ m.s^{-1}$

$$E_{photon} = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

Finalement, l'énergie de chaque photon est :

$$E_{photon} = 3.73.10^{-19} J$$

VI.C.1 Transfert d'impulsion du photon à la particule

$p_{photon} = \frac{h\nu}{c}$

$p_{paricule} = mV$

Conservation de l'impulsion dans le cas où le photon en transmet l'intégralité :

$$p_{photon} = p_{particule}$$

$$\Leftrightarrow \frac{h\nu}{c} = mV$$

$$\Leftrightarrow V = \frac{h\nu}{mc} = \frac{h}{m\lambda}$$

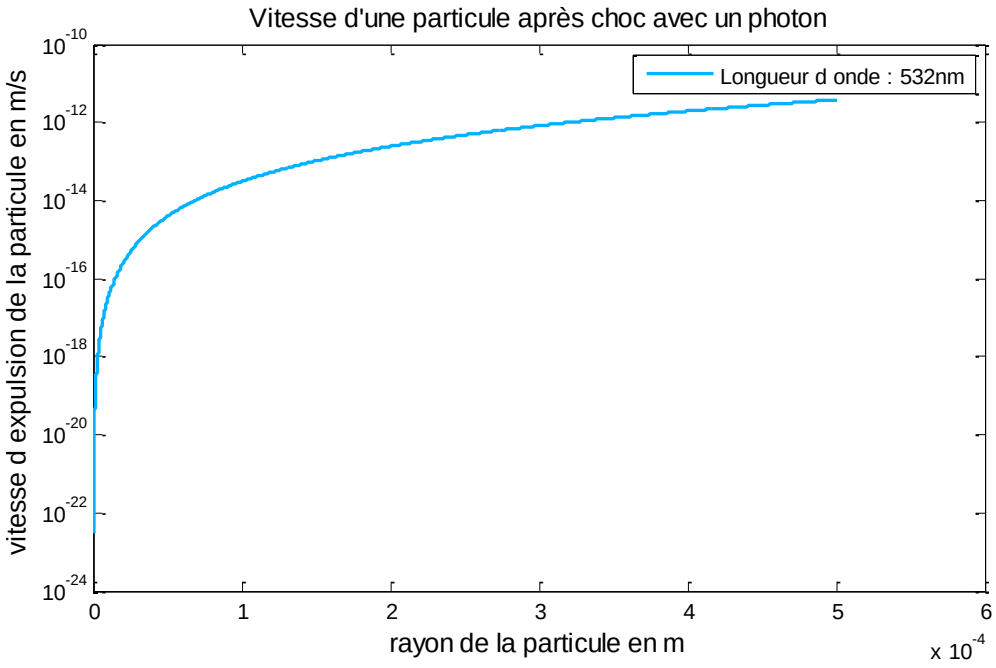


Figure VI-3 : Conversion de l'impulsion d'un photon en énergie cinétique d'une particule ne fonction de son rayon.

VI.C.2 Vitesse de la particule après le passage d'une impulsion laser

Surface d'une particule : $S_{particule} \approx \pi r^2$

Surface du faisceau laser : $S_{beam} \approx 20mm^2$

$$\sigma = \frac{S_{particule}}{S_{beam}}$$

Pour le laser YAG Pico Seconde à 532nm, chaque pulse représente environ$10mJ$.

On a vu plus haut que $E_{photon} = 3.73.10^{-19}J$.

On a donc par pulse un nombre de photons défini par :

$$N_{photon} = \frac{E_{pulse}}{E_{photon}} = 2{,}7.10^{15}$$

Nombre de photons impactant la particule par pulse :

$$N_{impacte} = N_{photon}.\sigma$$

Vitesse finale de la particule après le passage de l'impulsion :

$$V_{tot} = N_{impacte}.V$$

Finalement, la distance parcourue par la particule le temps de l'impulsion sera :

$$d = V_{tot} \times \Delta t$$

Où Δt est la durée d'impulsion.

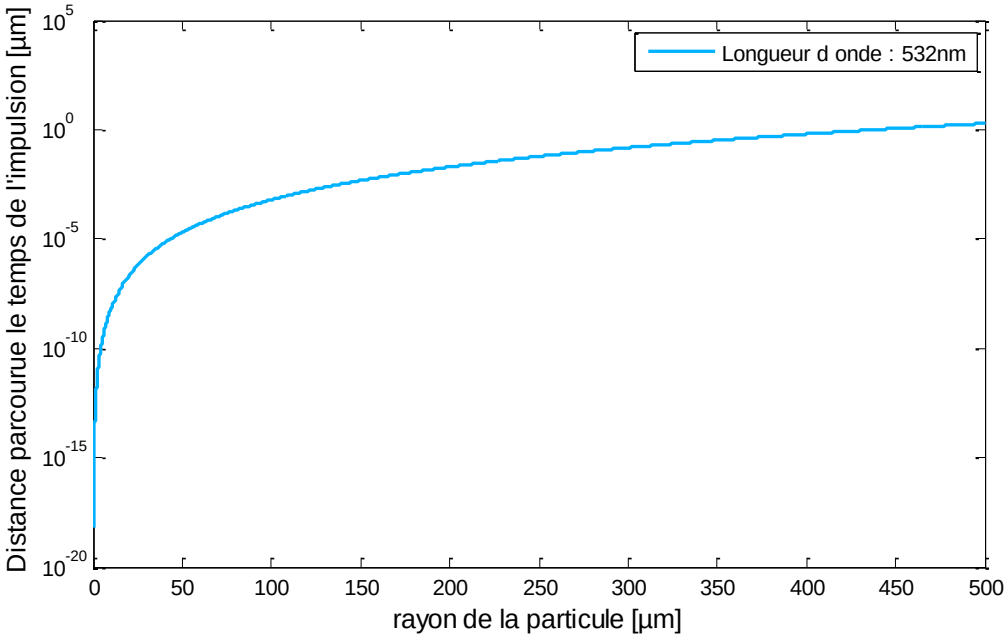


Figure VI-4 : Distance parcourue par une particule le temps de l'impulsion en fonction de son rayon.

VI.D Démonstration de l'équation régissant la méthode de Kurlbaum

La démonstration de l'équation Eq. I-9 s'inscrit dans l'hypothèse d'un volume étudié à l'équilibre thermodynamique et de température homogène. Le milieu environnant est non absorbant.

$$L_\sigma = L_\sigma^o(T_g) + \tau_g \left(L_\sigma^o(T_s) - L_\sigma^o(T_g)\right) \qquad \text{Eq. VI-1}$$

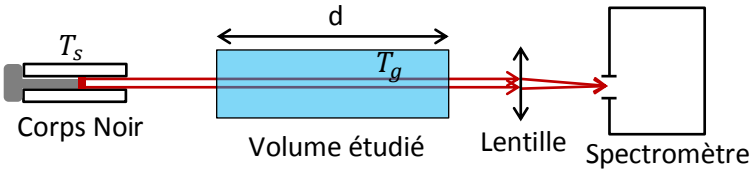


Figure VI-5 : Schéma de principe d'un banc de mesure selon la méthode de Kurlbaum

L'équation de départ est celle de la luminance d'une colonne de gaz chaud avec une paroi (chapitre II.D.3.3) :

$$L_\sigma = exp\left(-\int_0^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right) L_\sigma^o(T_s) + \int_0^d K_\sigma(\sigma,x)\; L_\sigma^o(T_g) exp\left(-\int_x^d K_\sigma(\sigma,x')\,dx'\right) dx \qquad \text{Eq. VI-2}$$

Or, puisque le milieu étudié est homogène, les coefficients d'absorption $K_\sigma(\sigma,x)$ sont constants et la luminance de chaque volume infinitésimal $dL_\sigma^o(T_g)$ est constante.

L'équation Eq. VI-2 devient :

$$L_\sigma = \tau_g L_\sigma^o(T_s) + \; K_\sigma L_\sigma^o(T_g) \int_0^d exp(-(d-x)\,K_\sigma)\,dx \qquad \text{Eq. VI-3}$$

$$\Leftrightarrow L_\sigma = \tau_g L_\sigma^o(T_s) + \; K_\sigma L_\sigma^o(T_g) \times \left[\frac{1}{K_\sigma} exp(-(d-x)\,K_\sigma)\right]_0^d$$

$$\Leftrightarrow L_\sigma = \tau_g L_\sigma^o(T_s) + \; L_\sigma^o(T_g) \times \left(exp(0) - exp(-d\,K_\sigma)\right)$$

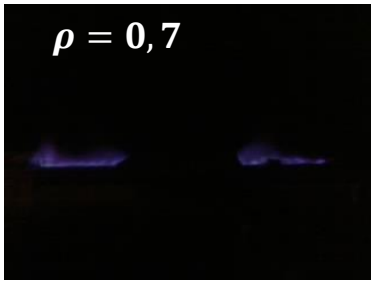
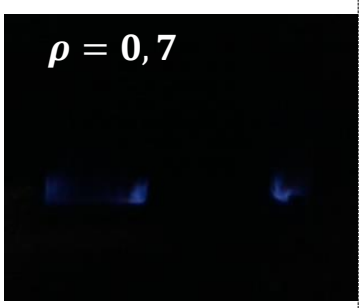
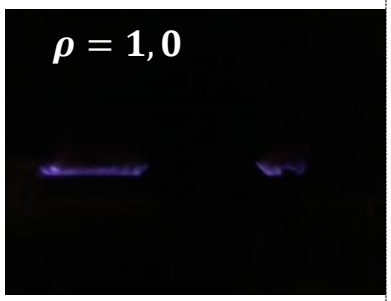
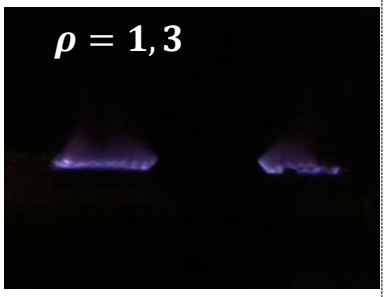
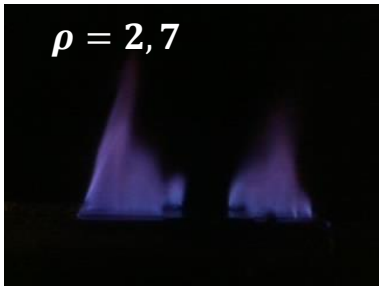
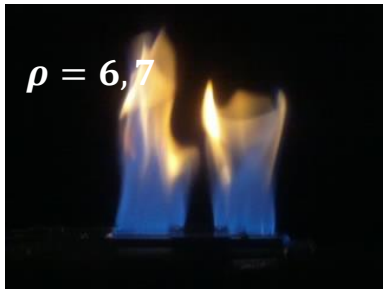
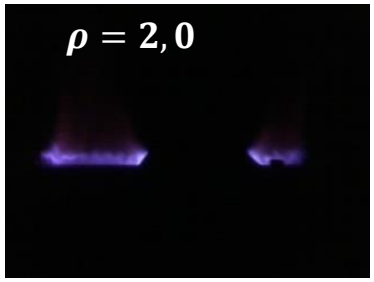
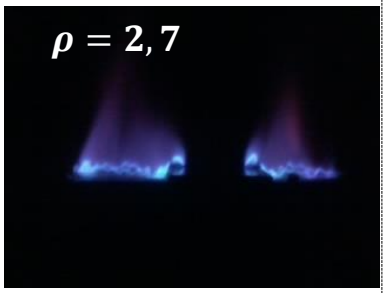
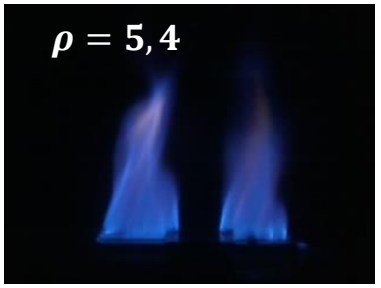
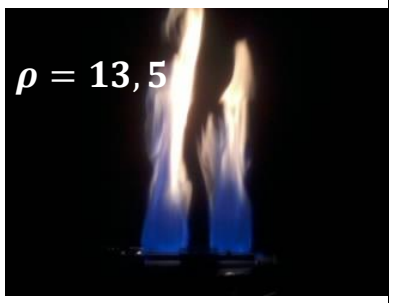
$$\Leftrightarrow L_\sigma = \tau_g L_\sigma^o(T_s) + \; L_\sigma^o(T_g) \times \left(1 - \tau_g\right)$$

$$\Leftrightarrow L_\sigma = \; L_\sigma^o(T_g) + \tau_g \left(L_\sigma^o(T_s) - \; L_\sigma^o(T_g)\right)$$

Si $T_g = T_s$, alors :

$$L_\sigma = \; L_\sigma^o(T_g) = \; L_\sigma^o(T_s)$$

VI.E Flamme CH_4/Air sur bruleur rampe en fonction de la richesse

Débit d'air [l.min^{-1}]	Rapport d'équivalence (Richesse en CH_4)				
	0,5	**0,75**	**1**	**2**	**5**
5	*Décrochage de la flamme*	*Décrochage de la flamme*			
10					
20	*Décrochage de la flamme*				

VI.F Flamme de diffusion CH_4/Air



Figure VI-6 : Flamme de diffusion CH_4/Air

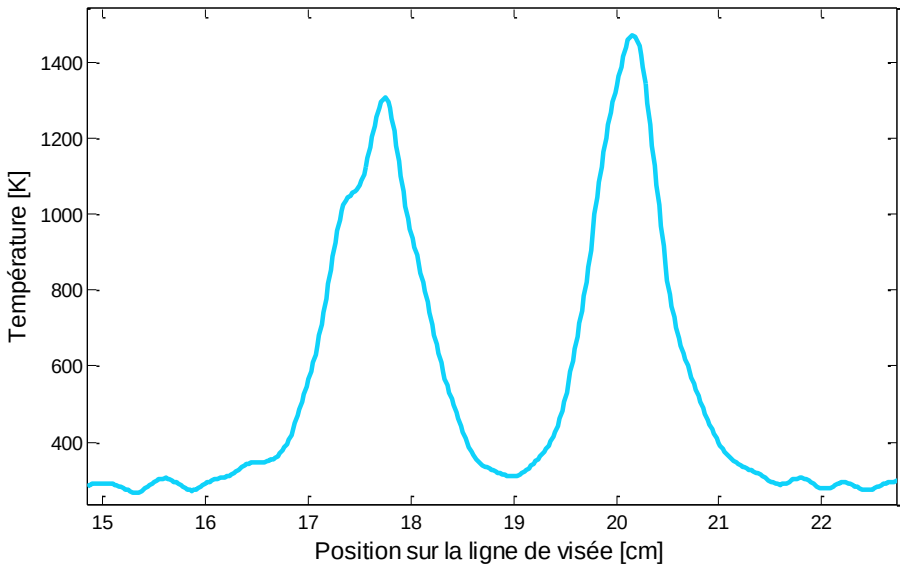


Figure VI-7 : Profil de température Lidar de la flamme de la Figure VI-6 mesuré à 20mm au-dessus du bec bunsen.

VI.G Fractions maximales en CO_2 et H_2O dans une réaction entre un alcane et l'air pour une réaction dans les proportions stœchiométriques

Nous cherchons ici à connaitre les fractions maximales en CO_2 et H_2O dans une réaction de combustion entre un alcane de formule chimique brute du type C_nH_{2n+2} et l'air dans les proportions stœchiométriques. La réaction chimique s'écrit :

$$C_nH_{2n+2} + \left(\frac{3n+1}{2}\right)O_2 + +3{,}76\left(\frac{3n+1}{2}\right)N_2 = nCO_2 + (n+1)H_2O \qquad \textbf{Eq. VI-4}$$

A partir de cette équation de combustion on déduit l'expression de la fraction molaire en CO_2 et H_2O à la fin de la réaction dans l'hypothèse d'une réaction totale en fonction du nombre d'atomes de carbones du combustible :

$$X_{CO_2}^{max} = \frac{n}{7{,}64n + 2{,}88} \qquad \textbf{Eq. VI-5}$$

$$X_{H_2O}^{max} = \frac{n+1}{7{,}64n + 2{,}88} \qquad \textbf{Eq. VI-6}$$

La Figure VI-8 représente ces fractions molaires en fonction de *n*.

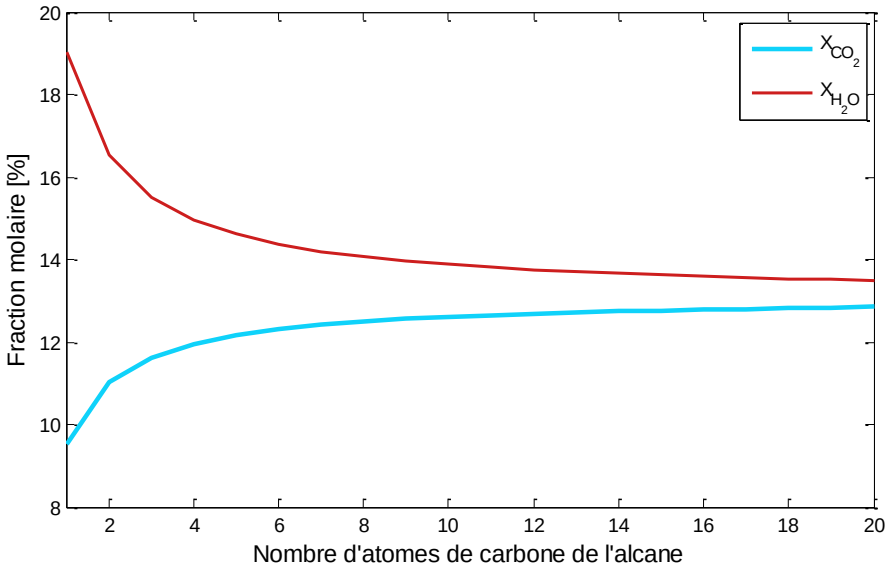


Figure VI-8 : Fractions molaires en CO_2 et H_2O à la fin d'une réaction totale et dans les proportions stœchiométriques entre un alcane et l'air en fonction du nombre d'atomes de carbones de l'alcane.

Finalement, la fonction $X_{CO_2}(n)$ étant monotone croissante, la fraction molaire en CO_2 maximale qui pourra être atteinte par une réaction de combustion entre un alcane à *n* atomes de carbone et l'air se calcule selon la limite suivante :

$$\lim_{n\to\infty}\left(X_{CO_2}^{max}\right) = \frac{1}{7{,}64} = 13{,}1\% \qquad \textbf{Eq. VI-7}$$

La fraction molaire maximale en H_2O sera quant à elle atteinte pour *n=1* puisque la fonction $X_{H_2O}(n)$ est monotone décroissante, soit 19%.

Table des figures

FIGURE 1 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN REACTEUR A NEUTRONS RAPIDES (RNR) 2

FIGURE 2 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN STATOREACTEUR 3

FIGURE I-1 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN THERMOCOUPLE 8

FIGURE I-2 : TEMPERATURE D'ARRET EN FONCTION DE LA VITESSE DU JET DE GAZ 10

FIGURE I-3 : EXEMPLES DE SONDES EN COUCHES MINCES (SOCIETE B+B SENSORS) 10

FIGURE I-4 : SONDE A ASPIRATION CHAUVIN ARNOUX 11

FIGURE I-5 : EXEMPLES DE SPECTRES D'ABSORPTION DU CO_2 A T = 1100K, T = 800K ET T = 400K. 16

FIGURE I-6 : DIAGRAMME DE NIVEAUX D'ENERGIE MIS EN ŒUVRE POUR LA DRASC 18

FIGURE I-7 : MESURE DE TEMPERATURE D'UNE FLAMME HYDROGENE/AIR PAR LA METHODE DRASC 18

FIGURE I-8 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN BANC DE MESURE DRASC 19

FIGURE I-9 : POMPAGE ET RETOUR A L'ETAT FONDAMENTAL D'UNE MOLECULE FLUORESCENTE. 19

FIGURE I-10 : MESURE EN NO PAR METHODE LIF AU SEIN D'UNE FLAMME HYDROGENE AIR (MEME FLAMME QU'A LA FIGURE I-7) 20

FIGURE I-11 : EFFET DE LA TEMPERATURE SUR L'INTENSITE DU SIGNAL DE FLUORESCENCE EMIS PAR LA MOLECULE DE CO_2. 21

FIGURE I-12 : SCHEMA DE PRINCIPE DU MONTAGE OPTIQUE DE KURLBAUM 21

FIGURE I-13 : SIMULATION DE LA METHODE DE KURLBAUM. DISPARITION DES RAIES DU CO_2. 22

FIGURE I-14 : EXEMPLE DE TETE DE BANDE DU CO_2 OBTENUE DANS LES ANNEES 60 PAR LE PR. CRABOL SUR UNE FLAMME DE GAZ NATUREL A T = 1173K. 24

FIGURE I-15 : DECOMPOSITION EN PELURE D'OIGNON D'UNE FLAMME A SYMETRIE CYLINDRIQUE AFIN D'EN DETERMINER COUCHE APRES COUCHE LE PROFIL DE TEMPERATURE. 25

FIGURE I-16 : PROFIL DE TEMPERATURE D'UNE FLAMME DE BEC MECKER. 25

FIGURE I-17 : MESURE PAR EMISSION DE RAYONNEMENT CROISEE [38] 25

FIGURE I-18 : EXEMPLE DE CHOIX DE TROIS RAIES POUR UNE ETUDE A PARTIR DU SPECTRE DE L'EAU [9] 26

FIGURE I-19 : TEMPERATURE ET FRACTION MOLAIRE MESUREES SUR UN TURBOREACTEUR ROLLS ROYCE. COMPARAISON ENTRE MESURE SPECTRALE ET INTRUSIVE. 26

FIGURE I-20 : NOMBRE DE PARAMETRES IDENTIFIABLES EN FONCTION DU BRUIT DE LA MESURE. POUR UN BRUIT DE 1%, IL Y A 6 PARAMETRES IDENTIFIABLES [7]. 27

FIGURE I-21 : SCHEMA DU MONTAGE TYPE DE NOTRE METHODE COUPLEE LIDAR-RAYLEIGH/EMISSION DE RAYONNEMENT 28

FIGURE II-1 : PROCESSUS DE LA DIFFUSION DE MIE 33

FIGURE II-2 : SECTION EFFICACE DE RETRODIFFUSION DE MIE SUR UNE PARTICULE SPHERIQUE D'EAU POUR UNE ONDE INCIDENTE DE LONGUEUR D'ONDE DE 800NM. 34

FIGURE II-3 : DOMAINE DE DETECTABILITE DE LA DIFFUSION RAYLEIGH SELON LA FRACTION VOLUMIQUE DES PARTICULES ET DU PARAMETRE DE TAILLE POUR UNE LONGUEUR D'ONDE DE 532NM ET UNE COLONNE DE GAZ ANALYSEE SUR 30CM. ECHELLE LOGARITHMIQUE EN ORDONNEES. 35

FIGURE II-4 : APPROCHE ELECTROMAGNETIQUE DE LA DIFFUSION RAYLEIGH. RAYONNEMENT DIPOLAIRE. 36

FIGURE II-5 : APPROCHE QUANTIQUE DE LA DIFFUSION RAYLEIGH. NIVEAUX D'ENERGIE. 36

FIGURE II-6 : TRANSITIONS ELECTRONIQUES ET DE ROTATION-VIBRATION. N : NIVEAUX ELECTRONIQUES, Y : NIVEAUX VIBRATIONNELS, J : NIVEAUX ROTATIONNELS 37

FIGURE II-7 : ECART RELATIF SUR LA SECTION EFFICACE DE DIFFUSION DIFFERENTIELLE ENTRE LA PRISE EN COMPTE DU FACTEUR DE LORENTZ-LORENZ OU NON EN FONCTION DE L'INDICE DE REFRACTION 38

FIGURE II-8 : PROFIL DE SECTION EFFICACE ANGULAIRE DE DIFFUSION RAYLEIGH EN FONCTION DU PLAN D'OBSERVATION DU SIGNAL DIFFUSE. LE VECTEUR $\vec{N}$ INDIQUE LE SENS DE PROPAGATION DU RAYON INCIDENT. LA FIGURE (A) PLACE L'OBSERVATEUR DANS UN PLAN ORTHOGONAL AU CHAMP ELECTRIQUE INCIDENT. LA FIGURE (B) PLACE L'OBSERVATEUR DANS LE PLAN DU CHAMP ELECTRIQUE INCIDENT. 39

FIGURE II-9: PROFIL DE DIFFUSION EN FONCTION DE L'ANGLE ENTRE LE RAYON INCIDENT ET LE RAYON DIFFUSE POUR UNE LUMIERE INCIDENTE NATURELLE. 39

FIGURE II-10 : ECART RELATIF ENTRE LA SECTION EFFICACE DE DIFFUSION RAYLEIGH DE L'AZOTE RELATIVE A L'AIR EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE PAR RAPPORT A LA SECTION EFFICACE DE L'AZOTE RELATIVE A L'AIR A 254NM 42

FIGURE II-11 : ECART RELATIF ENTRE LA SECTION EFFICACE DE DIFFUSION RAYLEIGH DE L'OXYGENE RELATIVE A L'AIR EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE PAR RAPPORT A LA SECTION EFFICACE DE L'OXYGENE RELATIVE A L'AIR A 254NM 42

FIGURE II-12 : DIAGRAMME D'ENERGIE DE LA DIFFUSION RAMAN. 45

FIGURE II-13 : SPECTRES DU DECALAGE RAMAN DU METHANE, ETHYLENE, ETHANE ET DIMETHYLE ETHER. 46

FIGURE II-14 : SCHEMA D'UNE FLAMME DE DIFFUSION AVEC SON PROFIL DE TEMPERATURE CARACTERISTIQUE ASSOCIE. 49

FIGURE II-15 : FLAMME DE DIFFUSION LAMINAIRE CH_4/AIR 49

FIGURE II-16 : FLAMME DE DIFFUSION LAMINAIRE H_2/AIR 49

FIGURE II-17 : SCHEMA D'UNE FLAMME DE PRE-MELANGE AVEC SON PROFIL DE TEMPERATURE CARACTERISTIQUE ASSOCIE. 50

FIGURE II-18 : FLAMME DE PRE-MELANGE LAMINAIRE CH_4/AIR 50

FIGURE II-19 : FLAMME DE PRE-MELANGE LAMINAIRE H_2/AIR 50

FIGURE II-20 : CONCENTRATIONS ET TEMPERATURE TYPES AU TRAVERS UN FRONT DE FLAMME D'ECOULEMENT LAMINAIRE (FLAMMES DE DIFFUSION OU DE PRE-MELANGE) 51

FIGURE II-21 : SECTION EFFICACE RELATIVE A L'AIR EN FONCTION DE L'AVANCEMENT DE LA REACTION METHANE/AIR ET DE LA RICHESSE INITIALE (Φ) DANS LES LIMITES D'INFLAMMABILITE 53

FIGURE II-22 : ECART RELATIF DES SECTIONS EFFICACES MOYENNES DU MILIEU REACTIONNEL ENTRE L'AVANCEMENT INITIAL ET L'AVANCEMENT FINAL 54

FIGURE II-23 : SECTION EFFICACE RELATIVE A L'AIR EN FONCTION DE L'AVANCEMENT DE LA REACTION METHANE/AIR ET DE LA RICHESSE INITIALE (Φ) DANS LES LIMITES D'INFLAMMABILITE 55

FIGURE II-24 : ECART RELATIF DES SECTIONS EFFICACES MOYENNES DU MILIEU REACTIONNEL ENTRE L'AVANCEMENT INITIAL ET L'AVANCEMENT FINAL 56

FIGURE II-25 : SECTION EFFICACE RELATIVE A L'AIR EN FONCTION DE L'AVANCEMENT DE LA REACTION HYDROGENE/AIR ET DE LA RICHESSE INITIALE (Φ) DANS LES LIMITES D'INFLAMMABILITE 58

FIGURE II-26 : ECART RELATIF DES SECTIONS EFFICACES MOYENNES DU MILIEU REACTIONNEL ENTRE L'INSTANT INITIAL ET L'AVANCEMENT FINAL 58

FIGURE II-27 : PROCESSUS DE TRANSFORMATION ADIABATIQUE ISOBARE 59

FIGURE II-28 : PROCESSUS DE TRANSFORMATION ADIABATIQUE ISOBARE AVEC ETAT INTERMEDIAIRE 60

FIGURE II-29 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN SYSTEME LIDAR 62

FIGURE II-30 : IMPULSION LASER CONSTANTE DE DUREE EGALE A UNE PERIODE D'OSCILLATION POUR UN LASER CENTRE A 532NM. 63

FIGURE II-31 : SCHEMA DE PRINCIPE DE DIFFUSION SELON LA POSITION ET LE TEMPS. 63

FIGURE II-32 : FACTEUR DE TRANSMISSION DE H_2O A 20°C 64

FIGURE II-33 : FACTEUR DE TRANSMISSION DE H_2O A 2000°C 65

FIGURE II-34 : FACTEUR DE TRANSMISSION POUR 100% DE CO_2 A 20°C ET 2000°C. 65

FIGURE II-35 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN SYSTEME LIDAR AVEC PRISE EN COMPTE DES ZONES AMONT ET AVAL. 66

FIGURE II-36 : SIGNAL TOTAL OBSERVE PAR LA CAMERA A UN INSTANT T_{C1} 67

FIGURE II-37 : IMPULSION LASER YAG A 532NM MESURE DIRECTEMENT SUR LA CAMERA STREAK AVEC UNE FENETRE TEMPORELLE DE 300PS, SOIT UNE RESOLUTION TEMPORELLE DE 1,7PS. 67

FIGURE II-38 : LONGUEUR D'ONDE ABSORBEE ET TRANSMISE. 68

FIGURE II-39 : DOMAINES DU SPECTRE ELECTROMAGNETIQUE 71

FIGURE II-40 : DIRECTION D'EMISSION ET ANGLE SOLIDE POUR L'HEMISPHERE DE RAYON UNITE [7] 72

FIGURE II-41 : SCHEMA D'UN CORPS NOIR AVEC ORIFICE 73

FIGURE II-42 : LUMINANCE SPECTRALE DE CORPS NOIR POUR DIFFERENTES TEMPERATURES ENTRE 0 ET 15000CM^{-1} 73

FIGURE II-43 : LUMINANCE SPECTRALE INCIDENTE A UN VOLUME DE GAZ ELEMENTAIRE 74

FIGURE III-1 : ECART RELATIF ENTRE LA SECTION EFFICACE DE L'AIR ET CELLE DES PRODUITS DE COMBUSTION DE LA REACTION ENTRE LE METHANE ET L'AIR (EQ. III-9) 79

FIGURE III-2 : ECART RELATIF ENTRE LA SECTION EFFICACE DE L'AIR ET CELLE DES PRODUITS DE COMBUSTION DE LA REACTION ENTRE L'OCTANE ET L'AIR (EQUATION EQ. III-11). 80

FIGURE III-3 : ECART RELATIF ENTRE LA SECTION EFFICACE DE L'AIR ET CELLE DES PRODUITS DE COMBUSTION DE LA REACTION ENTRE L'HYDROGENE ET L'AIR (EQUATION EQ. III-12) 81

FIGURE III-4 : PROFIL DE TEMPERATURE OBTENU POUR E = 1MM 82

FIGURE III-5 : PROFIL DE TEMPERATURE OBTENU POUR E = 3MM 82

FIGURE III-6 : PROFIL DE TEMPERATURE OBTENU POUR E = 5,5MM 82

FIGURE III-7 : PROFIL DE TEMPERATURE OBTENU POUR E = 9,5MM 82

FIGURE III-8 : SCHEMA RESUME DES FIGURE III-4 A FIGURE III-7 83

FIGURE III-9 : ZOOM SUR LES COURBES DE TEMPERATURE DE LA FIGURE III-8 83

FIGURE III-10 : MATRICE DE DIFFUSION SIMULEE POUR UNE FLAMME DE PROFIL DE TEMPERATURE GAUSSIEN DE 2500K, DE LARGEUR A MI-HAUTEUR DE 3CM ET UNE IMPULSION LASER DE 150PS. 84

FIGURE III-11 : PROFIL DE TEMPERATURE INVERSE 85

FIGURE III-12 : MATRICE DE DIFFUSION SIMULEE POUR UNE FLAMME DE PROFIL DE TEMPERATURE GAUSSIEN DE 2500K, DE LARGEUR A MI-HAUTEUR DE 3CM ET UNE IMPULSION LASER DE 28,5PS. 85

FIGURE III-13 : PROFIL DE TEMPERATURE INVERSE 86

FIGURE III-14 : SCHEMA DE PRINCIPE DE LA CAMERA STREAK 87

FIGURE III-15 : PHOTO DE LA CAMERA STREAK OPTRONIS SC-10 87

FIGURE III-16 : SENSIBILITE SPECTRALE DE LA PHOTOCATHODE S25 88

FIGURE III-17 : SCHEMA DE PRINCIPE DU TUBE STREAK 89

FIGURE III-18 : TIMING DU PROCESSUS DE BALAYAGE 89

FIGURE III-19 : PRINCIPE DU BALAYAGE SYNCHRONISE 90

FIGURE III-20 : JITTER MESURE SUR 100 IMPULSIONS DU LASER YAG – FENETRE TEMPORELLE DE 1000PS 91

FIGURE III-21 : EVOLUTION DU JITTER MESURE SUR 100 IMPULSIONS DU LASER YAG – FENETRE TEMPORELLE DE 1000PS 91

FIGURE III-22 : JITTER MESURE SUR 100 IMPULSIONS DU LASER YAG – FENETRE TEMPORELLE DE 2000PS 92

FIGURE III-23 : EVOLUTION DU JITTER MESURE SUR 100 IMPULSIONS DU LASER YAG – FENETRE TEMPORELLE DE 2000PS 93

FIGURE III-24 : COURBES OBTENUES LE LONG D'UNE LIGNE DE PIXELS CONTENANTS LE MAXIMUM D'INTENSITE DES IMAGES PROVENANT DE LA CAMERA STREAK (VOIR FIGURE III-25 ET FIGURE III-26, LIGNES BALCNHES) 93

FIGURE III-25 : IMAGE D'UNE SOURCE CONTINUE AVEC UNE OUVERTURE MINIMUM DE LA FENTE D'ENTREE 94

FIGURE III-26 : IMAGE D'UNE SOURCE CONTINUE AVEC UNE OUVERTURE FENTE DONNANT LIEU A UNE SATURATION DES DETECTEURS 94

FIGURE III-27 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN LASER OPO 96

FIGURE III-28 : ENERGIE PAR IMPULSION EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE DU LASER. 97

FIGURE III-29 : SCHEMA DE PRINCIPE DU SYSTEME LASER DE POMPE / OPO. 97

FIGURE III-30 : REPARTITION DES DUREES D'IMPULSIONS DU LASER YAG 98

FIGURE III-31 : SCHEMA DU PROCESSUS ITERATIF NUMERIQUE DE MINIMISATION DE LA FONCTION COUT 102

FIGURE III-32 : EXEMPLE DE PARAMETRISATION EN POLYNOMES DE HERMITE 107

FIGURE III-33 : EXEMPLE DE COURBE DE REFERENCE 108

FIGURE III-34 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE LA COLONNE DE GAZ 109

FIGURE III-35 : VALEURS ET VECTEURS SINGULIERS 110

FIGURE III-36 : VALEURS ET VECTEURS SINGULIERS 111

FIGURE III-37 : VECTEURS SINGULIERS DANS L'ESPACE PARAMETRES 112

FIGURE III-38 : VALEURS SINGULIERES NORMEES 112

FIGURE III-39 : SPECTRE D'EMISSION DE L'EAU ENTRE 12000CM^{-1} ET 12400CM^{-1} 113

FIGURE III-40 : ZOOM SUR LE SPECTRE DE L'EAU ENTRE 12139CM^{-1} ET 12161CM^{-1} 113

FIGURE III-41 : PROFIL DE TEMPERATURE GAUSSIEN SIMULE 114

FIGURE III-42 : PROFIL DE CONCENTRATION GAUSSIEN SIMULE 114

FIGURE III-43 : SPECTRE D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 CALCULEE A PARTIR DE LA BASE DE DONNEES HITRAN 114

FIGURE III-44 : VALEUR ABSOLUE DE LA DIFFERENCE RELATIVE ENTRE LES SPECTRES SA ET SB 114

FIGURE III-45 : ZOOM AUTOUR DU POINT J_1 DE LA FIGURE III-43 114

FIGURE III-46 : SCHEMA D'UN RESEAU DE DIFFRACTION EN REFLEXION 116

FIGURE III-47 : SCHEMA D'UN RESEAU DE DIFFRACTION EN TRANSMISSION 116

FIGURE III-48 : SCHEMA OPTIQUE DU SPECTROMETRE A TRANSFORMEE DE FOURIER NICOLET 8700 117

FIGURE III-49 : PHOTO DU SPECTROMETRE NICOLET 8700 117

FIGURE III-50 : MONTAGE TYPE DU BANC DE MESURE COUPLEE. LIDAR-RAYLEIGH & EMISSION DE RAYONNEMENT. 118

FIGURE III-51 : MATRICE DE DIFFUSION RAYLEIGH D'UNE IMPULSION LASER DE 28,5PS DE LA LARGEUR A MI-HAUTEUR. 120

FIGURE III-52 : SPECTRE D'EMISSION DE RAYONNEMENT MESURE ENTRE 2000CM^{-1} ET 4000CM^{-1} 120

FIGURE III-53 : PROFIL DE RETRODIFFUSION CALCULE A PARTIR DE LA MATRICE DE DIFFUSION (FIGURE III-51). 120

FIGURE III-54 : SPECTRE D'EMISSION DE RAYONNEMENT DANS LA GAMME SPECTRALE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. 120

FIGURE III-55 : PROFIL DE TEMPERATURE ISSU DU PROFIL DE RETRODIFFUSION (FIGURE III-53). 120

FIGURE III-56 : SPECTRE D'EMISSION EN LUMINANCE DANS LA GAMME SPECTRALE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. 120

FIGURE III-57 : PROFIL DE TEMPERATURE INVERSE 120

FIGURE III-58 : PROFIL DE FRACTION MOLAIRE INVERSE 120

FIGURE III-59 : PHOTO DE LA FLAMME CH_4/AIR MISE EN ŒUVRE SUR LE BRULEUR RAMPE POUR UN DEBIT DE 10$L.MIN^{-1}$ POUR L'AIR ET 1,5$L.MIN^{-1}$ POUR LE METHANE 121

FIGURE III-60 : PROFILS DE TEMPERATURE OBTENUS A PARTIR DE PLUSIEURS MESURES SUR UNE MEME FLAMME CH_4/AIR DE LA FIGURE III-59 122

FIGURE III-61 : PROFILS DE TEMPERATURE OBTENUS A PARTIR DE PLUSIEURS MESURES SUR UNE MEME FLAMME CH_4/AIR AVEC UN DEBIT DE 10$L.MIN^{-1}$ POUR L'AIR ET 4$L.MIN^{-1}$ POUR LE METHANE. 122

FIGURE III-62 : PROFILS DE TEMPERATURE OBTENUS A PARTIR DE PLUSIEURS MESURES SUR UNE MEME FLAMME CH_4/AIR AVEC UN DEBIT DE 10$L.MIN^{-1}$ POUR L'AIR ET 10$L.MIN^{-1}$ POUR LE METHANE 123

FIGURE III-63 : PROFIL DE TEMEPRATURE LE LONG DE LA POSITION VERTICALE 123

FIGURE III-64 : TEMPERATURE ADIABATIQUE A L'EQUILIBRE THERMODYNAMIQUE D'UNE FLAMME METHANE/AIR EN FONCTION DE LA RICHESSE INITIALE DES REACTIFS 124

FIGURE III-65 : FRACTIONS MOLAIRES EN CO_2 ET H_2O D'UNE COMBUSTION ADIABATIQUE METHANE/AIR A L'EQUILIBRE THERMODYNAMIQUE EN FONCTION DE LA RICHESSE INITIALE DES REACTIFS 124

FIGURE III-66 : PHOTO DE LA FLAMME DE METHANE/AIR UTILISEE POUR LA VALIDATION DE LA METHODE COUPLEE. 125

FIGURE III-67 : TETE DE BANDE DU CO_2 MESUREE 125

FIGURE III-68 : PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR 125

FIGURE III-69 : PROFILS DE TEMPERATURES LIDAR (COURBE BLEUE), INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE). 126

FIGURE III-70 : PROFILS DE FRACTIONS MOLAIRES INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE BLEUE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE ROUGE). 127

FIGURE III-71 : FRACTIONS MOLAIRES EN H_2O ET CO_2 EN FONCTION DE LA TEMPERATURE POUR UNE COMBUSTION ADIABATIQUE METHANE/AIR AVEC UNE RICHESSE INITIALE DE 1,13 128

FIGURE III-72 : SPECTRES D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. S_{MESURE} CORRESPOND A LA MESURE, $S_{GAUSSIENNE}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE ET $S_{REFERENCE}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE. 128

FIGURE III-73 : ZOOM SUR UNE PORTION DU SPECTRE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 DE LA FIGURE III-72 129

FIGURE III-74 : FRACTION MOLAIRE EN H_2O EN FONCTION DE LA TEMPERATURE POUR UNE COMBUSTION ADIABATIQUE HYDROGENE/AIR AVEC UNE RICHESSE INITIALE DE 1 129

FIGURE IV-1 : PHOTO DE LA FLAMME HYDROGENE/AIR DE PRE-MELANGE INCLINEE AVEC LE PASSAGE DU FAISCEAU LASER (FLECHE VERTE) 134

FIGURE IV-2 : PROFIL DE TEMPERATURE DE LA FLAMME HYDROGENE/AIR MISE EN ŒUVRE SUR LE BRULEUR DE PRE-MELANGE INCLINE. 134

FIGURE IV-3 : PHOTO DE LA FLAMME METHANE/AIR DE DIFFUSION INCLINEE AVEC LE PASSAGE DU FAISCEAU LASER (FLECHE VERTE) 135

FIGURE IV-4 : PROFIL DE TEMPERATURE PAR MESURE LIDAR 135

FIGURE IV-5 : PROFIL DE TEMPERATURE OBTENU PAR THERMOCOUPLE DE TYPE S 135

FIGURE IV-6 : SCHEMA ILLUSTRANT LE BILAN DES FLUX DE CHALEUR AUTOUR D'UN THERMOCOUPLE PLONGE DANS UN JET GAZEUX CHAUD. 136

FIGURE IV-7 : ECART DE TEMPERATURE ABSOLUE ENTRE LA TEMPERATURE VRAIE ET LA TEMPERATURE THERMOCOUPLE DANS UN JET GAZEUX EN FONCTION DE SE TEMPERATURE POUR UN COEFFICIENT DE CONVECTION H DE 200 $W.M^{-2}.K^{-1}$. 137

FIGURE IV-8 : ECART DE TEMPERATURE ABSOLUE ENTRE LA TEMPERATURE VRAIE ET LA TEMPERATURE THERMOCOUPLE DANS UN JET GAZEUX EN FONCTION DE SE TEMPERATURE POUR UN COEFFICIENT DE CONVECTION H DE 50 $W.M^{-2}.K^{-1}$. 137

FIGURE IV-9 : PHOTO DE LA FLAMME DE PRE-MELANGE METHANE/AIR MISE EN ŒUVRE SUR LE BRULEUR RAMPE. 137

FIGURE IV-10 : PROFIL DE TEMPERATURE DE LA FLAMME METHANE/AIR MISE EN ŒUVRE SUR LE BRULEUR RAMPE. TRAITEMENT EFFECTUE PAR L'INVERSION DE L'EQUATION DU LIDAR. 138

FIGURE IV-11 : PHOTO DU TURBOREACTEUR MODELE JETCAT 100PX. 140

FIGURE IV-12 : THERMOGRAPHIE INFRAROUGE DES GAZ D'ECHAPPEMENT DU TURBOREACTEUR OBTENUE PAR UNE CAMERA INFRAROUGE DOTEE D'UN FILTRE CO_2 AVEC LA LIGNE DE VISEE LASER 140

FIGURE IV-13 : SCHEMA DU BANC EXPERIMENTAL MIS EN ŒUVRE POUR LA MESURE DES PROFILS DE TEMPERATURE ET CONCENTRATION DU TURBOREACTEUR DE MODELISME. 141

FIGURE IV-14 : SPECTRE D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 DES GAZ D'ECHAPPEMENT DU TURBOREACTEUR 141

FIGURE IV-15 : IMAGE DE DIFFUSION D'UNE SEULE IMPULSION LASER DANS L'AIR OBTENUE PAR LA CAMERA STREAK CONFIGUREE AVEC UNE FENETRE TEMPORELLE DE 2NS. 142

FIGURE IV-16 : IMAGE DE DIFFUSION D'UNE SEULE IMPULSION LASER TRAVERSANT LES GAZ D'ECHAPPEMENT DU TURBOREACTEUR OBTENUE PAR LA CAMERA STREAK CONFIGUREE AVEC UNE FENETRE TEMPORELLE DE 2NS. 142

FIGURE IV-17 : SIGNAL DE RETRODIFFUSION INTEGRE LE LONG DE L'AXE SPATIAL ASSOCIE A LA FENTE D'ENTREE DE LA CAMERA STREAK POUR UNE IMPULSION LASER TRAVERSANT LA FLAMME (COURBE ROUGE) ET L'AIR (COURBE BLEUE). 142

FIGURE IV-18 : PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR OBTENU SUR LES GAZ D'ECHAPPEMENT DU TURBOREACTEUR 143

FIGURE IV-19 : SPECTRES D'EMISSION DE L'INTEGRALITE DU DOMAINE SPECTRALE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. S_{MESURE} CORRESPOND A LA MESURE, $S_{GAUSSIEN}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE ET $S_{INVERSE\ LIDAR}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE. 144

FIGURE IV-20 : PHOTO DE LA TUYERE DE LA PETITE TURBINE AVEC LE THERMOCOUPLE. 144

FIGURE IV-21 : PROFILS DE TEMPERATURES LIDAR (COURBE BLEUE), PROFIL INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE) EN PRENANT LA TETE DE BANDE ENTRE 2380CM^{-1} ET 2400CM^{-1}. 145

FIGURE IV-22 : NIVEAU DE CORRESPONDANCE ENTRE LE SPECTRE MESURE ET LES SPECTRES INVERSES EN FONCTION DE LA BORNE INFERIEURE DU SPECTRE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 UTILISE POUR L'INVERSION DES DONNEES SPECTROSCOPIQUES. 146

FIGURE IV-23 : PROFILS DE TEMPERATURES LIDAR (COURBE BLEUE), PROFIL INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE). 147

FIGURE IV-24 : PROFILS DE FRACTIONS MOLAIRES INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE). 147

FIGURE IV-25 : SPECTRES D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. S_{MESURE} CORRESPOND A LA MESURE, $S_{GAUSSIEN}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE ET $S_{INVERSE\ LIDAR}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE. 148

FIGURE IV-26 : PHOTO DE LA DOUBLE FLAMME DE METHANE/AIR ETUDIEE 150

FIGURE IV-27 : SPECTRE D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 DE LA DOUBLE FLAMME CH_4/AIR 150

FIGURE IV-28 : IMAGE DE DIFFUSION D'UNE SEULE IMPULSION LASER TRAVERSANT LA FLAMME OBTENUE PAR LA CAMERA STREAK CONFIGUREE AVEC UNE FENETRE TEMPORELLE DE 2NS. 151

FIGURE IV-29 : SIGNAL DE RETRODIFFUSION INTEGRE LE LONG DE L'AXE SPATIAL ASSOCIE A LA FENTE D'ENTREE DE LA CAMERA STREAK POUR LA MOYENNE DES IMPULSIONS LASER TRAVERSANT LA FLAMME (COURBE BLEUE) ET L'AIR (COURBE ROUGE). 152

FIGURE IV-30 : PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR. 152

FIGURE IV-31 : PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR (COURBE BLEUE), PROFIL INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE). 153

FIGURE IV-32 : PROFILS DE FRACTIONS MOLAIRES INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE BLEUE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE ROUGE). 153

FIGURE IV-33 : SPECTRES D'EMISSION DE LA TETE DE BANDE DU CO_2. S_{MESURE} CORRESPOND A LA MESURE, $S_{GAUSSIENNE}$ CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE ET $S_{REFERENCE}$

CORRESPOND AU SPECTRE ISSU DE L'INVERSION AVEC UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE. 154
FIGURE IV-34 : ZOOM SUR UNE PORTION DU SPECTRE DE LA TETE DE BANDE DU CO_2 DE LA FIGURE IV-33 154
FIGURE IV-35 : PLAN CATIA DE L'INSTALLATION DES DIFFERENTS APPAREILLAGES SUR LE BANC EXPERIMENTAL 156
FIGURE IV-36 : PLAN CATIA SUR LES APPAREILLAGES DE DETECTION MIS EN ŒUVRE SUR LE BANC EXPERIMENTAL. 156
FIGURE IV-37 : PHOTO DES APPAREILLAGES MIS EN ŒUVRE SUR LE BANC STATOREACTEUR MBDA. 157
FIGURE IV-38 : SCHEMA DU BANC DE MESURE MIS EN OEUVRE 158
FIGURE IV-39 : CAISSON D'ISOLATION ACOUSTIQUE 158
FIGURE IV-40 : CAISSON D'ISOLATION ACOUSTIQUE 158
FIGURE IV-41 : NIVEAU SONORE AU COURS DU TEMPS 159
FIGURE IV-42 : SPECTRE ACOUSTIQUE 159
FIGURE IV-43 : SPECTRE DU FOND A TEMPERATURE AMBIANTE. 160
FIGURE IV-44 : IMAGE A T = T = T_0 + 25,3S 161
FIGURE IV-45 : PROFIL DE DIFFUSION OBTENU A PARTIR DE L'IMAGE DE LA FIGURE IV-44 162
FIGURE IV-46 : IMAGE A T = T = T_0 + 27,6S 162
FIGURE IV-47 : PROFIL DE DIFFUSION OBTENU A PARTIR DE L'IMAGE DE LA 163
FIGURE IV-48 : PROFIL DE DIFFUSION A T = T_0 + 52,9S 163
FIGURE IV-49 : EVOLUTION DE LA DIFFUSION RAYLEIGH PAR RAPPORT A LA DIFFUSION DE MIE EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE POUR DES PARTICULES DE RAYON DE 10µM 165
FIGURE IV-50 : DIFFUSION RAYLEIGH SUR LA DIFFUSION DE MIE EN FONCTION DE LA LONGUEUR DU LASER POUR DES PARTICULES DE RAYON DE 10µM 165
FIGURE IV-51 : SCHEMA DU BANC EXPERIMENTAL DE LA MESURE DE LA TEMPERATURE DE LA DEFLAGRATION 168
FIGURE IV-52 : SCHEMA DE LA CELLULE DE DEFLAGRATION EN COUPE 168
FIGURE IV-53 : PHOTO D'UN ECHANTILLON DE PEINTURE FLUORESCENTE A BASE DE RHODAMINE 6G REALISEE AU LABORATOIRE. 169
FIGURE IV-54 : INTENSITE DU SIGNAL DIFFUSE INTEGRE LE LONG DE LA FENTE D'ENTREE EN FONCTION DU TEMPS. 169
FIGURE IV-55 : COUPE TRANSVERSALE DE LA CELLULE DE DEFLAGRATION 170
FIGURE IV-56 : PHOTO CAMERA STREAK & CELLULE DE DEFLAGRATION 170
FIGURE IV-57 : PHOTO DU MONTAGE DANS SON ENSEMBLE 170
FIGURE IV-58 : SCHEMA DU FILTRE SPATIAL AVEC COLLIMATEUR 171
FIGURE IV-59 : FIGURE DE DIFFRACTION 171
FIGURE IV-60 : FORME DU FAISCEAU LASER EN FONCTION DES ELEMENTS OPTIQUES PRESENTS SUR LE CHEMIN. 172
FIGURE IV-61 : SANS OPTIQUE 173
FIGURE IV-62 : AVEC LE COLLIMATEUR 173
FIGURE IV-63 : AVEC LE FILTRE SPATIAL 173
FIGURE IV-64 : AVEC LE DIAPHRAGME 173

FIGURE IV-65 : EMISSION DE LA FLAMME AVEC 10% DE H_2 176

FIGURE IV-66 : EMISSION DE LA FLAMME AVEC 12,5% DE H_2 176

FIGURE IV-67: EMISSION DE LA FLAMME AVEC 16% DE H_2 176

FIGURE IV-68: EMISSION DE LA FLAMME AVEC 20% DE H_2 176

FIGURE IV-69 : PROFILS D'EMISSION DES FLAMMES POUR DIFFERENTES CONCENTRATIONS EN HYDROGENE EN FONCTION DU TEMPS. COURBES OBTENUES PAR INTEGRATION DES SIGNAUX LE LONG DE L'AXE SPATIAL DES IMAGES DE LA FIGURE IV-65 A LA FIGURE IV-68. 177

FIGURE IV-70 : PROFILS DE REFERENCE BRUTS LISSES SUR 0,76MM 178

FIGURE IV-71 : PROFILS DE DIFFUSION DANS O_2, H_2, UNE DEFLAGRATION ET PROFIL DU FOND CONTINU 179

FIGURE IV-72 : PROFILS DE DIFFUSION DE LA FIGURE IV-71 AUXQUELS LE FOND A ETE SOUSTRAIT 179

FIGURE IV-73 : PROFILS DE TEMPERATURE ET PROFIL MOYEN POUR UNE FRACTION MOLAIRE EN H_2 DE 10% 180

FIGURE IV-74 : PROFILS DE TEMPERATURE ET PROFIL MOYEN POUR UNE FRACTION MOLAIRE EN H_2 DE 12,5% 181

FIGURE IV-75 : PROFILS DE TEMPERATURE ET PROFIL MOYEN POUR UNE FRACTION MOLAIRE EN H_2 DE 16% 181

FIGURE IV-76 : PROFILS DE TEMPERATURE ET PROFIL MOYEN POUR UNE FRACTION MOLAIRE EN H_2 DE 20% 182

FIGURE IV-77 : TEMPERATURES MOYENNES POUR DES FRACTIONS MOLAIRES DE 10%, 12,5%, 16% ET 20% - COMPARAISON AVEC LES SIMULATIONS CHEMKIN. 182

FIGURE IV-78 : TEMPERATURES MOYENNEES LE LONG DE LA LIGNE LASER POUR DES FRACTIONS MOLAIRES DE 10%, 12,5%, 16% ET 20%. 183

FIGURE IV-79 : TEMPERATURES MOYENNES POUR LES DEFLAGRATIONS ET LE LONG DE LA LIGNE DE VISEE LASER POUR DES FRACTIONS MOLAIRES EN H_2 DE 10%, 12,5%, 16%, 20% 183

FIGURE V-1 : PROFIL DE TEMPERATURE MESURE PAR NOTRE METHODE COUPLEE DANS LES GAZ D'ECHAPPEMENT D'UN TURBOREACTEUR DE PETITES DIMENSIONS. PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR (COURBE BLEUE), PROFIL INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE) 187

FIGURE V-2 : PROFILS DE TEMPERATURES LIDAR (COURBE BLEUE), PROFIL INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION GAUSSIENNE (COURBE ROUGE) ET INVERSE VIA UNE PARAMETRISATION AVEC LA COURBE DE REFERENCE (COURBE VERTE) OBTENUS SUR LE SYSTEME COMPOSE DE DEUX BRULEURS METHANE/AIR. 188

FIGURE V-3 : TEMPERATURES MOYENNES POUR DES FRACTIONS MOLAIRES DE 10%, 12,5%, 16% ET 20% - COMPARAISON AVEC LES SIMULATIONS CHEMKIN 189

FIGURE V-4 : SCHEMA DE PRINCIPE DU BANC DE MESURE QUI SERA MIS EN ŒUVRE DANS LE CADRE D'UNE MESURE COUPLEE SUR UNE REACTION NA/H_2O 190

FIGURE V-5 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN BANC DE MESURES COUPLEES LIDAR-RAMAN/EMISSION DE RAYONNEMENT 191

FIGURE VI-1 : ECART RELATIF DES PRESSIONS OBTENUES AVEC LA LOI DE VAN DER WAALS ET LA LOI DES GAZ PARFAITS EN FONCTION DE LA DENSITE MOLECULAIRE A 293K. 193

FIGURE VI-2 : ECART RELATIF DES PRESSIONS OBTENUES AVEC LA LOI DE VAN DER WAALS ET LA LOI DES GAZ PARFAITS EN FONCTION DE LA DENSITE MOLECULAIRE A 2500K. 194

FIGURE VI-3 : CONVERSION DE L'IMPULSION D'UN PHOTON EN ENERGIE CINETIQUE D'UNE PARTICULE NE FONCTION DE SON RAYON. 196

FIGURE VI-4 : DISTANCE PARCOURUE PAR UNE PARTICULE LE TEMPS DE L'IMPULSION EN FONCTION DE SON RAYON. 197

FIGURE VI-5 : SCHEMA DE PRINCIPE D'UN BANC DE MESURE SELON LA METHODE DE KURLBAUM 198

FIGURE VI-6 : FLAMME DE DIFFUSION CH_4/AIR 200

FIGURE VI-7 : PROFIL DE TEMPERATURE LIDAR DE LA FLAMME DE LA FIGURE VI-6 MESURE A 20MM AU-DESSUS DU BEC BUNSEN. 200

FIGURE VI-8 : FRACTIONS MOLAIRES EN CO_2 ET H_2O A LA FIN D'UNE REACTION TOTALE ET DANS LES PROPORTIONS STŒCHIOMETRIQUES ENTRE UN ALCANE ET L'AIR EN FONCTION DU NOMBRE D'ATOMES DE CARBONES DE L'ALCANE. 201

Liste des tableaux

TABLEAU I-1 : DOMAINES D'UTILISATION DES THERMOCOUPLES USUELS. ---------- 9

TABLEAU II-1 : INDICATRICES DE DIFFUSION RAYLEIGH-MIE [43] ---------- 32

TABLEAU II-2 : LISTE DES SECTIONS EFFICACES DE DIFFUSION RAYLEIGH RELATIVES A L'AIR AVEC EN BLEU CELLES QUE NOUS UTILISERONS DANS CETTE THESE ---------- 43

TABLEAU II-3 : EXEMPLES DE DECALAGES ET SECTIONS EFFICACES DE DIFFUSION RAMAN POUR 355NM ET 532NM. --- 45

TABLEAU II-4 : EXEMPLE DE COMBUSTIBLES CONTENANT DE L'OXYGENE ET/OU DE L'AZOTE ---------- 51

TABLEAU II-5 : EXEMPLES DE TEMPERATURES ADIABATIQUES DE FLAMMES A PRESSION CONSTANTE (OBTENUS PAR SIMULATION GASEQ [68]) ---------- 61

TABLEAU II-6 : PRINCIPAUX PROCESSUS D'INTERACTION PHOTON-MATIERE DES SYSTEMES LIDAR ---------- 62

TABLEAU III-1 : LASER OPO EKSPLA MODELE PG401 AVEC LASER YAG DE POMPE MODELE PL2250 ---------- 97

TABLEAU III-2 : NOTATIONS ET OPERATEURS POUR L'INVERSION ---------- 104

TABLEAU IV-1 : GAIN EN DIFFUSION RAYLEIGH SUR LA DIFFUSION DE MIE EN FONCTION DE LA TAILLE DES PARTICULES ET DE LA LONGUEUR DU LASER ---------- 166

Bibliographie

[1] Jean-Paul Cretté, "Réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium," *Techniques de l'ingénieur*, Mai 2012.

[2] INERIS, "Emissions accidentelles de substances chimiques dangeureuses dans l'atmpsphère. Seuils de toxicité aigüe. Dioxyde d'azote. ," INERIS–DRC-08-94398-13333A, 2004.

[3] INERIS, "Emissions accidentelles de substances chimiques dangeureuses dans l'atmpsphère. Seuils de toxicité aigüe. Monoxyde de carbone.," INERIS–DRC-09-103128-05616A, 1998.

[4] Marc Bouchez, "Statoréacteur - Propulsion aérobie moyenne ou grande vitesse," *Techniques de l'ingénieur*, Janvier 2012.

[5] Olivier Jacquot, "Etude du profil de temperature et de concentration dans une flamme par spectroscopie infrarouge," Paris 10, Nanterre, Thèse 1997.

[6] Johanna Vally, "Etude du spectre d'émission infrarouge des gaz de combustion : application à la mesure de température de gaz et de concentration de CO2," Université Paris 10, Nanterre, Thèse 1999.

[7] Robin Conseil, "Spectrométrie infrarouge de gaz de combustion," Université de Franche comté, 2011.

[8] Jérémy LEBEDINSKY, "Détermination des champs de température et de concentration par spectroscopie dans une combustion," Université Paris 10, Ville d'Avray, Thèse 2013.

[9] Frédéric Grisch, Pierre Gicquel, and Philippe Hervé, "Mesures de températures dans les gaz et les flammes," *Techniques de l'ingénieur*, vol. 1, Septembre 2009.

[10] Robin E. Bentley, "The use of elemental thermocouples in high-temperature precision thermometry," *Measurement*, vol. 23, 1998.

[11] B. Serio, P. Niva, and J.-P. Prenel, "Static and dynamic calibration of thin film thermocouples by means of a laser Modulation technique," *Review of scientific instruments*, vol. 71, no. 10, Octobre 2000.

[12] D. Lupant, B. Pesenti, and P. Lybaert, "Influence of probe sampling on reacting species measurement in diluted combustion," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 34, no. 5, pp. 516-522, July 2010.

[13] Pierre FERDINAND, "Thermomètres à fibre optique avec contact," *Techniques de l'ingénieur*, 2003.

[14] Jim O. Olsson, Magnus Lenner, Svante Wallin, and Leif Uneus, "Rapidscanning spectrometer based on fiberoptics applied to flames," *Review of scientific instruments*, vol. 60, 1989.

[15] J. Spelman, T.E. Parker, and C.D. Carter, "Fiber-coupled multiple-line infrared emission measurements to determine temperature, CO2 and H2O," *Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer*, vol. 76, pp. 309–330, 2003.

[16] Philippe Al Khoury, Guy Chavent, François Clément, Philippe Hervé, and Legras Olivier, "Étude numérique du comportement de l'équation de transfert radiatif des milieux semi-transparents Inversion de données spectroscopiques pour le CO2," INRIA, Rocquencourt, Rapport de recherche 4693, 2003.

[17] P. Chelin, C. Camy-Peyret, V. Pina, P. Alkhoury, and D. Davidenko, "Emission spectroscopy of hot water vapor from H2–air deflagrative combustion in a closed cylinder," *Combustion and Flame*, vol. 140, pp. 319-331, 2005.

[18] L. C. Lynnworth and E. H. Carnevale, "Ultrasonic thermometry using pulse techniques, temperature : its measurement and control in science and industry," *Instrument society of America*, vol. 4, no. 1, pp. 715-735.

[19] Scott A. Gearthart and Michael E. Thomas, "Evaluation of a temperature remote sensing technique," *Applied Optics*, vol. 27, no. 17, pp. 3630-3637, Septembre 1988.

[20] H. HIROYASU F.-Q. ZHAO, "The applications of laser Rayleigh scattering to combustion diagnostics," *Prog. Energy Combust. Sci.* , vol. 19, pp. 447-485, 1993.

[21] M. Seo, S. Jeong, J. Park , and H. Shin, "Rayleigh scattering thermometry at low temperature using nitrogen and carbondioxide with high Rayleigh scattering cross section aera," in *Metrology for Green Growth*, Busan, Republic of Korea, 2012.

[22] Julien-Pierre OFFRET, Jérémy Lebedinsky, Lorris Navello, Philippe Hervé, and Pina Vincent, "Détermination des champs de température dans une réaction de combustion," in *Société Française de thermique*, Gérardmer, 2013.

[23] B. Bork, B. Böhm, C. Heeger, and S.R. Chakravarthy, "1D high-speed Rayleigh measurements in turbulent flames," *Applied Physics B*, vol. 101, pp. 487-491, Octobre 2010.

[24] J.-P. Offret et al., "Remote sensing of temperature and concentration profiles of a gas jet by coupling infrared emission spectroscopy and LIDAR for characterization of aircraft engine exhaust," in *SPIE*, Munich (Allemagne), 2015.

[25] I. Namer and R.W. Schefer, "Error estimates for Rayleigh scattering density and temperature measurements in premixed flames," *Experiments in fluids*, vol. 3, pp. 1-9, 1985.

[26] Michel DELHAYE et al., "Spectrométrie Raman," *Techniques de l'ingénieur*, Mai 2012.

[27] Allen Joseph Ball, "Investigation of gaseous hydrogen leak detection using Raman scattering and laser-induced breakdown spectroscopy," University of Florida, Gainesville, Thèse 2005.

[28] Michel DELHAYE et al., "Spectrométrie Raman," *Techniques de l'ingénieur*, vol. 31, p. 2865, Mai 2012.

[29] Sukesh Roy, James R. Gord, and Anil K. Patnaik, "Recent advances in coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy:Fundamental developments and applications in reacting flows," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 36, pp. 280-306, Novembre 2009.

[30] Sean P. Kearney, "Hybrid fs/ps rotational CARS temperature and oxygen measurements in the product gases of canonical flat flames," *Combustion and Flame*, vol. 162, pp. 1748-1758, 2015.

[31] Christof Schulz and Volker Sick, "Tracer-LIF diagnostics: quantitative measurementof fuel concentration, temperature and fuel/air ratio in practical combustion systems," *Progress in energy and combustion science*, vol. 31, pp. 75-121, 2005.

[32] Khanh Tran, "Mesure quantitative d'un champ de températures par fluorescence induite par laser pour l'étude de l'auto-inflammation HCCI dans une machine à compression rapide," Uniuversité Paris 6, Paris , Thèse 2012.

[33] J. Hult, I.S. Burns, and C.F. Kaminski, "Two-line atomic fluorescence flame thermometry using diode lasers," *Proceedings of the combustion institute*, vol. 30, pp. 1535–1543, 2005.

[34] Khanh TRAN, "Mesure quantitative d'un champ de températures par fluorescence induite par laser pour l'étude de l'autoinflammation HCCI dans une Machine à Compression rapide," Université Pierre et Marie Curie, Saint Cyr l'école, Thèse 2012.

[35] 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*, vol. 6, no. 8, Août 1973.

[36] Jean Crabol, *Transfert de chaleur*, Masson ed., 1989.

[37] Jiang HUI, "Etude par spectroscopie infrarouge du profil de tempérautre dasn une section de flamme de gaz naturel," Université paris X-Nanterre, Thèse 1994.

[38] Dominique FOURNET, "Etude des propriétés thermo-optiques des milieux polyphasiques : application aux jets de propulseurs," Université Paris X - Nanterre, Thèse 1997.

[39] Philippe Al KHOURY, "Algorithmes géométriques de résolution des moindres carrés non linéaires et problème inverse en sepctroscopie des flammes," Université Paris X - nanterre, Thèse 2005.

[40] Pascale CHELIN, "Étude des propriétés radiatives de la vapeur d'eau à haute température et haute pression par diagnostic optique de la combustion H2/02/N2," Université Paris X - Nanterre, Thèse 2003.

[41] Philippe Hervé, "Mesure d'un écoulement d'un système propulsif," Brevet 09 52995, Mai 2009.

[42] Lorris NAVELLO, "Développement d'un pyromètre bichromatique impulsionnel pour mesure de teméprature de surfaces solides ou liquides en milieux perturbés," Université Paris X - Nanterre, Thèse 2015.

[43] Sharayanan. dev-lesia. [Online]. https://dev-lesia.obspm.fr/webjaxe/sites/site-sesp/pages_polarisation/diffusion-2.html

[44] H. C. van du Hulst, *Light scattering by small particles*., 1981.

[45] Alan J. DeWeerd, and Jennifer Linden A. J. Cox, "An experiment to measure Mie and Rayleigh total scattering cross sections," *Am. J. of physics*, vol. 70, no. 6, 2002.

[46] Christophe VERHAEGE, "Restitution de l'indice de réfraction complexe et de la granulométrie d'une population de particules sphériques à partir de l'indicatrice de diffusion de la lumière," ENSMA, Thèse 2008.

[47] Christian Mätzler, MATLAB Functions for Mie Scattering and Absorption Version 2, 2002.

[48] Airparif. Airparif. [Online]. http://www.airparif.asso.fr/indices/resultats-jour-citeair#jour

[49] M. Skowronek, Y. Vitel, and C. Bayer, "Mesure de la section efficace différentielle Rayleigh au moyen d'un laser à Rubis déclenché," *LE journal de physique*, vol. 34, p. 229, Février-Mars 1973.

[50] Nicolas Cézard , "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," Ecole doctorale de l'école polytechnique, Thèse 2008.

[51] DUPONT-ROC J, GRYNBERG G. COHEN-TANNOUDJI C, Processus D'interaction Entre Photons Et Atomes..

[52] D. R. BATES, Rayleigh scattering by air, 1984.

[53] A. BUCHOLTZ, Rayleigh Scattering, calculations for the terrestrial atmosphere.

[54] Kelly V. Chance and Robert J.D. Spurr, "Ring effect studies: Rayleigh scattering, including molecular parameters for rotational Raman scattering, and the Fraunhofer spectrum," *Applied Optics*, vol. 36, no. 21, pp. 5224-5230, Juillet 1997.

[55] Jonathan FRANK and al. Joseph FIELDING, Polarized /depolarized Rayleigh scattering for determining fuel concentration in flames, 2002.

[56] W. UBACHS M. SNEEP, Direct measurement of the Rayleigh scattering cross section in various gases, 2005.

[57] A. J. GRANT & al S. C. GRAHAM, transient molecular concentration measurements in turbulent flows using rayleigh light scattering, 1974.

[58] Johan Zetterberg, "Thèse : Development of laser-spectroscopic techniques for new Detection schemes in combustion diagnostics," Lund, 2008.

[59] N.K. Vyas, J. Rai, B. Kartikeyan S.S. Srivastava, On the different approaches of rayleigh optical depth determination, 2009.

[60] Marvin J. WEBER, Handbook of optical materials, 2003.

[61] Guillaume Bechon, Rémy Mével, Dmitry Davidenko, and Joseph E. Shepherd, "Modeling of Rayleigh scattering imaging of detonation waves: Quantum computation of Rayleigh cross-sections and real diagnostic effects," *Comubstion and Flame*, vol. 162, pp. 2191-2199, 2015.

[62] A. BIDEAU-MEHU, Y. GUERN, R. ABJEAN, and A. JOHANNIN-GILLES, "interferometric determination of the refractive index of carbon dioxide in the ultraviolt region," *Optics Communications*, vol. 9, no. 4, Decembre 1973.

[63] G. MAGNTOTI , U. KC, P.L. VARGHESE, and R.S. BARLOW, "Raman spectra of methane, ethylene, ethane, dimethylether, formaldehyde and propane forcombustion applications," *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, vol. 163, pp. 80-101, Avril 2015.

[64] M. Destriau R. Borghi, *Combustion and Flames*.: Editions Technip, 1998.

[65] Denis Veynante, "Flamme de diffusion laminaire," *Techniques de l'ingénieur*, Avril 1999.

[66] Michael J. MORAN, Howard N. SHAPIRO, Daisie D. BOETTNER, and Margaret BAILEY, *Fundamentals of Engineering Thermodynamics*.: John Wiley & sons , 2010.

[67] Jean-Claude Guibet, "Les carburants et la combustion ," *Techniques de l'ingénieur*, Juillet 2000.

[68] Chris Morley. (2005) gaseq. [Online]. http://www.gaseq.co.uk/

[69] David N. Whiteman, "Examination of the traditional Raman lidar technique.," *Optical Society of America*, vol. 42, no. 15, pp. 2571-2592, Mai 2003.

[70] Ioan Balin, "Measurement and analysis of aerosols, cirrus-contrails, water vapor and temperature in the upper troposphere with the Jungfraujoch LIDAR system," Ecole polytechnique fédérale de Lausane, Thèse 2004.

[71] H.J. Kim, C.H. Sohn, S.H. Chung, and H.D. Kim, "Laser Rayleigh measurement of mixing processes and control of hydrogen combustion using quenching meshes," *Nuclear ingineering and design*, vol. 187, 1999.

[72] Billy Kaldvee, Christian Brackmann, Marcus Aldén, and Joakim Bood, "Highly range-resolved ammonia detection using near-field picosecond differential absorptionlidar," *Optics express*, vol. 20, no. 18, August 2012.

[73] Luca Fiorani et al., "First-time lidar measurement of water vapor flux in a volcanic plume," *Optics Communications*, vol. 284, pp. 1295–1298, October 2011.

[74] Joel R. Carney, J. Scott Miller, Jared C. Gump, and G. I. Pangilinan, "Time-resolved optical measurements of the post-detonation combustion of aluminized explosives," *Review of scientific instruments*, vol. 77, 2006.

[75] François Clément, Nina Khvoenkova, Alain Cartalade, and Philippe Montarnal, "Analyse de sensibilite et estimation de parametres de transport pour une l'equation de diffusion, approche par état adjoint," INRIA, Rocquencourt, Rapport de recherche 5132, 2004.

[76] Michel Kern, "Problèmes inverses," *Techniques de l'ingénieur*, no. AF1380, Avril 2010.

[77] Alain PETIT, "Théorie des spectres moléculaires," *Techniques de l'ingénieur*, Mars 2002.

[78] D.G. GOODWIN, Cantera, 2001.

[79] Martin Levenius, "Stand-off species detection through picosecond Raman LIDAR with picosecond Raman LIDAR with temporal fluorescence suppression and telescope characterisation," Lund University, Lund, Sweden, Master of Science Thesis 2009.

[80] A. Ehn, M. Levenius, M. Jonsson, M. Aldén, and J. Bood, "Temporal filtering with fast ICCD cameras in Raman studies," *Journal of Raman spectroscopy*, vol. 44, pp. 622-629, Mars 2013.

[81] Lo AMATH, Diffusion Raman spontanée pour la combustion turbulente et les plasmas, 2012.

[82] Daniel C HARRIS & Bertolcucci, Symmetry and spectroscopy : an introduction to vibrational and electronic spectroscopy, 1989.

[83] John P. LONGWELL and al. Robert B. BARAT, Laser Rayleigh scattering for flame thermometry in a toroidal jet stirred combustor, 1991.

[84] Frédéric Grisch and Mikaël Orain, "Role of Planar Laser-Induced Fluorescence in Combustion Research," *Journal Aerospace Lab*, vol. 1, Décembre 2009.

[85] M. KUHNI, C. MORIN & P. GUIBERT K.H. TRAN, "Anisole laser induced fluorescence (LIF) for imaging local heterogeneities in temperature in a rapid combustion machine," in *Proceedings of the European Combustion Meeting,* Cardiff, Wales, 2011.

Résumé

La connaissance et la maitrise de la température et de la concentration des produits de combustion sont des paramètres clés pour la compréhension et l'amélioration de l'efficacité des moteurs. La mesure de ces température et concentration permettrait d'améliorer les machines de combustion et de quantifier les rejets polluants dans l'air (tels que le CO, CO_2, NO, NO_2, SO_2, les aérosols, les suies ainsi que les composés organiques volatils) qui sont des enjeux environnementaux importants. Les procédés de combustion sont inhomogènes. Les méthodes actuelles sont essentiellement des méthodes de détection et pas de quantification. Nous proposons une méthode originale de caractérisation des profils de température et concentration couplant les avantages d'une mesure active par rétrodiffusion (LIDAR-Rayleigh, Light Detection And Ranging) d'une impulsion laser fondée sur la diffusion Rayleigh avec une mesure passive par spectroscopie d'émission. La première méthode est sensible aux profils spatiaux de températures et la seconde est particulièrement sensible à la température maximale et concentration des gaz. Cette étude a été soutenue par une REI (Recherche Exploratoire et Innovation) : « Caractérisation par Émission et LIDAR d'Écoulements de Propulseurs » en collaboration avec le laboratoire FEMTO-ST de Belfort, l'ONERA et l'entreprise MBDA.

Mots clés : Rayonnement – LIDAR – Méthodes inverses – Spectroscopie infrarouge – Photonique instrumentale – Diffusion – Interaction photon matière

The knowledge and control of the temperature and concentration of combustion products are key parameters to understand and improve engine efficiency. The measurement of temperature and concentration will improve combustion machines and quantify the pollutant emissions in the air (such as CO, CO2, NO, NO2, SO2, aerosols, soot and volatile organic compounds) which are important environmental issues. Combustion processes are inhomogeneous. Current methods are substantially methods for the detection and not for quantification. We propose an original method based on the characterization of temperature and concentration profiles coupling the benefits of an active backscattering method (Rayleigh LIDAR, Light Detection And Ranging) of a laser pulse with passive spectroscopic measurements. The first method is based on Rayleigh scattering and is sensitive to spatial temperature profiles and the second is particularly sensitive to the maximum temperature and to gas concentration. This study was supported by REI (Exploratory Research and Innovation): " Flows thrusters characterization by emission and LIDAR " in collaboration with the FEMTO-ST laboratory located in Belfort, ONERA and the MBDA company.

Keywords: Radiation - LIDAR - inverse methods – infrared Spectroscopy - instrumental Photonics - Diffusion - photon-matter Interaction