

# Etude de l'allumage par laser de mélanges en phase liquide dispersée et gazeuse

Hazem El-Rabii

### ► To cite this version:

Hazem El-Rabii. Etude de l'allumage par laser de mélanges en phase liquide dispersée et gazeuse. Energie électrique. Ecole Centrale Paris, 2004. Français. NNT : . tel-00008582

## HAL Id: tel-00008582 https://theses.hal.science/tel-00008582v1

Submitted on 26 Feb 2005

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## THESE

présentée par

## Hazem El-Rabii

pour l'obtention du

### GRADE de DOCTEUR

Formation doctorale :	Énergétique
Laboratoire d'accueil :	Laboratoire d'Énergétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (EM2C) du CNRS et de l'ECP

# Étude de l'allumage par laser de mélanges en phases liquides dispersées et gazeuses

Soutenue le 2 juillet 2004

Composition du jury :	$\mathbf{M}\mathbf{M}.$	Champion,	М.	Président
		Lapios	JP.	
		Lavergne	G.	Rapporteur
		Lebéhot	А.	Rapporteur
		Bychkov	L.V.	
		Martin	JP.	
		Rolon	J.C.	

Ecole Centrale des Arts et Manufactures Grand Etablissement sous tutelle du Ministère de l'Education Nationale Grande Voie des Vignes 92295 CHATENAY MALABRY Cedex Tél. : 33 (1) 41 13 10 00 (standard) Télex : 634 991 F EC PARIS Laboratoire d'Energétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (E.M2.C.) UPR 288, CNRS et Ecole Centrale Paris Tél. : 33 (1) 41 13 10 31 Télécopie : 33 (1) 47 02 80 35

2004 - 16

## REMERCIEMENTS

Je profite de l'occasion qui m'est offerte pour saluer et remercier ici toutes les personnes qui, de près ou de loin, ont contribué à la concrétisation de ce travail de thèse.

Tout d'abord, mes remerciements s'adressent à Monsieur Jean-Pierre Martin, alors directeur du laboratoire, pour m'avoir acceuilli au sein de son équipe.

Le bon deroulement de ce travail a été possible grace à mon directeur de thèse, Juan Carlos Rolon, à qui je suis très reconnaissant des moyens qu'il a mis à ma disposition et du soutien qu'il m'a apporté.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur M. Champion qui m'a fait l'honneur de présider le jury de cette thèse. C'est ensuite à Messieurs A. Lebéhot et G. Lavergne, que j'adresse mes sincères remerciements pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce mémoire. En particulier, je les remercie d'avoir mis leurs grandes compétences au service d'une lecture aussi minutieuse de mon travail. Je les remercie également pour la rapidité avec laquelle ils ont lu mon manuscrit et l'intérêt qu'ils ont porté aux résultats obtenus. Merci également aux autres membres du jury qui ont accepté de juger ce travail : MM. J.-P Lapios et V.L. Bychkov.

Je ne sais comment exprimer toute ma gratitude à mon très cher ami Christian Mayeux pour ses encouragements, son soutien sans failles et pour toute l'aide qu'il m'a apporté afin de répondre aux nombreux problèmes pratiques et techniques que j'ai rencontrés au cours de mon travail. Malgré l'éloignement, j'aime à penser que notre amitié durera encore très longtemps. Je te souhaite une très longue et heureuse retraite Christian.

Je remercie tous ceux sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est : aussi bien par les discussions que j'ai eu la chance d'avoir avec eux que par leurs suggestions ou contributions. Je pense ici particulièrement à Erika Jean-Bart, Francois Lacas, Katharina Zähringer, Dominique Thévenin, Nasser Darabiha et évidement Philippe Rivière.

Ma gratitude s'adresse également à ceux qui ont été tour à tour mes collègues de bureau, c'està-dire Manuel Tancrez, Mohammed Aguir, Ngoc Bich Tran, Bertrand Varoquié, Ferry Tap et Amélie Fayoux.

J'ai également une pensée pour tous les jeunes gens que j'ai eu le plaisir de côtoyer durant ces quelques années, à savoir Nicolas Docquier, Ronnie Knikker, Bertrand Leroux, Amita Tripathi, Sébastien Ducruix, Mohammed Embouazza, Christine Deron, Renan Hilbert et Weeded Ghedhaifi.

Mes remerciements ne sauraient oublier mon ami de toujours, Rachid Elaloufi, à qui je ne sais comment exprimer ma reconnaissance autrement qu'en lui donnant toute mon amitié.

C'est à mes parents que j'adresse toute mon affection et ma reconnaissance pour m'avoir permis d'en arriver là. Et enfin, à celle qui partage ma vie depuis plusieurs années maintenant, c'est bien plus qu'un merci que je lui adresse.

# TABLE DES MATIÈRES

1	Intro	oductio	n	7			
2	Spec	troscop	bie d'un plasma laser d'air	15			
	2.1	Introdu	uction	15			
	2.2	Monta	ge expérimental	17			
		2.2.1	Les réseaux de diffraction	18			
		2.2.2	Le pouvoir de résolution	19			
		2.2.3	Dispersion angulaire et linéaire	20			
		2.2.4	La fonction d'appareil	21			
		2.2.5	Optique d'entrée	23			
		2.2.6	Appareil de détection	23			
	2.3	Étalon	nage en intensité relative	27			
	2.4	Synch	ronisation	30			
	2.5	Protoc	ole expérimental	32			
	2.6	Spectro	es	33			
	2.7	Mesur	es de température à partir des intensités de raies	36			
		2.7.1	Intensité de raie intégrée	38			
	2.8	Mesur	es de la concentration électronique	39			
	2.9 Caractérisation du plasma						
		2.9.1	Températures de Boltzmann	41			
		2.9.2	Densité électronique	42			
	2.10	Conclu	isions	46			
3	Énei	gie mir	nimum d'allumage	49			
	3.1	Introdu	uction	49			
	3.2	Théori	e	50			
3.3 Études expérimentales		expérimentales	51				
	3.4	Dépôt	d'énergie dans l'air lors du processus de claquage	53			
		3.4.1	Montage expérimental	54			
		3.4.2	Processus de déposition de l'énergie laser dans l'air	55			
		3.4.3	Claquage de l'air	57			
		3.4.4	Probabilité de claquage	62			
	3.5	Allum	age de mélanges gazeux de méthane/air	64			
		3.5.1	Calcul d'erreur	65			
		3.5.2	Énergie minimum d'allumage	68			
	3.6	Allum	age d'un nuage de gouttes	70			
		3.6.1	Génération d'un nuage de gouttes de n-heptane et de JP4	70			
		3.6.2	Choix de l'atomiseur	70			
		3.6.3	L'atomiseur ultrasonique	71			

	3.7	Caractérisation du nuage de gouttes d'eau			
	3.8 Montage expérimental			73	
	3.9	Résulta	ats	75	
	3.10	3.10 Conclusions			
4	Effet	ts de l'a	berration sphérique	81	
	4.1	Introdu	$\mathbf{r}$	81	
	4.2	Travau	x antérieurs	81	
	4.3	Rappel	ls théoriques	83	
		4.3.1	Propagation du champ	83	
		4.3.2	Effet d'une lentille sur la propagation du champ	84	
	4.4	Résulta	ats	87	
		4.4.1	Profils spatiaux	87	
		4.4.2	Les aberrations sphériques	88	
		4.4.3	Influence du rayon du faisceau laser sur les aberrations sphériques	89	
		4.4.4	Cas d'une onde plane d'amplitude constante	90	
		4.4.5	Cas d'une onde plane d'amplitude gaussienne	92	
	4.5	Montag	ge expérimental	00	
		4.5.1	Influence du rayon du faisceau incident sur le seuil de claquage de l'air 10	00	
		4.5.2	Influence de l'angle d'incidence du faisceau sur le seuil de claquage de	റാ	
		153	Influence de la position du faisceau sur le seuil de claquage de l'air $10$	02 02	
	46	Conclu	isions	02	
	1.0	concre		05	
5	Calc	ul du se	euil de claquage 10	05	
	5.1	Modèle	e	05	
		5.1.1	Terme de transition multiphotonique	05	
		5.1.2	Phénomène de cascade	08	
		5.1.3	Terme de perte par collision élastique	10	
		5.1.4	Terme de diffusion	11	
		5.1.5	Terme de perte par collision inélastique	11	
		5.1.6	Terme de recombinaison	13	
		5.1.7		13	
		5.1.8	Equation du claquage optique	13	
	5.2	Résulta	$ats \ldots \ldots$	14	
		5.2.1	Influence de la longueur d'onde	14	
		5.2.2		17	
		5.2.3	Influence de la durée de l'impulsion	18	
		5.2.4	Influence de la distance focale de l'optique	19	
		5.2.5		20 21	
	5.3	Conclu	1310ns	21	
6	Lase	r-Sparl	k Induced Ignition : PLIF Measurements 12	23	
	6.1	Introdu	uction	23	
	6.2	Breakd	lown wave and plasma dimensions	24	

Énei	rgies d'allumage pour des mélanges de méthane/air	165
Con	clusions et perspectives	159
7.6	Conclusion	158
7.5	Results	154
7.4	Experimental setup	151
7.3	Ignition kernel size	148
7.2	Breakdown and ignition	143
7.1	Introduction	139
Lase	er-Ignition in a LPP Injector	139
6.7	Conclusions	137
6.6	Planar laser-induced fluorescence measurements	134
6.5	Energy Measurement Experiments	130
6.4	Imaging technique	130
6.3	Experimental setup	127
	<ul> <li>6.3</li> <li>6.4</li> <li>6.5</li> <li>6.6</li> <li>6.7</li> <li>Lase</li> <li>7.1</li> <li>7.2</li> <li>7.3</li> <li>7.4</li> <li>7.5</li> <li>7.6</li> <li>Condition</li> <li>Éneil</li> </ul>	6.3 Experimental setup

## CHAPITRE 1

#### INTRODUCTION

L'allumage d'un mélange combustible/comburant se définit comme la transition de ce mélange d'un état non-réactif à un état réactif pour lequel le stimulus externe conduit à l'emballement des réactions thermochimiques suivi d'une rapide transition vers une combustion auto-entretenue. L'inflammation se fait en apportant de l'énergie, pendant un temps donné, dans un volume donné du milieu, où combustible et comburant sont plus ou moins bien prémélangés. Il s'agit d'un processus très complexe, impliquant simultanément cinétique chimique, transfert de chaleur et dynamique de l'écoulement.

L'objet principal d'une étude portant sur l'allumage est d'aboutir à une compréhension fondamentale des processus physico-chimiques mis en jeu dans une telle transition. Parmi ses objectifs, on trouve :

- les problèmes liés à la sécurité lors du stockage de produits inflammables ;
- le développement de système d'allumage fiable, fournissant une énergie bien maîtrisée pour l'allumage et la combustion;
- l'étude de l'inflammabilité de certains matériaux sous certaines conditions ;
- la détermination de l'énergie minimum requise pour allumer des mélanges combustible/ comburant;
- l'étude du mode physique d'apport de cette énergie ;
- l'étude des effets de divers paramètres physiques et chimiques sur les délais d'allumage.

Il s'agit d'une branche de la combustion ayant reçu peu d'attention ces dernières décennies pour des raisons assez simples à expliquer. Tout d'abord, le système le plus répandu pour allumer reste la bougie. Dans le cas de l'inflammation de mélanges gazeux et diphasiques, Lewis et von Elbe (1987) et plus récemment, Ballal et Lefebvre (Lefebvre, 1982), ont fourni une excellente description du phénomène d'inflammation en termes de paramètres macroscopiques qu'ils ont pu mesurer ou estimer. Les énergies minimums et les délais d'allumage ont été déterminés pour une grande variété de mélanges combustible/comburant, de vitesses d'écoulement, de tailles caractéristiques de nuage de gouttes d'intérêt pratique ainsi que pour d'autres paramètres. Cela a concentré la plus grande part des travaux de recherche sur la compréhension et l'optimisation de la chimie et des propriétés mécaniques des mélanges convectés vers la bougie. À cela s'ajoute qu'aucune alternative raisonnable à ce système n'a été envisagée.

Parallèlement, il existe d'importants problèmes liés à la manière dont le combustible et le comburant se mélangent. Une connaissance de la structure des écoulements turbulents, aussi bien des interactions entre la turbulence et la cinétique chimique, est nécessaire à une modélisation complète du processus d'allumage. Une modélisation réaliste conduirait généralement à un modèle tridimensionnel instationnaire qui peut se révéler très coûteux à résoudre.

Dans de tels modèles, une définition du déclenchement de l'inflammation doit être donnée. De nombreux critères peuvent être adoptés, et il est généralement difficile d'être sûr du bien-fondé de l'un par rapport à l'autre. De plus, il peut exister des problèmes de compatibilité entre les critères utilisés dans le cadre d'une modélisation théorique et ceux utilisés lors d'observations expérimentales. Néanmoins, on note que tout processus d'allumage nécessite une température du mélange suffisamment élevée pour que les réactions chimiques puissent se déclencher, une turbulencce suffisante de manière à ce que le combustible et l'oxydant puissent bien se mélanger et que l'énergie, sous forme de chaleur, puisse être transférée du milieu réactif au milieu non-réactif. De plus, le délai doit être suffisant pour permettre à l'énergie déposée dans le mileu d'être absorbée par les réactants et conduire ainsi au démarrage des réactions de combustion.

En général, il existe beaucoup de paramètres qui peuvent affecter l'allumage. On peut citer, entre autres, la composition du mélange, la température et la pression initiales, la durée et la quantité d'énergie déposée dans le milieu, le rayon initial du volume dans lequel l'énergie est déposée, la vitesse de l'écoulement, l'échelle et l'intensité de la turbulence, ainsi que les propriétés de transport du mélange étudié. L'inflammation peut également dépendre de la géométrie et du matériau environnant.

Il existe plusieurs moyens d'allumer un mélange. On classe généralement les sources d'allumage externe en trois grandes catégories :

- les sources thermiques : le transfert de l'énergie vers les réactifs s'effectue par conduction, convection, par rayonnement ou par n'importe quelle combinaison de modes de transfert ;
- les sources chimiques : introduction dans le milieu d'agents réactifs tels que des radicaux ;
- les sources mécaniques : il s'agit d'impact mécanique, de friction ou d'onde de choc.

À côté de ces sources, on a également l'auto-allumage. Ce type d'allumage est utilisé dans les moteurs automobiles et s'opère par compression du mélange dans la chambre à combustion.

Actuellement, le moyen le plus fréquemment utilisé dans l'industrie, aussi bien aéronautique qu'automobile, pour allumer un mélange inflammable est de créer entre deux électrodes un champ électrique très intense de manière à rendre le milieu compris entre elles conducteur et ainsi pouvoir transférer l'énergie du champ électrique au milieu. On peut, par ce moyen, produire virtuellement des étincelles de n'importe quelle énergie. Il s'agit d'un moyen très efficace de conversion de l'énergie électrique en chaleur. Seule une faible proportion de l'énergie déposée ainsi, dans le milieu, est dissipée sous forme d'énergie radiative et acoustique.

Bien que l'utilisation de bougie soit très répandue, ce type de système présente certains inconvénients. À ce titre, on peut citer la présence de hautes tensions dans le système, les perturbations induites par la présence d'un champ électrique très intense, la nécessité de placer le système d'allumage à proximité de la paroi de la chambre à combustion. De plus, les systèmes d'allumage à l'aide de bougies sont mal adaptés aux conditions extrêmes de fonctionnement et possèdent des durées de vie courte. Plusieurs options ont été proposées pour pallier ces inconvénients, tels les allumeurs à jet de plasma, à flamme ou les systèmes utilisant la recirculation des gaz brûlés.

Une autre alternative est apparue après la découverte, au début des années soixante, par Meyerand et Haught, d'étincelles créées par la focalisation d'un faisceau laser. Weinberg et Wilson (1971) furent les premiers à exploiter cette technique afin de mesurer les énergies minimums d'allumage de certains mélanges inflammables. Depuis, l'allumage laser a bénéficié d'un intérêt croissant. Les études entreprises ont essentiellement concerné la mesure de grandeurs macroscopiques tels que l'énergie minimum d'allumage, le délai à l'allumage ainsi que l'étude de la structure et de l'évolution du noyau d'allumage pour différentes sources laser et pour des mélanges inflammables incluant de l'hydrogène (Spliganin et al., 1995), de l'ammoniac (Chen et al., 2000, 2001) et des hydrocarbures tels que le méthane (Phuoc et White, 1999; Beduneau et al., 2003) et le propane (Lee et al., 2001).

Cette technique, pour initier les réactions de combustion, possède certains avantages :

- l'énergie est très concentrée et bien contrôlée;
- l'utilisation d'un système optique adéquat donne un degré de liberté quant au choix du point d'allumage. Il n'est donc plus nécessaire d'amener un mélange dans les bonnes proportions au point d'allumage, étant donné que le site d'initiation des réactions de combustion pourra être choisi;
- l'absence de surfaces matérielles (électrodes) éviterait de perturber la dynamique du noyau d'allumage lors de sa progression, tout en diminuant les pertes de chaleur;
- l'allumage en de multiples points présente un intérêt dans les moteurs à combustion interne ;
- un choix judicieux du système de focalisation permettrait d'améliorer l'allumage dans les régimes pauvres, et aboutirait ainsi à une réduction potentielle des émissions de polluants.

La possibilité de pouvoir choisir à sa guise la position de l'étincelle d'allumage est une importante caractéristique de l'allumage laser (problème de rallumage). De plus, un tel système peut également servir à contrôler les instabilités de combustion rencontrées dans les moteurs aéronautiques.

L'utilisation de système laser dans les moteurs à combustion interne (IC) semble également prometteuse. Dans de tel moteur, les électrodes de la bougie sont situées juste en dessous de la culasse et sont programmées pour se déclencher juste avant que le piston n'atteigne le point mort-haut. Une étincelle laser, permettrait d'obtenir une forme optimale pour ces géométries cylindriques, et offrirait également la possibilité d'obtenir plusieurs étincelles à des endroits divers, dont le déclenchement serait ajusté en fonction des conditions particulières de conduite.

Il existe différents types d'allumage laser : l'allumage par initiation thermique, photochimique, par claquage résonant et non-résonant.

L'allumage thermique utilise la source laser pour chauffer une cible solide ou pour exciter des modes vibrationnels ou rotationnels des molécules du gaz. Il est très difficile de considérer un allumage ponctuel par cette voie, étant donné que l'énergie thermique déposée varie avec

l'intensité du laser. Une telle difficulté ne se rencontre pas lorsque les processus impliqués sont multiphotoniques ou nécessitent une intensité seuil pour se produire. C'est pourquoi, la plupart des études utilisant le chauffage thermique laser ont été effectuées dans des systèmes homogènes (Hill, 1981; Trott, 1983). Le problème de localisation du dépôt de l'énergie peut être contourné en focalisant le faisceau laser sur une cible solide. Kingdon et Weinberg (1976) ont étudié l'allumage de mélanges méthane/air en utilisant cet artefact. Néanmoins, dans leur cas, les particules solides introduites ont essentiellement servi à faciliter le claquage. Homan et Sirignano (1981) ont étudié l'allumage de mélanges méthane/air et propane/air par chauffage de particules d'aluminium. Ils ont trouvé des énergies minimums d'allumage tout à fait comparables à celles publiées par Lewis et von Elbe (1987). Malheureusement, ils n'ont pas tenu compte de l'énergie absorbée par les particules elles-mêmes et les valeurs présentées doivent être considérées comme une borne inférieure.

L'allumage photochimique, consiste à l'aide d'un photon, généralement dans l'ultraviolet, à fournir de l'énergie au système par absorption et provoquer ainsi la dissociation des molécules. Ce processus n'implique pas de photoionisation, et ne conduit donc pas au claquage du gaz. Il se produit également un très faible chauffage du gaz, produisant des espèces dissociées qui ne se trouvent pas à l'équilibre thermique et/ou peuvent se recombiner en libérant de l'énergie. Les radicaux produits par photolyse conduisent aux réactions de branchement si leur taux de production est plus important que leur taux de recombinaison.

L'allumage par claquage non-résonant s'initie généralement par des processus d'ionisation multiphotonique d'une faible quantité de molécules. Les électrons ainsi créés peuvent dès lors absorber plus de photons, et augmenter leurs énergies cinétiques. Les électrons libérés entrent en collision avec d'autres molécules et les ionisent à leur tour, produisant ainsi un phénomène d'avalanche.

Les transitions multiphotoniques sont généralement essentielles dans la première étape du claquage puisque l'énergie transportée par les photons, aux longueurs d'ondes optiques est beaucoup plus faible que le potentiel d'ionisation des particules qui constituent le gaz. Pour des impulsions très courtes, typiquement de l'ordre de quelques picosecondes, l'ionisation multiphotonique doit, à elle seule, suffir à produire le claquage du gaz, puisque l'échelle de temps est beaucoup trop petite pour que des collisions électrons-molécules se produisent. Dans ce type d'allumage, il faut également tenir compte des processus de pertes, telles que les pertes par diffusion, par rayonnement ou par désexcitation par collision. Tout cela rend l'irradiance critique nécessaire au claquage dépendant du volume de focalisation, de la pression, du type de gaz, de la présence d'impuretés, etc.

Les processus de perte rendent le seuil de claquage extrêmement élevé, c'est-à-dire que ce type d'allumage requiert des sources lasers fournissant des impulsions très énergétiques et de très courtes durées.

Et enfin, l'allumage par claquage résonant. Il s'agit d'une technique similaire à la précédente, mais qui implique une photodissociation multiphotonique non-résonante des molécules suivie par une photoionisation résonante des atomes créés par la photodissociation. L'allumage de flammes par cette méthode a été développé par Forch et Miziolek (1978). À l'heure actuelle, ce type de technique s'est montré fructueux pour deux systèmes :

- pour des mélanges de O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>O. L'allumage fut assuré par un laser accordable dans l'ultraviolet, à des longueurs d'onde proches de 225.6 nm (Forch et Miziolek, 1978).
- pour les molécules  $H_2$  et  $D_2$  près de 243 nm (Forch et Miziolek, 1987)

En vue d'une application potentielle à des moteurs aéronautiques, la technique utilisée doit être exploitable avec différents carburants. Cela, s'ajoutant au fait qu'il existe une grande similitude entre l'allumage traditionnel, c'est-à-dire à l'aide de bougie, et le claquage optique non-résonant, a dirigé notre choix vers ce type d'allumage.

L'objectif du présent travail est d'effectuer une étude paramétrique de l'allumage laser d'un mélange gazeux et diphasique combustible/comburant et d'apporter une contribution à la compréhension des phénomènes physiques liés au claquage optique aussi bien dans l'air que dans des mélanges inflammables.

Le deuxième chapitre est dédié à la caractérisation d'un plasma d'air en termes de température et de concentration électronique par spectroscopie d'émission. Dans un premier temps, nous y décrivons la configuration expérimentale utilisée. Une grande partie de ce chapitre est consacrée à la description détaillée des méthodes de calibration utilisées aussi bien en intensité qu'en longueur d'onde. Ensuite, nous détaillons les techniques de dépouillement utilisées à chaque étape. Enfin, nous exposons les résultats obtenus pour le plasma d'air créé par claquage optique.

Lorsqu'on libère, pendant un temps très court, une certaine quantité d'énergie suffisante pour augmenter la température d'un très petit volume du mélange inflammable jusqu'à une température critique d'allumage, les réactions de combustion produisent également de la chaleur. Il arrive que ces deux contributions (énergie de l'étincelle + énergie due à la combustion) ne suffisent pas à compenser les pertes qui peuvent être d'autant plus importantes que le volume dans lequel l'énergie est déposée est petit. Cela est dû au fait que la contribution la plus importante aux pertes se fait à travers la surface du noyau, et que cette surface augmente plus lentement que le volume. Le noyau dans lequel l'énergie est déposée peut donc se refroidir très rapidement et revenir à sa température initiale. Lorsque ce volume est porté à une température plus importante, il va, en brûlant, chauffer de plus en plus son voisinage immédiat et augmenter ainsi le taux de combustion dans les régions plus chaudes. Le noyau d'allumage va ainsi augmenter de taille.

En revanche, si le volume initial est plus grand, la même énergie produira une température plus élevée, étant donné que le mélange chauffera plus vite qu'il ne perdra de l'énergie. L'allumage ne dépend donc pas simplement de la température initial du noyau, mais également de sa taille.

Nous consacrons donc le troisième chapitre à une étude paramètrique du claquage dans l'air ainsi qu'à l'allumage de mélanges gazeux et diphasiques inflammables. Cette étude est faite pour plusieurs longueurs d'onde (355, 532 et 1064 nm) et plusieurs valeurs de focales (50, 75,

100 et 150 mm). Nous présentons l'évolution de l'énergie transmise en fonction de l'énergie du rayonnement incident, courbes d'une importance cruciale, étant donné qu'elles nous indiquent quelle fraction de l'énergie incidente est effectivement déposée dans le milieu et peut potentiellement servir à la combustion. Ensuite, nous présentons des mesures d'énergie minimum pour des mélanges méthane/air. Les richesses considérées vont de 0.7 à 1.5. Nous présentons à ce titre les courbes donnant la probabilité d'allumage en fonction de l'énergie incidente. L'énergie minimum est ensuite déterminée en adoptant une définition communément admise dans la littérature spécialisée.

Les travaux de recherche publiés sur l'allumage laser d'un mélange gazeux restent encore relativement très limités, et ceux concernant l'allumage laser d'un mélange diphasique ont essentiellement fait l'objet de dépôt de brevets (Few et Lewis, 1990, 1993).

L'allumage d'un nuage de gouttes, tel qu'un nuage de kérosène, dans un écoulement d'air est un processus d'une importance considérable dans de nombreux systèmes de combustion. Actuellement, la conception d'un système d'allumage fiable et reproductible reste un vrai défi pour l'industrie aéronautique. Le combustible est souvent transporté et stocké sous forme liquide. De plus, il s'agit d'un sujet spécialement crucial dans l'utilisation des turbines à gaz aéronautiques vu les problèmes de rallumage en vol à haute altitude. En effet, actuellement le système d'allumage (*i.e.*, bougie), utilisé dans les moteurs aéronautiques se situe proche des parois de la chambre de combustion. L'extinction de la flamme à haute altitude contraint, à l'heure actuelle, les pilotes à descendre d'altitude jusqu'à ce que le bon mélange combustible/air atteigne la bougie.

Nous clôturons donc ce chapitre par l'étude de l'allumage d'un nuage de gouttes. Étude cruciale du point de vue des applications, mais également d'un point de vue plus fondamental étant donné l'absence totale, à notre connaissance, de travaux traitant de ce sujet.

La maîtrise de la focalisation du rayonnement laser est capitale dans notre étude. C'est dans ce contexte que le quatrième chapitre présenté trouve pleinement sa justification. Il s'agit d'un chapitre plus théorique traitant du rôle des aberrations primaires sur la distribution d'intensité, dans une région proche du point focal gaussien de la lentille de focalisation. Cette étude est faite dans le cadre de la théorie diffractive des aberrations. Après un rappel théorique, nous établissons l'expression de l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff utilisée. Étape indispensable étant donné la diversité des notations, parfois ambigues, utilisées dans la littérature (Linfoot et Wolf, 1956; Born et Wolf, 1980; Goodman, 1968). D'un point de vue théorique, seule l'aberration sphérique est considérée. En effet, nous montrons que dans le cas d'un système soigneusement aligné, leur contribution est la plus importante. Tous les calculs sont effectués dans l'approximation des lentilles minces et pour des lasers monomodes et multimodes. Nous présentons les distributions d'intensité dans un plan méridional pour différentes valeurs de l'aberration sphérique. Nous montrons entre autres que les relations, généralement utilisées dans le cadre de l'optique géométrique, pour estimer le volume de focalisation, peuvent se révéler complètement fausses dans certaines conditions. Nous montrons ainsi que l'utilisation de ces relations peut se faire sous certaines conditions. Une mesure de l'irradiance seuil de l'air est obtenue. Pour finir, le chapitre se conclut sur trois petites expériences permettant de mettre en évidence l'influence des différents types d'aberration sur la détermination du seuil de claquage.

Par ailleurs, la possibilité de modeler la géométrie de l'étincelle permet l'optimisation de la dynamique de relaxation du phénomène pour une application spécifique. Par exemple, diminuer le rapport de la surface au volume du noyau d'allumage peut conduire à l'optimisation l'allumage des régimes pauvres.

Le cinquième chapitre présente un modèle, que nous avons développé, permettant de prédire le seuil de claquage dans un milieu gazeux. Afin de déterminer l'énergie seuil requise pour produire le claquage, nous avons calculé l'évolution de la concentration d'électrons libres dans le volume de focalisation sous l'influence d'une impulsion laser. Tous les modèles existants, négligent généralement les recombinaisons ou les transitions multiphotoniques. Ce dernier processus est généralement pris en compte en postulant *a priori* la présence d'un électron primaire dans le volume focal. Dans notre analyse, nous avons tenu compte de tous ces termes. Le taux d'ionisation multiphotonique utilisé dans notre modèle est celui proposé par (Keldysh, 1965). En plus de l'effet du système optique et des différents paramètres sur le seuil de claquage, nous avons étudié l'influence de la présence des impuretés sur la valeur de ce seuil à plusieurs longueurs d'onde. Nous montrons à ce propos que l'évolution du seuil en fonction de la longueur d'onde n'est pas aussi simple que celle à laquelle on pourrait s'attendre. Ce modèle simplifié nous permet d'expliquer certaines contradictions apparentes que l'on trouve dans la littérature sur les valeurs du seuil de claquage mesurées par différents groupes.

Dans le cas de l'allumage par une étincelle électrique, les effets de la vitesse de l'écoulement et de la turbulence sur l'énergie minimum d'allumage ont été étudiés, mais comment l'écoulement affecte la formation et le développement d'une étincelle laser reste encore une question ouverte.

Le sixième chapitre présente l'évolution de la forme et de la structure du noyau d'allumage naissant suite à l'allumage de mélanges méthane/air. Nous avons utilisé la fluorescence induite par plan laser pour mesurer la distribution spatiale des radicaux OH produite à l'intérieur de la zone de réaction. La série d'images enregistrées nous donne accès au taux de croissance de la flamme, à l'évolution de la forme de la flamme et à l'intensité du signal de fluorescence en fonction du temps pour des allumages réussis et avortés. Nous montrons que les premiers instants de l'évolution du noyau d'allumage sont dominés par la dynamique induite par l'étincelle laser.

Le septième et dernier chapitre traite de la faisabilité de l'allumage laser à la sortie d'un injecteur prévaporisé prémélangé en régime pauvre, similaire aux injecteurs utilisés dans les moteurs d'aviation. Le combustible utilisé est le n-heptane sous forme liquide. Le combustible est entraîné par un écoulement d'air chauffé avec un niveau de turbulence élevé. Après une description complète du montage expérimental, nous présentons et discutons les résultats. Une attention particulière est accordée aux mesures des énergies minimums pour différentes positions du point focal dans la chambre de combustion. L'influence de l'énergie incidente sur la probabilité d'allumage est également présentée. Finalement, des images d'ombroscopie prises à l'aide d'une caméra rapide sont présentées et commentées.

## Chapitre 2

### CARACTÉRISATION D'UN PLASMA LASER D'AIR PAR SPECTROSCOPIE D'ÉMISSION

## 2.1 Introduction

Le claquage par laser dans un gaz a suscité un intérêt grandissant depuis les premières applications des lasers. D'excellents articles traitant de divers aspects de ce sujet ont été publiés. Une revue des premiers travaux et résultats importants a été présentée par Morgan (1975). Les travaux traitant des étincelles lasers, dans leur majorité, concernent essentiellement les mécanismes de couplage de l'énergie et des seuils de claquages. Seules quelques rares études traitant de la spectroscopie d'émission du plasma laser ont été faites.

Stricker et Parker (1982) ont étudié les caractéristiques du plasma obtenu suite au claquage de N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> à l'aide d'un laser nanoseconde (10 ns) à 1064 nm, et ce pour des pressions variant de 1 à 50 atm. Les auteurs présentent des spectres d'émission intégrés ainsi que résolus temporellement. La région spectrale étudiée s'étend de l'ultraviolet (200 nm) au proche infrarouge (1  $\mu$ m). Ils montrent entre autres que le spectre d'émission présente un continuum très intense auquel se superposent des raies atomiques très intenses également qu'ils identifient comme provenant de l'oxygène neutre (O I) et une fois ionisé (O II). Aucune raie appartenant à l'oxygène deux fois ionisé ou aux espèces moléculaires O<sub>2</sub> et O<sub>3</sub> n'a été observée. La structure des raies disparaît aux pressions élevées. Pour les pressions supérieures à 4 atm le spectre consiste simplement en un continuum auquel se superposent trois raies de l'atome de l'oxygène neutre : 777.4 nm ( ${}^{5}S{-}{}^{5}P$ ), 844.6 nm ( ${}^{3}S{-}{}^{3}P$ ) et 926.3 nm ( ${}^{5}S{-}{}^{5}D$ ). Mandelshtam et al. (1964) ainsi que Daiber et Winans (1968) ont présenté des résultats très similaires dans le cas de plasmas laser produits dans de l'azote et dans de l'air.

Les auteurs fournissent une estimation de la densité électronique, aux premiers instants du développement de l'étincelle, en mesurant les largeurs de deux raies de O II. La première raie se situe à 372.733 nm (une composante du multiplet  ${}^{4}P{-}^{4}S^{0}$ ). La deuxième, quant à elle, est une composante du multiplet  ${}^{2}P{-}^{2}P^{0}$  et se situe à 397.326 nm. Les auteurs ont choisi ces raies pour minimiser les erreurs dues au recouvrement par les autres composantes des multiplets. Les densités électroniques obtenues sur ces raies sont respectivement  $2.0 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> et  $2.6 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>; ce qui donne une densité électronique moyenne de  $2.3 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>. Des concentrations électroniques semblables ont été mesurées par Mandelshtam et al. (1964).

Les mesures des températures aux premiers instants ont été obtenues en considérant les intensités relatives de six raies de l'oxygène une fois ionisé : 372.3 nm, 397.3 nm, 418.8 nm, 441.8 nm, 459.3 nm et 470.4 nm. Les températures obtenues sont respectivement de 30280, 31700 et 31800 K pour des énergies par impulsion de 110, 170 et 195 mJ. Il est à noter que les valeurs des concentrations électroniques et des températures présentées par Stricker et Parker (1982) sont des valeurs obtenues en intégrant sur des temps les 15 à 20 premières ns, durant lesquelles l'étincelle est complètement développée.

Contrairement à Stricker et Parker (1982), Armstrong et al. (1983) ont étudié le claquage laser de N2, O2, et Ar aux basses pressions. Les spectres d'émission intégrés sont présentés pour les trois gaz à 10 et 125 Torr. La plage spectrale étudiée s'étant de 300 nm à 600 nm. Les auteurs ont observé la présence de  $N_2$ ,  $N_2^+$ ,  $N^+$ ,  $N^{2+}$  et  $N^{3+}$  ainsi que  $O^+$  et  $O^{2+}$  et  $Ar^+$  et  $Ar^{2+}$  pour le claquage respectivement dans N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> et Ar. Les auteurs relèvent l'absence de O<sub>2</sub>,  $O_2^+$  et  $O^{3+}$ . Les expériences menées à des pressions supérieures à la pression atmosphérique (Stricker et Parker, 1982) n'ont pas révélé la présence de ces espèces plusieurs fois ionisées, ce qui indique un fort quenching aux plus fortes pressions. Des densités électroniques de l'ordre de  $10^{18}$  cm<sup>-3</sup>sont obtenues à partir de l'élargissement des raies (deux à trois fois plus larges). Aucune indication quant au choix des raies utilisées n'est fournie. En plus de la présence des raies, un large continuum est observé à 125 Torr; continuum qui n'apparaît pas à 10 Torr. Ce continuum présente un maximum à 420 nm et une largeur à mi-hauteur de 150 nm et est identique pour l'oxygène et l'azote. Néanmoins, Armstrong et al. (1983) signalent que ce continuum ne correspond pas à l'émission d'un corps noir et concluent qu'il doit avoir son origine dans le rayonnement dû au bremsstrahlung. À 10 Torr, les auteurs trouvent repectivement pour N<sup>+</sup> et O<sup>+</sup> des températures de 17900±1400 K et 26700±1600 K ; à 125 Torr, les températures sont de 24400±2700 K pour N<sup>+</sup> et 24300±2700 K pour O<sup>+</sup>.

Hornkohl et al. (1991) ont étudié le spectre d'émission spontanée du système violet de CN à la suite du claquage (laser excimer) d'un mélange  $CO_2/N_2$  à pression atmosphérique. Dans le cas d'un tel mélange, le spectre dû à la recombinaison moléculaire prend forme environ 400 ns après la création du plasma laser. Les transitions, pour lesquelles  $\Delta v = 0$ , du système violet de CN ( $B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ ) sont les plus prépondérantes. Les températures ont été déterminées par minimisation du résidu, en fonction de la température entre le spectre de CN mesuré et celui obtenu par simulation. Hornkohl et al. obtiennent des températures de 8300±490 K et 7940±210 K.

Le claquage optique dans un gaz de H<sub>2</sub> a été étudié par Litvak et Edwards (1966). Le claquage était produit à l'aide d'un laser à rubis (694.3 nm) à impulsion (30 ns). Le plasma était produit par des impulsions de 200 mJ. La pression du gaz variait de 1 à 70 atm. Litvak et Edwards ont reporté des concentrations allant jusqu'à  $4 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> à pression atmosphérique pour des températures de l'ordre de 2000 K.

Parigger et al. (1995) a présenté l'évolution de la concentration électronique ainsi que de la température d'excitation en fonction du temps, pour un gaz d'hydrogène à la pression atmosphérique. Les densités électroniques sont déduites de l'élargissement de la raie  $H_{\alpha}$  par effet Stark. Pour les temps les plus avancés (20 ns) jusqu'à 1 µs Parigger et al. trouvent des largeurs allant de 30 nm jusqu'à 1 nm; ce qui correspond à des concentrations allant de  $\simeq 10^{19}$  cm<sup>-3</sup> à  $7 \times 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>. À 3 µs une concentration électronique de  $3 \times 10^{15}$  cm<sup>-3</sup> est obtenue. Des températures de  $10^5$  K (20 ns) à 5000 K (1 µs) ont été déduites de l'intensité relative des trois

premières raies de la série de Balmer ( $H_{\alpha}$ ,  $H_{\beta}$  et  $H_{\gamma}$ ).

### 2.2 Montage expérimental

Le montage expérimental est présenté à la figure 2.1. Il est constitué d'un laser Nd :YAG (Surelight-CONTINUUM) équipé d'un cristal doubleur et tripleur de manière à pouvoir travailler avec le fondamentale (1064 nm), le premier (532 nm) et le deuxième harmonique (355 nm). L'énergie du laser d'allumage est ajustée en jouant sur l'angle relatif entre la paire de polariseurs placée en amont de la lentille de focalisation (150 mm).



FIG. 2.1: Montage expérimental

Le monochromateur utilisé est de type Czerny-Turner. Il est constitué d'une fente d'entrée, d'un élément collimateur permettant de rendre tous les rayons passant à travers un point de la fente d'entrée parallèles entre eux, d'un élément disperseur – dans notre cas il s'agit d'un réseau – d'un élément focaliseur pour former l'image de la fente d'entrée dans le plan focal (matrice CCD). Les caractéristiques du monochromateur sont résumées au tableau 2.1. À la sortie du monochromateur, on trouve une caméra intensifiée PI-MAX (Roper Scientific) dont la matrice CCD est composée de  $512 \times 512$  photocathodes de  $24 \times 24$  µm. La matrice CCD est placée dans

le plan focal du deuxième miroir du monochromateur. Le spectromètre (monochromateur + caméra) est couplé optiquement au plasma étudié par l'intermédiaire d'une paire de lentilles de 150 et 300 mm de focale.

Configuration	Type Czerny-Turner
Distance focale des miroirs asphériques	500 mm
Ouverture relative $f/\#$	6.5
Dimensions des fentes d'entrées	Largeur ajustable de 10 $\mu$ m à 3 mm
	Hauteur de 14 mm
Réseaux de diffraction	600, 1200, 2400 traits/mm
Dimensions du réseau	$68{\times}68~\mathrm{mm}$

TAB. 2.1: Caractéristiques du monochromateur SpectraPro 500i

### 2.2.1 Les réseaux de diffraction

Les réseaux de diffraction sont utilisés pour disperser la lumière, en séparant spatialement les différentes longueurs d'ondes. Ils consitent en un substrat qui comporte un grand nombre de traits parallèles sur sa surface et sont recouverts d'un matériau réfléchissant tel que l'aluminium.



FIG. 2.2: Section d'un réseau

La relation fondamentale d'un réseau est la suivante :

$$\sin\alpha + \sin\beta = m\lambda n \tag{2.1}$$

où  $\alpha$  : angle du réseau incident avec la normale du réseau

- $\beta$  : angle du rayon diffracté avec la normale du réseau
- m: ordre d'interférence (nombre entier positif ou négatif)
- $\lambda$  : longueur d'onde
- n : nombre de traits par unité de longueur

Cette équation traduit, pour une direction donnée, l'égalité entre la différence de marche entre deux rayons diffractés par deux traits successifs du réseau et un nombre entier de longueurs d'ondes. Il y a alors interférence constructive entre tous les traits du réseau.

Le fente d'entrée et le miroir collimateur fixent la direction du faisceau incident sur le réseau. La position du miroir focaliseur et la fente de sortie fixent l'angle de déviation ( $D_v = \beta - \alpha$ ). Lorsque le réseau tourne, les angles  $\alpha$  et  $\beta$  changent, bien que leur différence reste constante. L'angle de déviation est donc fixé par la géométrie du monochromateur.

De plus, pour une densité de réseau d donnée et pour des angles  $\alpha$  et  $\beta$  fixés, on a  $m\lambda =$  constante, c'est-à-dire que si par exemple l'ordre de diffraction est doublé, la longueur est divisée par deux. Comme le montre la figure 2.3, à une position fixée, les longueurs d'ondes  $\lambda$ ,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/3$ , et ainsi de suite, seront présentes. Les caractéristiques du réseau se manifestent donc par :

- la multiplicité des ordres qui se traduit par l'observation de plusieurs directions d'émergence  $\beta$  pour une radiation monochromatique d'incidence  $\alpha$  donnée ;
- la superposition, dans une direction d'émergence β de plusieurs radiations transmises dans des ordres différents pour une même valeur de α. Cette superpostion doit être évitée afin d'éliminer toute ambiguïté dans la détermination des longueurs d'ondes et dans l'intensité des radiations reçues par le détecteur.

Afin de supprimer les ordres supérieurs, on utilise des filtres passe-haut de longueur d'onde de coupure adaptée. On notera toutefois que la région spectrale située entre 200 et 380 nm ne nécessite pas l'utilisation d'un filtre, étant donné que les rayonnements de longueurs d'ondes en-deçà de 190 nm sont absorbés par l'air.

Ordre de diffraction					
1 er	200.0	400.0	600.0	800.0	1000.0
2ème	100.0	200.0	300.0	400.0	500.0
3ème	66.6	133.3	200.0	266.6	333.3
4ème	50.0	100.0	150.0	200.0	250.0

FIG. 2.3: Ordre de diffraction

### 2.2.2 Le pouvoir de résolution

Le pouvoir de résolution est défini par :

$$R = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \tag{2.2}$$

où  $\Delta\lambda$  est la différence de longueur d'onde entre deux raies spectrales de même amplitude. Le critère de Rayleigh indique que deux pics sont considérés comme résolus si la distance qui les

sépare est telle que le maximum de l'un tombe sur le premier minimum de l'autre. On peut montrer que le pouvoir de résolution d'un réseau est donné également par :

$$R = mLn \tag{2.3}$$

où m, L et n correspondent respectivement à l'ordre de diffraction, à la largeur éclairée du réseau et à la densité de trait du réseau.

#### 2.2.3 Dispersion angulaire et linéaire

La dispersion angulaire représente le rapport de la variation  $d\beta$  de la direction d'émergence donnée par le réseau sur la variation de longueur d'onde  $d\lambda$  du rayonnement incident. En différentiant la relation 2.1, la dispersion angulaire est donnée par :

$$\frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{mn}{\cos\beta} \tag{2.4}$$

La dispersion linéaire définit, quant à elle, l'étendue de l'intervalle spectral projetée sur le plan focal de sortie du spectromètre. Cette dispersion s'exprime en nm/mm et est donnée par la relation suivante :

$$\frac{d\lambda}{dx} = \frac{\cos\beta}{mnf} \tag{2.5}$$

où dx et f correspondent respectivement à l'intervalle de longueur sur lequel s'étend la région spectrale  $d\lambda$  et à la distance focale du miroir de sortie. Pour chaque position du réseau (200, 220 nm, etc.), on relève la longueur d'onde correspondant à plus ou moins 20 pixels par rapport à la longueur d'onde centrale (pixel 255). Sachant que chaque pixel correpond à 24  $\mu$ m, on en déduit la distance en mm entre ces pixels extrêmes. La dispersion linéaire est alors calculée par la relation suivante :

$$\frac{d\lambda}{dl} = \frac{\lambda_{+20} - \lambda_{-20}}{l_{+20} - l_{-20}}$$
(2.6)

où  $\lambda_{-20}$  et  $\lambda_{+20}$  représentent les longueurs d'ondes lues aux pixels 235 et 275.  $l_{-20}$  et  $l_{20}$  correspondent aux distances en mm séparant ces pixels du pixel 255. La figure 2.4 présente la dispersion linéaire mesurée, ainsi que la dispersion linéaire théorique en fonction de la longueur d'onde.



FIG. 2.4: Dispersion linéaire théorique et expérimentale en fonction de la longueur d'onde

#### 2.2.4 La fonction d'appareil

Un spectromètre se caractérise par sa fonction d'appareil, à savoir sa réponse impulsionnelle spectrale, qui est la réponse à un rayonnement parfaitement monochromatique. En général, on mesure la réponse impulsionnelle d'un spectromètre à l'aide d'un laser He-Ne (633 nm). Cette réponse n'est pas ponctuelle mais s'étale sur un certain domaine de longueur d'onde. On définit également la bande passante du système comme la largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareil. Le cas d'une source continue se traite en considérant la décomposition de densité spectrale de luminance en une infinité de composantes monochromatiques. On montre que le spectre mesuré correspond au produit de convolution du spectre réel et de la fonction d'appareil. La forme de la fonction d'appareil dépend de divers paramètres tels que les largeurs des fentes d'entrée et de sortie, les phénomènes de diffraction, les aberrations ainsi que de la qualité du système optique et de son alignement. Chacun de ces facteurs peut être caractérisé par une fonction de  $\lambda$ . La fonction d'appareil totale s'exprime par la convolution des termes individuels. Remarquons que généralement l'influence de la largeur des fentes domine dans la fonction d'appareil.

Si la fente d'entrée est infiniment étroite et les aberrations négligeables, la fonction d'appareil est celle d'une forme de diffraction classique. Dans ce cas la résolution du système correspond à la longueur d'onde divisée par le pouvoir de résolution théorique du réseau. Ceci ne peut être obtenu qu'au prix d'une perte de luminosité très importante.

Si à l'inverse, nous considérons que la tâche de diffraction est très petite devant la largeur des fentes, le flux transmis correspond alors au produit de convolution d'une distribution d'éclairement (image de la fente d'entrée) par un facteur de transmission rectangulaire représentant la fente de sortie.



FIG. 2.5: Fonctions d'appareil d'un spectromètre à fentes

Le résultat est un signal de forme trapézoïdale dont la hauteur dépend de la largeur de la fente la plus petite et dont la largeur à mi-hauteur est égale à la largeur de la fente la plus large. À la figure 2.5, nous présentons les fonctions d'appareil obtenues pour une fente de sortie fixe et différentes largeurs de fente d'entrée.  $\Delta \lambda_e$  et  $\Delta \lambda_s$  sont respectivement données par les largeurs des fentes d'entrée et de sortie que multiplie la dispersion linéaire. La fonction d'appareil du système utilisé est représentée à la figure 2.6



FIG. 2.6: Fonctions d'appareil d'un spectromètre à fentes

#### 2.2.5 Optique d'entrée

Des rayons lumineux qui entrent dans le spectromètre avec une incidente plus importante que celle acceptée par la pupille d'entrée du disperseur ne seront pas transmis par le spectromètre. Ces rayons provoquent de la lumière parasite dans l'instrument et dégradent donc le résultat. Au contraire, des rayons entrant dans le spectromètre sous une incidence trop faible ne vont pas couvrir le détecteur de façon optimale et risquent de dégrader le rapport signal sur bruit du système. Il est donc essentiel d'adapter l'étendue du faisceau incident à celle du spectromètre.

Pour déterminer le nombre f/# d'un spectromètre utilisant un réseau rectangulaire, il est d'abord nécessaire de calculer le diamètre apparent D' vu de la fente d'entrée et D'' vu de la fente de sortie, grâce à l'aire projetée du réseau. On montre ainsi que  $f/\#_e$  et  $f/\#_s$  sont donnés par :

$$f/\#_e = f_1/D'$$
 (2.7)

$$f/\#_s = f_2/D'' \tag{2.8}$$

où  $f_1$  et  $f_2$  représentent respectivement la focale des miroirs collimateur et focaliseur. De plus dans le cas d'un réseau rectangulaire D' et D'' sont donnés par :

$$D' = 2\sqrt{\frac{HL\cos\alpha}{\pi}}$$
(2.9)

$$D'' = 2\sqrt{\frac{HL\cos\beta}{\pi}}$$
(2.10)

avec H et L correspondant respectivement à la hauteur et à la largeur du réseau.

De 200 et 800 nm,  $\alpha$  varie entre -5 et +5 degrés et donc  $\cos \alpha$  est compris entre 0.996 et 1. De même,  $\beta$  varie entre 12 et 22.5 degrés et donc  $\cos \beta$  est compris entre 0.924 et 0.978. Dans notre cas, nous avons utilisé un réseau de 68 mm × 68 mm avec 600 tr/mm. On obtient donc repectivement pour  $f/\#_e$  et  $f/\#_s$ , 6.52 ± 0.01 et 6.7 ± 0.1.

Le couplage optique entre la source (étincelle laser), le système optique d'entrée et le spectromètre doit donc s'effectuer avec un nombre f/# aussi proche que possible de f/6.5. Nous disposons de lentilles dont le diamètre efficace est de 50 mm. La distance focale de la lentille utilisée ne peut donc pas excéder 325 mm. L'image de l'étincelle sur la fente d'entrée du spectromètre est obtenue à l'aide du couplage de deux lentilles sphériques. La première lentille a une distance focale de 150 mm et sert à collimater la plus grande partie du rayonnement émis par l'étincelle. La deuxième lentille a une distance focale de 300 mm et permet de focaliser le faisceau collimaté produisant ainsi l'image de l'étincelle grossie deux fois sur la fente d'entrée.

#### 2.2.6 Appareil de détection

La détection à la sortie du monochromateur s'effectue au moyen d'une caméra intensifiée PI-MAX (Roper Scientific). Cette caméra est constituée d'une matrice CCD et d'un intensificateur.

#### Caractéristique de la matrice CCD

La matrice CCD est composée d'un ensemble de  $512 \times 512$  photodiodes de  $24\mu m \times 24\mu m$  chacune. La taille des pixels est choisie afin d'obtenir des capacités de  $3 \times 10^5$  à  $8 \times 10^5$  électrons par pixel, ce qui permet une plus grande dynamique et une bonne résolution. Remarquons que la résolution effective d'une matrice CCD peut toujours se réduire en sommant les pixels horizontalement ou verticalement (*binning*). Cela permet d'augmenter la dynamique, tout en réduisant le temps de lecture et le bruit.

La sensibilité du détecteur à une longueur d'onde donnée est spécifiée par son rendement quantique ou son efficacité quantique (*Quantum Efficiency QE*). Cette efficacité est définie par le rapport du nombre d'électrons contribuant au signal et du nombre de photons incidents et est très dépendant de la longueur d'onde du rayonnement.

La réponse spectrale de la matrice CCD est limitée de part et d'autre du spectre visible. Plusieurs facteurs limitent cette réponse. Dans le proche ultraviolet, la limite théorique de la réponse de la matrice CCD au silicium est inférieure à 190 nm (limité par la couche de  $SiO_2$ ). Dans le proche infrarouge, la réponse est théoriquement limitée à 1080 nm par la tension de gap du silicium.

Il existe plusieurs solutions pour améliorer la réponse de ces détecteurs dans le proche ultraviolet (c'est-à-dire entre 200 et 400 nm). Une solution consiste à recouvrir la surface de la matrice CCD d'une très fine couche de matériau organique qui absorbe les radiations ultraviolet et qui les réémet à une longueur d'onde plus élevée, détectable par la matrice. Ces matériaux présentent cependant un inconvénient majeur car, en raison de leur nature, tous les revêtements UV se détériorent dans le temps en s'exposant au rayonnement UV. Leurs performances et leurs durées de vie s'en trouvent donc limitées.

L'utilisation d'une photocathode transformant les photons incidents en photoélectrons puis à nouveau en photons visibles, à travers un phosphore avant de venir frapper la matrice, constitue une autre solution implémentée dans les caméras PI-MAX.

#### L'intensificateur

L'intensificateur (figure 2.7) est constitué d'une photocathode, d'une galette de microcanaux et d'un écran phosphorescent placé devant le détecteur. Il est couplé à la matrice CCD par l'intermédiaire d'un réseau de fibres optiques. La longueur d'onde de coupure basse de la fenêtre d'entrée se situe autour de 180 nm. Cette fenêtre est généralement en quartz pour une meilleure réponse dans l'ultraviolet.

La photocathode semi-transparente réémet des photoélectrons lorsqu'elle est frappée par des photons. Elle détermine la réponse spectrale du système. Les électrons émis sont accélérés par le potentiel négatif de la photocathode et traversent l'espace qui sépare cette dernière de la galette de microcanaux. Ce potentiel permet également d'utiliser l'intensificateur comme obturateur électronique très rapide (quelques ns).



FIG. 2.7: Schéma de principe de l'intensificateur

La galette de microcanaux est constituée d'un grand nombre de canaux ( $\geq 10^5 \text{ cm}^{-2}$ ) de diamètre compris entre 8 et 30 µm. Les photoélectrons sont accélérés dans les microcanaux par une différence de potentiel maintenue entre les deux surfaces de la galette. À chaque collision d'un électron avec les parois d'un canal, de nombreux électrons supplémentaires sont libérés. Le gain à la sortie de la galette est d'environ  $10^2$  à  $10^4$  lorsqu'une tension inverse de 500 à 1000 V est appliquée. Le gain de l'intensificateur se règle en jouant sur la valeur de cette tension.

Le paquet d'électrons sortant de la galette de microcanaux est ensuite accéléré par une différence de potentiel de 5 à 6 kV vers un écran phosphorescent qui réémet de nombreux photons pour chaque électron incident. Ces photons viennent enfin frapper la surface de la matrice CCD grâce au couplage optique.

Remarquons qu'étant donné que la matrice CCD et l'intensificateur sont en contact thermique, par l'intermédiaire du faisceau de fibres, il est indispensable de purger le détecteur à l'air sec ou à l'azote pendant son utilisation afin d'éviter la condensation dans le cas où l'ensemble du détecteur est refroidi.

#### Intensité en fonction du gain et du temps d'exposition

Pour pouvoir déterminer l'influence du gain et du temps d'exposition sur l'intensité collectée par le détecteur, nous avons utilisé une source d'énergie lumineuse constante, à savoir une lampe à deutérium dans l'ultraviolet et une lampe à ruban de tungstène dans le visible. Ces sources lumineuses sont placées devant le système optique d'entrée du spectromètre. La quantité de flux qui atteint le détecteur peut être modifiée de plusieurs façons. On peut utiliser un jeu de

filtres de densité neutre placés entre la source et le détecteur. On peut également avoir recours à un diaphragme de diamètre variable. Et enfin, on peut modifier l'intensité en faisant varier le gain de l'intensificateur de la matrice CCD ou le temps d'intégration de la caméra. Ces deux dernières solutions ont été retenues. L'intensité en fonction du gain et du temps d'intégration est présentée aux figures 2.8 et 2.9.

Temps (ns)	$\Delta t$ (ns)	Temps d'intégration (ns)
0–32	2	2
37–77	10	10
87–787	$10^{2}$	$10^{2}$
$10^{3}-9\times10^{3}$	$10^{3}$	$10^{3}$
$10^4 - 9 \times 10^4$	$10^{4}$	$10^{4}$
$10^{5} - 9 \times 10^{5}$	$10^{5}$	$10^{5}$
$10^{6} - 9 \times 10^{6}$	$10^{6}$	$10^{6}$
$10^{7}-9\times10^{7}$	$10^{7}$	$10^{7}$

TAB. 2.2: Différents régimes étudiés

Remarquons que des spectres enregistrés avec des temps d'exposition différents ne sont pas comparables vu l'instationnarité du phénomène étudié. Les différents temps d'intégration utilisés dépendent du moment étudié après la création du plasma. Ces temps sont résumés dans le tableau 2.2. En revanche, des spectres enregistrés avec des gains différents sont comparables pour autant qu'ils soient ramenés à un gain commun en utilisant la courbe de variation de l'in-tensité en fonction du gain (figure 2.8).



FIG. 2.8: Intensité en fonction du gain de l'intensificateur de la CDD



FIG. 2.9: Intensité en fonction du temps d'intégration

## 2.3 Étalonnage en intensité relative

Lorsqu'une onde monochromatique tombe sur un réseau, une fraction de celle-ci est diffractée dans chaque ordre. Les réseaux ne sont pas efficaces de la même manière sur tout le domaine spectral. La longueur d'onde pour laquelle le réseau est le plus efficace s'appelle longueur de blaze. L'efficacité des réseaux est assez faible en dehors d'un domaine limité et plus ou moins centré autour de la longueur de blaze. De plus, comme le montre la courbe de sensibilité de la cathode fournie par le constructeur (figure 2.10), la cathode ne réagit pas de la même manière aux différentes longueurs d'onde.



FIG. 2.10: Sensibilité de la cathode constituant la matrice CCD (sn 9816038) de la caméra PI-MAX (sn 5099802)

Des sources radiométriques très stables servant d'étalon sont disponibles. Afin d'obtenir des

puissances convenables dans l'ultraviolet, on utilise généralemment des sources de types "carbonn arc" ou "high power xenon arc". Bien que les sources de ce type émettent un continuum équivalent respectivement à ceux de corps noirs à 3800 K et 4000 K, leurs spectres d'émission présentent des raies pouvant compliquer la procédure de calibration. La lampe à deutérium émet un continuum dans l'ultraviolet produit par la transition entre le premier état électronique stable excité,  ${}^{3}\Sigma_{a}^{+}$ , et l'état répulsif  ${}^{3}\Sigma_{u}^{+}$  (Samson, 1967).



FIG. 2.11: Irradiance spectrale de la lampe à deutérium

La lampe à deutérium utilisée dans notre étude est une lampe ORIEL. L'irradiance spectrale à une distance de 0.5 m, lorsqu'elle est alimentée par un courant de 300 mA, est fournie dans le rapport de calibration et est présentée à la figure 2.11.

Le spectre de la lampe à deutérium et de la lampe à ruban de tungstène est mesuré dans les mêmes conditions optiques et géométriques que celui de l'étincelle laser; seules les durées d'acquisition diffèrent. La fonction d'étalonnage du système, pour le pixel *i*, est alors donnée par :

$$F_i(\lambda) = \frac{I_{e}(\lambda)\Delta\lambda(i)}{I_{e}^{m}(\lambda)}$$
(2.11)

où  $\Delta\lambda(i)$  est l'intervalle spectral couvert par le  $i^{\text{eme}}$  pixel (24 µm que multiplie la dispersion linéraire à la longueur d'onde  $\lambda(i)$ );  $I_{e}^{\text{m}}(\lambda)$  est l'irradiance réelle de la source et  $I_{e}^{\text{m}}(\lambda)$  est le signal mesuré à partir de la source étalon.

Dans le cas de la lampe à ruban de tungstène, nous ne disposons pas de la courbe de calibration correspondante. Néanmoins, la mesure de la température du ruban de tungstène, dans les conditions de fonctionnement au cours de la procédure de calibration nous permet, connaissant l'émissivité du tungstène à différentes températures (figure 2.13), d'obtenir l'irradiance émise. Cette température est mesurée à l'aide d'un pyromètre optique. Il s'agit d'un système permettant la mesure de température d'un corps incandescent en comparant l'irradiance émise par ce corps à celle d'un filament chauffé lorsqu'il est traversé par un courant électrique. La température du filament est une fonction connue du courant qui la traverse. Le courant varie jusqu'à obtenir un même niveau de couleur; les deux corps sont alors à la même température. Les mesures de température en fonction du courant alimentant la lampe à ruban de tungstène sont présentées à la figure 2.12.



FIG. 2.12: Température du ruban de tungstène en fonction du courant d'alimentation

L'irradiance de la lampe à tungstène est alors donnée par :

$$I(T,\lambda) = \varepsilon(T,\lambda) \frac{2\pi c^2 h/\lambda^5}{\exp(hc/\lambda kT) - 1}$$
(2.12)

où  $\varepsilon(T, \lambda)$  représente l'émissivité du tungstène (figure 2.13), c la vitesse de la lumière dans le vide, h la constante de Planck, k la constante de Boltzmann, T la température du ruban et  $\lambda$  la longueur d'onde. Dans notre cas, le courant de l'alimentation est fixé à 14 A, pour une tension de 6 V, ce qui donne une température de 2200 K (figure 2.12). L'irradiance de la lampe à ruban de tungstène est présentée à la figure 2.14.



FIG. 2.13: Émissivité en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures (Larrabee, 1959).



FIG. 2.14: Irradiance spectrale de la lampe à ruban de tungstène

## 2.4 Synchronisation

La réalisation de la spectroscopie d'émission d'un plasma créé par laser nécessite la synchronisation du laser et du système de détection. En effet, nous devons :

- déclencher les lampes flash de façon à activer le barreau;
- activer la photocathode de l'intensificateur avant le tir laser, ce qui revient à ouvrir l'obturateur de la caméra;
- quelques 180 µs après le déclenchement des lampes flash, le Q-switch est déclenché ;

 pendant ou après le passage de l'impulsion au point focal de la lentille, la photocathode de l'intensificateur est désactivée.

Étant donné que l'on veut étudier l'évolution du plasma, on doit pouvoir modifier le moment où le détecteur acquiert le spectre. Cela se fait en modifiant le délai entre le déclenchement des lampes flash et l'activation de la photocathode. Les connections des différents appareils ainsi qu'un chronographe des différents signaux sont présentés respectivement aux figures 2.15 et 2.16.



FIG. 2.15: Synchronisation du laser et du spectroscope

Les lasers Nd :YAG sont conçus pour opérer à une fréquence de tirs de 10 Hz. L'ensemble, laser et caméra doit donc être synchronisé à une horloge maîtresse cadencée à 10 Hz. Nous avons utilisé, comme horloge maîtresse, l'horloge interne du laser Nd :YAG. Ce dernier fournit un signal de sortie synchronisé par rapport à son horloge interne. Ce signal, qui présente un délai par rapport au signal de *Q-switch* réglable ( $\pm$  100 ns), est envoyé à une unité de synchronisation (Stanford Research DG 535) via son entrée *Trig in*. Ce générateur de fonction délai est commandé par ordinateur par l'intermédiaire de son port *GPIB*. Les sorties *A* et *B* du générateur sont connectées à l'entrée *Timing Gen* de la caméra. Ces signaux ont respectivement pour fonction d'activer et de désactiver la tension à la photocathode (obturareur). La sortie *D* du DG 535 est connectée à l'entrée *Ext. Sync.* du contrôleur. Ce signal donne l'ordre au contrôleur de démarrer un cycle de lecture de l'information stockée sur la matrice CCD, suivi de la conversion analogiques/numériques des données et enfin de transférer le résultat à l'ordinateur à travers une connection série haut-débit. Le contrôleur envoie un signal (sortie de *NOT SCAN*) au DG 535 (*INHIBIT*) pour éviter toute opération durant cette procédure.



FIG. 2.16: Chronographe

## 2.5 Protocole expérimental

Le spectre du plasma est obtenu entre 200 et 780 nm par juxtaposition des différentes portions de spectres correspondant chacune à une région spectrale déterminée. L'acquisition commence à une longueur d'onde centrale de 220 nm et s'opère par pas de 20 nm. Pour chaque position du réseau, on couvre une région spectrale de 40 nm  $(3.3 \times 10^{-3} \text{ nm/}\mu\text{m} \cdot 512 \text{ pixels} \cdot 24 \mu\text{m})$ . Le recouvrement des différentes régions spectrales permet de ne faire usage que de la partie efficace de la matrice CCD, c'est-à-dire de  $\pm 15 \text{ nm}$  autour de la longueur d'onde centrale. Pour une position du réseau fixée, nous avons enregistré les spectres pour différents instants ultérieurs à la création du plasma (0 ns  $\rightarrow$  90 ms, voir tableau 2.2). Une fois l'acquisition faite pour les différents temps, la position du réseau est modifiée de manière à incrémenter la longueur d'onde centrale de +20 nm.

L'ensemble des spectres est réalisé dans les mêmes conditions optiques (optique d'entrée, largeur des fentes d'entrée). Pour un instant donné, le temps d'exposition est maintenu à la même valeur pour toutes les positions du réseau, seul le gain est modifié d'une plage spectrale à une autre, en fonction de l'intensité collectée. Une fois les spectres enregistrés, on effectue la même procédure en plaçant à l'endroit de l'étincelle laser, la source de calibration, de manière à obtenir pour chaque position du réseau la courbe de correction correpsondante.

Une série de mesures du bruit de fond est réalisée à 500 nm, avec la fente d'entrée fermée, pour les différents temps d'exposition, gain et nombres d'accumulation de chaque série de mesures. Ce bruit de fond dû à la caméra ICCD, indépendant du domaine spectral, est ensuite soustrait des spectres réalisés. Finalement, chaque morceau de spectre est corrigé en le multipliant par la fonction d'étalonnage du système correspondante.

## 2.6 Spectres

Les figures 2.17(a) et 2.17(b) montrent les spectres d'émission de l'étincelle laser, pour différents délais par rapport à l'arrivée de l'impulsion au point focal.



(a) Spectres dans le visible pour 10, 12, 14, 16 et 18 ns après l'arrivée de l'impulsion au point focal ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$ nm).



(b) Spectres dans le visible pour 20, 30, 67 et 287 ns après l'arrivée de l'impulsion au point focal ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$ nm).

FIG. 2.17: Spectres de la région du visible pour différents instants

Aux premiers instants, c'est-à-dire 2 à 10 ns après l'arrivée de l'impulsion, on observe essentiellement un continuum d'émission dû aux recombinaisons électrons-ions et au bremsstrahlung. À ce stade, aucun pic correspondant à des raies atomiques n'est observé.

C'est seulement à partir de 12 ns que l'on voit apparaître les premiers raies atomiques. L'intensité du spectre d'émission décroît progressivement. Le maximum d'intensité se situe aux environs de 460 nm, longueur d'onde qui correspond à l'émission de la raie de l'atome d'azote une fois ionisé (460.1478 et 460.7153 nm – NIST (1999)). Ce maximum garde un niveau appréciable, c'est-à-dire compris entre 10 et 15 (en unité arbitraire), jusqu'à environ 30 ns de délai. Cette décroissance correspond, jusqu'à cet instant (30 ns), à la partie de l'impulsion décroissante. Le plasma est toujours entretenu par l'impulsion mais à l'aide d'un flux de moins en moins intense.

Pour des temps de 67 et 87 ns, on voit à la figure 2.17(b) et 2.18 un ensemble de raies atomiques qui correspondent principalement à différents niveaux d'ionisation des atomes d'oxygène et d'azote. La figure 2.18 détaille l'ensemble des transitions identifiées à l'aide d'un spectre synthétique de l'air à 25000 K construit à partir des données du NIST (1999).



FIG. 2.18: Spectre d'émission expérimental correspondant à la région spectrale comprise entre 400 et 800 nm, 87 ns après l'arrivée de l'impulsion au point focal ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$ nm).

Les espèces électroniquement excitées identifiées sur les spectres mesurés sont N<sup>+</sup>, O<sup>+</sup>. On trouve également de l'azote N<sub>2</sub> (premier système positif :  $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+$ ; second système positif :  $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g^+$ ; figures 2.19 et 2.21), du N<sub>2</sub><sup>+</sup> (premier système négatif :  $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ; second système négatif :  $C^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ; figure 2.21), de l'oxygène O<sub>2</sub> (Schumann-Runge :  $B^3\Sigma_u^- - X^3\Sigma_g^-$ , figure 2.20), du NO ( $\gamma$  :  $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_r$ ;  $\beta$  :  $B^2\Pi_r - X^2\Pi_r$ ;  $\delta$  :  $C^2\Pi_r - X^2\Pi_r$ ;  $\varepsilon$  :  $D^2\Sigma^+ - X^2\Pi_r$ ;  $\gamma'$  :  $E^2\Sigma^+ - X^2\Pi_r$ ;  $\beta'$  :  $B'^2\Sigma^+ - X^2\Pi_r$ ; figure 2.20).


FIG. 2.19: Région du spectre comprise entre 400 et 480 nm 20  $\mu$ s après le claquage ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$  nm).



FIG. 2.20: Région du spectre comprise entre 180 et 220 nm 10  $\mu$ s après le claquage ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$  nm).



FIG. 2.21: Différents états observés des molécules présentes dans le plasma laser ( $\lambda_{\text{laser}} = 355 \text{nm}$ ). Les protions de spectres supérieures et inférieures ont été enregistrées respectivement 20 µs et 10 ms après l'arrivée de l'impulsion au point focal.

## 2.7 Mesures de température à partir des intensités de raies

À côté de la détermination qualitative de la composition chimique présente au cours de la durée de vie du plasma laser, la mesure de la concentration et de la température électronique constitue un problème important.

Lorsqu'un atome excité se déséxcite, il peut émettre un photon  $h\nu$  dont la fréquence dépend de la différence d'énergie entre l'état d'énergie élevée (u) et celui d'énergie basse (l). Supposons que l'on ait  $n_u$  atomes par unité de volume. La puissance totale  $I_{ul}$  émise par ce paquet d'atomes résultant de la transition de l'atome du niveau u vers le niveau l est donnée par :

$$I_{ul} = n_u A_{ul} h \nu_{ul} \tag{2.13}$$

où  $A_{ul}$  désigne le coefficient d'Einstein d'émission spontanée et  $\nu_{ul}$  la fréquence de la transition. Toutes les fréquences de transition ainsi que les coefficients d'Einstein utilisés dans notre étude sont tirés du NIST (1999).

Postulons une répartition des populations des états selon la loi de Boltzmann :

$$n_u = \frac{n}{Z_{\text{int}}} g_u \exp\left(-\frac{E_u}{kT}\right) \tag{2.14}$$

où *n* est la population totale de l'espèce considérée,  $g_u$  est le poids statistique associé au niveau *u* d'énergie  $E_u$  et  $Z_{int}$  est la fonction de partition interne.

On peut donc écrire, pour la puissance totale émise par unité de volume :

$$I_{ul} = A_{ul}h\nu_{ul}\frac{n}{Z_{int}}g_u \exp\left(-\frac{E_u}{kT}\right)$$
(2.15)

Considérons maintenant deux transitions différentes, à savoir les transitions  $l \rightarrow k$  et  $j \rightarrow i$  et effectuons le rapport des intensités des deux raies. Nous obtenons :

$$\frac{I_{lk}}{I_{ji}} = \frac{g_l}{g_j} \frac{A_{lk}}{A_{ji}} \frac{\nu_{lk}}{\nu_{ji}} \exp\left(-\frac{E_l - E_j}{kT}\right)$$
(2.16)

On en déduit la température :

$$T = \frac{E_l - E_j}{k} \frac{1}{\ln\left[\frac{I_{lk} g_j}{I_{ji} g_l} \frac{A_{ji} \nu_{ji}}{A_{lk} \nu_{lk}}\right]}$$
(2.17)

L'incertitude relative sur la température est reliée à l'argument du logarithme népérien X par :

$$\left|\frac{\Delta T}{T}\right| = \frac{kT}{E_l - E_j} \left|\frac{\Delta X}{X}\right| \tag{2.18}$$

Pour obtenir une bonne précision, il faut que  $E_l - E_j$  soit aussi grand que possible, c'est-à-dire qu'il faut considérer pour les transitions des niveaux supérieurs très différents. De plus, notons que pour pouvoir déterminer des températures, les raies doivent être isolées du continuum. La contribution des ailes de raies à l'intégrale de l'intensité sur la fréquence peut être très importante (Griem, 1997). Il est aussi nécessaire de considérer la contribution du continuum ainsi que le recouvrement de la raie considérée avec d'autres raies voisines. Toutes ces sources d'erreurs, ajoutées à celle due à la calibration en intensité relative, ne permettent pas d'obtenir une mesure de X avec une incertitude de moins de 10% (Griem, 1997)

L'incertitude relative sur X est donnée par :

$$\frac{\Delta X}{X} = \frac{\Delta I_{ji}}{I_{ji}} + \frac{\Delta I_{lk}}{I_{lk}} + \frac{\Delta A_{ji}}{A_{ji}} + \frac{\Delta A_{lk}}{A_{lk}}$$
(2.19)

Pour les transitions utilisées dans notre étude, le NIST (1999) estime respectivement à 3% et 10% les incertitudes relatives sur les coefficients d'Einstein pour les raies situées à 715 et 777 nm, de l'atome d'oxygène. L'incertitude relative totale sur X est donc de 23%.

D'une certaine manière, la précision sur la mesure de la température peut être améliorée si l'on considère les intensités d'un plus grand nombre de raies (par exemple sur des séries spectrales). Dans ce cas, en portant le logarithme du rapport de l'intensité des raies considérées sur le produit  $A_{ul}h\nu_{ul}g_u$  en fonction de l'énergie des niveaux supérieurs respectifs, on obtient une droite dont l'inverse de la pente nous donne kT:

$$\ln\left[\frac{I_{ul}}{A_{ul}h\nu_{ul}g_u}\right] = A - \frac{E_u}{kT}$$
(2.20)

#### 2.7.1 Intensité de raie intégrée

Comme nous l'avons déjà signalé, la détermination de la température à partir du rapport d'intensité de raies exige que chaque raie utilisée soit isolée du continuum ainsi que du recouvrement par des raies voisines. Pour extraire l'intensité d'une raie suffisamment résolue par le spectromètre, on effectue un ajustement par la méthode des moindres carrés sur la combinaison de plusieurs fonctions de Voigt (une pour chaque raie) et d'une droite. La méthode de minimisation utilisée pour l'ajustement est celle de Levenberg-Marquardt (Press et al., 1986). Le signal mesuré est supposé de la forme suivante :

$$I(\lambda) = A\lambda + B + \sum_{i=1}^{5} I_i f_i(\lambda_c, \Delta \lambda_G, \Delta \lambda_L)$$
(2.21)

ici  $\lambda_c$  désigne la longueur d'onde du centre de la raie,  $\Delta \lambda_G$  la largeur de la gaussienne qui prend en compte l'élargissement Doppler et celui dû à la fonction d'appareil du système, et  $\Delta \lambda_L$  la largeur de la lorentzienne associée à l'élargissement Stark. Notons que les fonctions de Voigt sont normalisées et que dès lors  $I_i$  désigne directement l'intensité de la raie intégrée.



FIG. 2.22: Exemple de courbe d'ajustement pour la détermination de la température. Le coefficient de corrélation vaut 0.965 ( $\lambda_{\text{laser}} = 355 \text{nm}$ ).

Un exemple d'ajustement par cette méthode est présenté à la figure 2.22. Cette figure correspond à une région du spectre comprise entre 700 et 780 nm. On y voit cinq raies. La première correspond à la raie situé à 715.7 nm de l'oxygène, les trois suivantes correspondent au triplet de l'azote (742.4.6, 744.2 et 746.8 nm), et la dernière correspond au triplet de l'oxygène (777.2, 777.4, 777.5 nm). Le spectre est enregistré 160 ns après la création du plasma, avec un temps

d'intégration de 100 ns et correspond à une moyenne sur 100 tirs laser. Les points représentés par des croix correspondent au spectre expérimental. La courbe en traits interrompus rouges est la courbe d'ajustement obtenue à partir des contributions individuelles des cinq fonctions de Voigt et d'une droite représentées par des courbes en traits interrompus verts. L'ajustement est réalisé avec un jeu de 22 paramètres. L'ensemble des paramètres retenu correspond au signal associé selon l'équation (4.28) qui se rapproche au mieux (au sens des moindres carrées) du spectre mesuré, c'est-à-dire la courbe d'ajustement présentant un coefficient de corrélation aussi proche que possible de 1.

### 2.8 Mesures de la concentration électronique

Contrairement à certaines méthodes spectroscopiques, la détermination de la concentration électronique à partir de l'élargissemet du profil de raie n'exige pas une connaissance précise de la composition du plasma (Griem, 1997). La mesure des profils de raies combinée à une théorie de l'élargissement des raies constitue un moyen de déterminer la concentration électronique du plasma.

Parmi les divers facteurs responsables de l'élargissement du profil de raie, on peut citer l'élargissement naturel lié à la durée de vie finie des niveaux excités, l'élargissement Doppler dû au décalage fréquentiel lié au déplacement de l'émetteur ou du récepteur, ainsi que l'élargissement dû à la pression.

Typiquement, dans un plasma thermique à 10000K et à pression atmosphérique, l'élargissement naturel est de l'ordre de quelques  $10^{-4}$  Å, ce qui est généralement négligeable.

En négligeant les effets dûs aux collisions et en supposant une fonction de distribution maxwellienne pour les vitesses des particules rayonnantes, on montre que le profil de raie associé à une transition est un profil gaussien (Townes et Schawlow, 1975) :

$$\Phi(\nu) = \frac{1}{\alpha_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp\left[-\ln 2 \frac{(\nu - \nu_0)^2}{\alpha_D^2}\right]$$
(2.22)

où la demi-largeur Doppler,  $\alpha_D$  est définie par :

$$\alpha_D \equiv \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2\ln 2RT}{M}} \tag{2.23}$$

R, M correspondent respectivement à la constante des gaz parfaits et à la masse molaire de la particule rayonnante.

Les mécanismes responsables de l'élargissement dû à la pression sont divers. Néanmoins, l'effet Stark causé par le champ électrique produit par les électrons et les ions environnants est une des causes majeures de ce type d'élargissement dans les plasmas. Le profil de raie associé n'a pas, dans le cas général, d'expression analytique simple. Dans le cadre de l'approximation d'impact et de raies isolées, on montre que le profil est de forme lorentzien (Townes et Schawlow, 1975) :

$$\Phi(\nu) = \frac{1}{\pi} \frac{\alpha_L}{(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_L^2}$$
(2.24)

où  $\alpha_L$  représente la demi-largeur à mi-hauteur du profil.

Si on peut considérer que ces deux mécanismes sont statistiquement indépendants, le profil résultant est un profil dit de Voigt et correspond à la convolution des différents profils, c'est-àdire (Amstrong, 1967) :

$$\Phi(\nu) = \frac{1}{\alpha_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} K(x, y) \tag{2.25}$$

où K(x, y) est la fonction de Voigt :

$$K(x,y) \equiv \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(t^2)}{y^2 + (x-t)^2} dt$$
(2.26)

avec  $y \equiv (\alpha_L/\alpha_D)\sqrt{\ln 2}$  et  $x \equiv (\nu - \nu_0/\alpha_D)\sqrt{\ln 2}$ .

Du point de vue expérimental, le choix d'une raie dépend de son intensité et de sa discrimination vis-à-vis des raies voisines les plus proches. Il est également nécessaire de travailler avec une bande passante négligeable devant les largeurs de raies mesurées. De plus, il est important que des mécanismes d'élargissement autres que l'effet Stark puissent être négligés. La raie utilisée doit donc être sensible à l'effet Stark et être optiquement mince. Un bon exemple est donné par la raie  $H_{\beta}$  pour laquelle la théorie a été vérifiée. Plus récemment, des comparaisons ont été effectuées avec des résultats inversés par Abel dans des expériences pour lesquels d'autres méthodes diagnostiques étaient disponibles (Helbig, 1991; Thomsen et Helbig, 1991; Kelleher et al., 1993). Cette méthode se prête bien lorsque la température électronique est de l'ordre de 10000 K et que les densités électroniques sont comprises entre  $10^{14}$  et  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup>. Pour des températures plus élevées, de l'ordre de 10<sup>5</sup> K, seules des concentrations supérieures à  $10^{15}$  cm<sup>-3</sup> peuvent être mesurées de manière fiable à cause de l'effet Doppler. Au-delà de  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , il est préférable d'utiliser la raie H<sub> $\alpha$ </sub> parce que H<sub> $\beta$ </sub> devient trop large pour pouvoir la séparer du continuum et de la raie  $H_{\gamma}$  (Griem, 1997). Böddeker et al. (1993) ont montré, à l'aide de diagnostics indépendants, que  $H_{\alpha}$  pouvait être utilisé, sans trop d'erreurs, jusqu'à des concentrations électroniques de l'ordre de  $10^{19}$  cm<sup>-3</sup>.

Afin de mesurer l'évolution de la densité électronique du plasma au cours du temps, nous avons utilisé deux raies de l'hydrogène de la série de Balmer,  $H_{\alpha}$  (656.3 nm) et  $H_{\beta}$  (486.1 nm). Ce sont des raies qui sont très élargies à hautes températures par effet Stark et ne nécessitent pas une grande résolution spectrale. De plus, l'élargissement Stark des raies de l'hydrogène a été largement étudié et validé (Vidal et al., 1973; Stelhé et Hutcheon, 1999). Cela rend donc possible l'utilisation des tabulations d'élargissement théoriques disponibles à des fins de diagnostics.

Deron (2003) a montré que les bases de Vidal et al. (1973) et de Stelhé et Hutcheon (1999) prédisent des profils de raies pour lesquels l'évolution de la densité électronique en fonction de la largeur à mi-hauteur est équivalente pour  $H_{\beta}$ . Deron souligne que les différences dans le cas de  $H_{\alpha}$  peuvent être conséquentes et atteindre un facteur 2. De plus, les résultats expérimentaux présentés montrent que l'utilisation de la base de Stelhé et Hutcheon (1999), pour  $H_{\alpha}$  et  $H_{\beta}$ , donne des résultats cohérents entre eux. Dans notre étude, nous avons donc utilisé les tables

Longueur d'onde (nm)	$A(10^8 s^{-1})$	$E_l (\mathrm{cm}^{-1})$	$E_u (\mathrm{cm}^{-1})$	$g_u$
715.6701	$5.05 \times 10^{-1}$	102662.026	116631.026	5
777.1944	$3.69 \times 10^{-1}$	73768.200	86631.454	7
777.4166	$3.69 \times 10^{-1}$	73768.200	86627.778	5
777.5388	$3.69 \times 10^{-1}$	73768.200	86625.757	3

TAB. 2.3: Caractéristiques des raies d'oxygène utilisées pour la détermination de la température électronique

de Stelhé et Hutcheon (1999), disponibles à l'adresse électronique cdsweb.u-strasbg.fr. Cette base de données fournit les largeurs de Stark pour les séries de Lyman, Balmer et Paschen de l'atome d'hydrogène. La modélisation est basée sur l'approche *MMM* (Model Microfield Method) pour les électrons et les ions (Frisch et Brissaud, 1971; Brissaud et Frisch, 1971). Les profils sont calculés pour des plasmas d'hydrogène pure. Les températures considérées vont de 2500 à 1259000K (10 températures) pour des concentrations électroniques allant de  $10^{10}$  à  $3.162 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup> (20 densités électroniques).

# 2.9 Caractérisation du plasma

#### 2.9.1 Températures de Boltzmann

Pour identifier les raies potentiellement exploitables, nous avons eu recours à une simulation des intensités de raies des atomes et ions N, N<sup>+</sup>, N<sup>++</sup>, O, O<sup>+</sup> et O<sup>++</sup> à partir des données du NIST (1999). Le choix a été motivé par différents facteurs. Les raies utilisées doivent être bien isolées des raies voisines ou n'avoir pour voisines, que des raies de faibles intensités de manière à ne pas avoir de problèmes de recouvrement des différentes raies. De plus, leurs intensités doivent être suffisamment importantes, de manière à pouvoir extraire facilement le fond continu et le bruit.

La caractérisation de la température du plasma laser est réalisée à partir des mesures relatives des intensités de raies intégrées de l'oxygène situées à 715,7 nm et celles situées à 777.4 nm qui correspondent au triplet d'oxygène. Les états, les poids statistiques, ainsi que les coefficients d'Einstein des transitions correpondantes sont résumés au tableau 2.3.

Dans notre analyse, nous faisons l'hypothèse que le plasma est optiquement minces. Toutes les mesures présentées correspondent à des étincelles créées dans de l'air, à une température de 25°C et à une pression de 1 atm. Chaque spectre est moyenné sur 100 spectres pris sur 100 tirs lasers individuels.

Comme nous l'avons déjà indiqué, dans la relation (2.18) l'incertitude relative sur X est, au mieux, de 23%. De plus, dans notre cas (voir tableau 2.3),  $\Delta E = E_l - E_j$  est de l'ordre de 30000 cm<sup>-1</sup> c'est-à-dire 5.96×10<sup>-19</sup> J. L'incertitude relative sur la température vaut donc  $5.3 \times 10^{-6}T$ . Pour des températures de 30000K on a donc une incertitude de 16%. On voit



également que plus la température diminue plus son incertitude relative diminue.

FIG. 2.23: Température en fonction du temps ( $\lambda_{\text{laser}} = 355 \text{nm}$ ).

La figure 2.23 montre l'évolution de la température électronique en fonction du temps. Aux premiers instants ( $\sim 80$  ns), la température électronique est d'environ 26600 K, puis décroît exponentiellement jusqu'à à peu près 12000 K à 2.7  $\mu$ s. Ces valeurs s'accordent fort bien avec celles publiées par Yalçin et al. (1999) dans le cas d'un plasma d'air créé par un rayonnement laser de 532 nm. Notons de plus que les températures obtenues, en considérant l'intensité intégrée le long du trajet optique sont sous-estimées. En effet, ces mesures tiennent compte des contributions provenant des régions plus froides que le centre du plasma. En inversant le signal par une transformée d'Abel, on montre que ces températures sont d'à peu près 5% plus élevées que celles reportées dans la figure 2.23. Bien que relativement faible, cette incertitude est de l'ordre de grandeur de l'incertitude expérimentale. Une mesure précise de la température nécessitera a priori une inversion d'Abel du signal enregistré.

#### 2.9.2 Densité électronique

La figure 2.24(a) et 2.24(b) montrent des exemples de profils de la raie  $H_{\alpha}$  élargis par effet Stark, pour différents instants ultérieurs à la création du plasma. On voit qu'à 300 ns la raie  $H_{\alpha}$  n'est pas bien isolée de ses voisines. En effet, en plus d'un fond continu, on observe deux raies appartenant à l'atome d'azote une fois ionisé situées respectivement à 648 et 661 nm qui recouvrent partiellement  $H_{\alpha}$ . Pour les temps suivants, la contribution de ces deux raies devient de moins en moins importante.



(b)  $1 \ \mu s \le t \le 3 \ \mu s$  (temps d'intégration de  $1 \ \mu s$ )



L'ajustement s'effectue en supposant un signal mesuré de la forme suivante :

$$I(\lambda) = A\lambda + B + \sum_{i=1}^{2} I_i f_i(\lambda_c, \Delta\lambda_G, \Delta\lambda_L) + I_L f_L(\Delta\lambda'_L, \lambda_L) + I_G f_G(\Delta\lambda'_G, \lambda_G) \quad (2.27)$$

où les trois premiers termes ont la même signification que dans l'expression (4.28); le quatrième terme correspond à une fonction de lorentz avec une demi-largeur à mi-hauteur représentée par  $\Delta \lambda'_L$  et centrée en  $\lambda_L$ ; le cinquième terme correspond, quant à lui, à une gaussienne de largeur à mi-hauteur donnée par  $\Delta \lambda'_G$  et centrée en  $\lambda_G$ . Nous montrons à la figure 2.25 un exemple d'ajustement. Il s'agit du spectre émis 300 ns après la création du plasma. La figure 2.25(a) montre le spectre expérimental (×) et une solution initiale, en traits continus rouges, ainsi que la contribution initiale de chaque terme de l'expression (2.27). Le résultat de l'ajustement est présenté à la figure 2.25(b); le coefficient de corrélation est égal à 0.99.



(a) Contribution initiale des différentes composantes de la relation (2.27)





FIG. 2.25: Exemple d'extraction de la raie  $H_{\alpha}$  des raies voisines et du fond continu ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$ nm).

Griem (1997) estime que la précision sur la mesure de la concentration électronique à partir de l'élargissement Stark, est de l'ordre de 20%. Une estimation qu'il reconnaît être un peu excessive. Il souligne que les erreurs sur les mesures de  $n_e$  sont essentiellement dominées par la théorie ayant servi à calculer les profils de raies, et non pas par les erreurs expérimentales qui sont de l'ordre de quelques pourcents. Dans notre cas, nous avons pris pour l'incertitude sur  $n_e$  une borne supérieure de 20% ; valeur également adoptée par Yalçin et al. (1999) pour des conditions similaires.

L'évolution de la largeur à mi-hauteur en fonction du temps est donnée à la figure 2.26(a). La largeur à mi-hauteur décroît exponentiellement de 47 Å à 11 Å entre 300ns et  $3\mu$ s. Comme nous l'avons déjà indiqué dans la section précédente, les concentrations électroniques sont déduites à

partir de ces largeurs en utilisant les calculs de Stelhé et Hutcheon (1999). Ces calculs montrent qu'entre 10000 K et 15000 K, la dépendance en température est si faible qu'une erreur de 20% sur T ne modifie pas la densité électronique déduite (Deron, 2003). Erreur dépassant largement celle estimée sur nos mesures (voir figure 2.23). C'est seulement vers les 5000 K que la sensibilité à la température est un peu plus notable. Pour obtenir une densité électronique suffisamment précise, il faut alors estimer la température à moins de 10%.



(a) Évolution au cours du temps de la largeur à mi-hauteur de la raie  $H_{\alpha}$ 



(b) Évolution au cours du temps de la concentration électronique

FIG. 2.26: Évolution de la largeur à mi-hauteur et de la concentration électronique en fonction du temps ( $\lambda_{\text{laser}} = 355$ nm).

L'évolution de la densité électronique en fonction du temps est présentée à la figure 2.26(b) : elle décroît exponentiellement en fonction du temps, en partant d'une valeur initiale de  $1.2 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>, à 300 ns, pour finir à  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> à 3  $\mu$ s. De plus, la densité électronique en fonction de

la température est reportée à la figure 2.27. On voit que la concentration électronique suit une loi qui semble exponentiellement croissante en fonction de la température. Cette courbe nous fournit une indication sur la manière dont évolue l'écoulement pendant la période comprise entre 0.3 et 3  $\mu$ s après le claquage. En effet, si l'expansion du plasma se déroule à chimie figée et de manière isentropique, on s'attend à trouver une loi d'évolue de  $n_e$  en fonction de T de la forme suivante :

$$n_e \propto T^{1/(\gamma - 1)} \tag{2.28}$$

où  $\gamma$  représente le rapport des chaleurs spécifiques.

En portant le logarithme de la concentration électronique en fonction du logarithme de la température, on déduit à partir de la pente de la droite la valeur de  $1/(\gamma - 1)$ . On obtient pour cette pente une valeur de 4.14 avec un écart-type de 0.3 (figure 2.27). L'incertitude relative sur  $\gamma$  est égale à celle de  $1/(\gamma - 1)$ , c'est-à-dire à 7%, et donc  $\gamma = 1.2 \pm 0.1$ ; valeur très proche de la valeur théorique obtenue pour un plasma d'air à 20000K ( $\gamma = 1.33$ ).



FIG. 2.27: Concentration électronique en fonction de la température ( $\lambda_{\text{laser}} = 355 \text{nm}$ ).

## 2.10 Conclusions

Nous avons utilisé la spectroscopie d'émission résolue en temps pour étudier l'évolution temporelle de la densité et la température électronique d'un plasma d'air créé par la focalisation d'un rayonnement laser à 355 nm. Nous avons montré que pendant les premières ns qui suivent la création de l'étincelle, le spectre consiste essentiellement en un contiuum d'émission dû aux recombinaisons électron-ion et au bremsstrahlung et que l'apparition des premières raies atomiques se fait assez rapidement (12 ns). La détermination de la température électronique du plasma a été réalisée à partir des mesures des intensités de raies intégrées de l'oxygène (715.7 et 777.4 nm). Nous avons montré qu'aux premiers instants, la température électronique avoisine les 30000 K avant de décroître exponentiellement vers les 12000 K 2.5  $\mu$ s plus tard. L'ordre de grandeur des températures et l'évolution temporelle sont en bon accord avec celles que l'on peut trouver dans la littérature.

La caractérisation en densité électronique a été réalisée à partir des raies d'hydrogène. Nous avons montré que la densité électronique décroît également exponentiellement à partir d'une valeur de  $1.2 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> pour finir à  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> après 3 µs.

De plus, nous avons montré que la densité électronique est liée à la température électronique par une loi du type  $n_e \propto T^{1/(\gamma-1)}$ . Cette relation nous indique que l'expansion du plasma, suite au claquage, se déroule globalement à chimie figée et isentropiquement, avec un rapport des chaleurs spécifiques égale à  $1.2\pm0.1$ .

## Chapitre 3

### ÉNERGIE MINIMUM D'ALLUMAGE D'UN MÉLANGE COMBUSTIBLE/COMBURANT

## 3.1 Introduction

L'étude de l'allumage d'un mélange gazeux combustible/comburant est d'un intérêt fondamental et d'une importance pratique cruciale dans les moteurs à combustion interne, dans les turbines à gaz, ainsi que dans les problèmes liés aux possibilités d'emballement thermique d'un procédé, ou encore aux conditions qui assurent la stabilité du stockage de matières inflammables ou explosives. Les allumages sont réalisés dans ces systèmes avec une fréquence importante et pour des durées de fonctionnement qui peuvent être très longues (moteurs à piston - allumage commandé par étincelle ou auto-allumage des moteurs diesel). Dans d'autres situations, l'allumage est réalisé en une séquence unique et la flamme est ensuite stabilisée dans l'écoulement, en général par des dispositifs qui assurent la recirculation de gaz chauds produits par la combustion. Ainsi par exemple, les foyers aéronautiques sont allumés à l'aide d'une bougie, et la flamme turbulente est maintenue par des recirculations en fond de chambre résultant de la rotation donnée aux gaz frais par les injecteurs, ainsi que par l'injection d'air par des trous latéraux. Dans les chambres de réchauffe aéronautiques, cette recirculation de gaz chauds est obtenue à l'aide d'obstacles "émoussés", anneaux et bras radiaux, placés dans l'écoulement. Dans ces foyers, on trouve donc des éléments assurant l'allumage initial et des dispositifs qui assurent la stabilisation de la flamme par allumage continu des gaz frais par des gaz chauds issus de la combustion. Le bon fonctionnement de ces dispositifs dépend à la fois de la méthode utilisée pour effectuer l'allumage initial et de l'arrangement qui permet d'assurer la stabilisation de la flamme. Dans les moteurs aéronautiques ou de fusées, un retard à l'inflammation peut conduire, suite à l'accumulation des réactifs dans la chambre, à une surpression importante lors de l'allumage. Dans les cas les plus graves, cela pourrait conduire à un désamorçage des pompes entraînant l'arrêt de la combustion.

Pendant des années les travaux pionniers de Lewis et von Elbe (1987) ont fourni les données de base sur l'énergie minimum requise pour produire l'allumage d'une flamme. Leurs expériences étaient menées en utilisant une étincelle électrique et avaient pour but de déterminer l'influence de divers paramètres, tels que la composition du mélange, la pression, la distance entre les électrodes, sur les énergies minimum d'allumage. Cependant, leurs résultats expérimentaux, ainsi que ceux d'autres expériences, présentent des désaccords avec les valeurs obtenues par des simulations numériques. Par exemple dans le cas d'un mélange stœchiométrique de méthane/air à pression atmosphérique, ils trouvent une énergie de 0,4 mJ, bien que les simulations entre-prises par Sloane et Ronney (1992), utilisant une chimie détaillée, ainsi que des modèles de transport complets, prédisent une valeur de 0,10 mJ. Lewis et von Elbe (1987) trouvent pour 2

mm le diamètre du noyau d'allumage, sur la base du "spark gap" donnant la plus faible énergie minimum d'allumage, tandis que Sloane et Ronney (1992) prédisent un diamètre de 0,6 mm. De plus, bien que Lewis et von Elbe (1987) reconnaissent l'importance des pertes thermiques au niveau des électrodes, aucune indication sur les dimensions des électrodes utilisées dans leurs exprériences n'est rapportée. Les désaccords entre les mesures expérimentales et les résultats obtenus par simulation sont probablement dûs à une caractérisation incomplète du système d'allumage. Néanmoins, les aspects liés à la manière dont l'énergie est déposée dans le mélange ne sont pas pris en considération dans les simulations, malgré leur rôle important sur l'efficacité de l'allumage. Dans le cas d'un mélange  $H_2/air$ , Syage et al. (1988) trouvent, pour l'énergie minimum d'allumage à la stœchiométrie, une valeur six fois supérieure a celle obtenue à l'aide d'une décharge électrique. Lorsque l'on s'éloigne de la richesse unitaire, vers les mélanges plus pauvres ou plus riches, les désaccords entre les deux systèmes d'allumages s'amoindrissent sans pour autant disparaître complètement.

## 3.2 Théorie

Afin de réussir l'allumage d'un mélange gazeux inflammable, une quantité suffisante d'énergie doit être déposée dans un volume minimum. La plus faible quantité d'énergie donnant lieu à un allumage réussi s'appelle l'énergie minimum d'allumage. Lorsque l'on dépose une quantité d'énergie sous-critique dans un mélange gazeux inflammable, sous la forme de chaleur ou de radical, le noyau de flamme résultant s'éteint rapidement du fait des pertes de chaleur et de la diffusion des radicaux en dehors de la surface du noyau. Les espèces dissociées se recombinent plus rapidement qu'elles ne sont générées par les réactions chimiques qui prennent place dans le volume du noyau. Le noyau finit donc par s'éteindre complètement après avoir consommé une très petite quantité des réactifs. D'un autre côté, si l'énergie déposée dépasse une certaine valeur seuil, appellée énergie minimum d'allumage, à l'instant où le pic de température baisse jusqu'à atteindre la température adiabatique de flamme,  $T_{ad}$ , le gradient de température dans le noyau devient suffisamment faible. La chaleur généré dans le noyau se produit plus rapidement que les pertes dues à la conduction des gaz frais. Cela conduit au développement d'une flamme stationnaire qui consume tout le mélange. De manière formelle, l'énergie minimum d'allumage,  $E_{min}$ , peut être obtenue de la façon suivante. Le rayon minimum du noyau d'allumage peut être relié à l'épaisseur de flamme par (Williams, 1985) :

$$\delta = \frac{k}{\rho_0 C_p S_L} = \frac{k}{k_0} \frac{\alpha_0}{S_L} \tag{3.1}$$

où

$$\alpha_0 \equiv \frac{k_0}{\rho_0 C_p} \tag{3.2}$$

Les symboles surmontés par une barre dénotent une valeur moyennée sur la température.

$$E_{\rm min} = \frac{4\pi}{3} \delta^3 \rho C_p (T_{\rm ad} - T_0)$$
(3.3)

En utilisant la relation (3.1), on obtient finalement,

$$E_{\min} = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{\delta}{S_L}\right)^3 \left(\frac{k}{k_0}\right)^3 \rho C_p (T_{\mathrm{ad}} - T_0) \tag{3.4}$$

Typiquement, le rayon du noyau d'un mélange combustible, r, est très proche de  $\delta$ . Donc, comme le montre la relation (3.4), l'énergie minimum varie selon la troisième puissance du rayon du noyau d'allumage.

# 3.3 Études expérimentales

Tous les travaux expérimentaux effectués sont différents, non seulement dans leurs méthodologies mais également dans l'appareillage utilisé ; la différence la plus importante étant la source d'allumage. Les toutes premières études portant sur l'allumage d'étincelles électriques ont été effectuées par Lewis et von Elbe (1987) dans les années soixante. Il s'agit probablement des études les plus systématiques et les plus complètes effectuées à l'heure actuelle, servant toujours de données de base. Leurs expériences consistaient à étudier l'effet de la composition du mélange, de la distance entre les électrodes et de la pression sur l'énergie minimum d'allumage. Les électrodes sont montées au centre d'une cellule. La distance entre les électrodes est variable. Elles sont reliées à un système de condensateurs de capacité fixe et variable; la capacité pouvant varier de façon continue entre 100 à 5000 pF. La haute-tension est amenée progressivement aux bornes des électrodes par l'intermédiaire d'un système de chargeur rotatif et des condensateurs de capacités variables. Pour une pression et une distance intra-électrodes, la cellule est remplie du mélange inflammable étudié. Les électrodes et les capacités sont ensuite progressivement chargées jusqu'à ce que le seuil de claquage soit atteint. Seuil pour lequel la tension est enregistrée. Si le mélange ne s'enflamme pas, la capacité est augmentée jusqu'à obtenir l'inflammation du mélange. Une fois l'allumage obtenue, les valeurs de la tension et de la capacité au seuil d'allumage sont utilisées afin de calculer l'énergie minimum d'allumage selon la relation suivante :

$$E = \frac{1}{2}CV^2\tag{3.5}$$

Toutefois il est à noter que cette méthode fournit rigoureusement l'énergie emmagasinée dans le circuit avant la décharge électrique et non celle déposée dans le milieu compris entre les deux électrodes.

Lewis et von Elbe (1987) ont montré que l'énergie minimum d'allumage et le diamètre de coincement augmentent lorsque la pression diminue. L'énergie minimum est indépendante de la distance entre les électrodes pour une large gamme de distances (au delà du diamètre de coincement) et de pressions. Toutefois, en dehors de cette plage, l'énergie minimum d'allumage augmente lorsque la distance entre les électrodes augmente. Ces expériences ont été effectuées pour de nombreux gaz inertes, ainsi que pour le méthane et l'oxygène.

Ce n'est que vers les années soixante-dix que l'idée d'utiliser un laser comme source d'allumage a été considérée. Une étude préliminaire sur l'étude de l'allumage d'un mélange CH<sub>4</sub>/air à l'aide d'un laser à rubie à impulsions déclenchées a été entreprise par Weinberg et Wilson (1971). L'énergie déposée par l'étincelle laser était mesurée à l'aide d'un microcalorimètre sphérique. Les auteurs ont trouvé des énergies minimums d'allumage inférieures à celles obtenues avec une étincelle électrique traditionnelle pour les mélanges très pauvres et très riches ou pour des pressions inférieures à 0,5 atm. Ces différences furent attribuées aux pertes de chaleur ayant lieu aux électrodes, pertes absentes dans le cas des étincelles laser. En revanche, pour des mélanges proches de la stœchiométrie et à pression élevée, l'énergie minimum est plus importante dans le cas des étincelles laser que dans celui des étincelles classiques. Ceci pouvant s'expliquer par les pertes dues à l'onde de choc intense émise lors du claquage ou aux pertes par rayonnement.

En 1976, Kingdon et Weinberg (1976) ont publié un article dans lequel ils tentent d'expliquer les valeurs élevées de l'intensité pour claquer. Comme dans l'étude de Weinberg et Wilson (1971), l'énergie déposée dans le milieu est mesurée à l'aide d'un microcalorimètre sphérique. Les auteurs conclurent que l'énergie minimum n'est pas affectée par la composition du plasma. Des valeurs d'énergies minimums pour l'allumage d'un mélange stœchiométrique de méthane/air supérieures aux mesures de Lewis et von Elbe (1987) ont été présentées dans leur papier. L'étude de l'influence du diamètre du noyau d'allumage montre que pour des mélanges méthane/air (8,6%  $CH_4$ ) à pression atmosphérique, l'énergie minimum dépend du diamètre pour des valeurs variant entre 0,1 et 1,0 mm, tandis que pour d'autres mélanges (6,0%  $CH_4$ ), cette grandeur est indépendante du rayon du noyau. Il est à noter que les expériences de Kingdon et Weinberg (1976) présentent certains problèmes. La précision de leurs mesures est entâchée par des erreurs importantes dues aux dimensions élevées de la région dans laquelle l'énergie est déposée. De plus la présence de fils de fer de différentes compositions, au point focal, facilite le claquage.

Des expériences effectuées en micro-gravité ont permis de caractériser l'influence de la gravité sur l'énergie minimum d'allumage d'un mélange méthane/air (Ronney, 1985). Dans ses expériences, Ronney a mesuré les énergies minimums pour des mélanges proches de la limite inférieure d'inflammabilitée, et ce, aussi bien en apesenteur qu'à un g. Ronney a trouvé des valeurs très proches, sauf lorsque l'on s'approche de la limite inférieure d'inflammabilitée pour laquelle il note une augmentation abrupte de l'énergie minimum d'allumage en apesenteur.

La première étude exhaustive sur l'énergie minimum d'allumage utilisant une étincelle laser fut effectuée par Syage et al. en 1988. Elle consistait a étudier l'allumage de mélanges  $H_2/air$ dans une enceinte fermée, en utilisant comme source d'allumage une étincelle laser; ce dernier pouvant fonctionner en mode déclenché (12 ns) ou en mode bloqué (25 à 50 ps). L'énergie de l'étincelle laser fut mesurée en comparant l'énergie en aval de l'étincelle avec et sans claquage. A cette fin, des joulemètres placés avant et après le volume de focalisation ont été utilisés. Les résultats furent quantitativement différents pour les deux types d'impulsions considérées. Les valeurs mesurées diffèrent de celles de Lewis et von Elbe (1987) d'un facteur cinq, pour des mélanges proches de la stœchiométrie. Comme dans les études précédentes, l'accord est meilleur lorsque l'on considère des mélanges plus pauvres ou plus riches. Il est à noter qu'aucune indication sur les dimensions de la région de claquage n'est donnée.

## 3.4 Dépôt d'énergie dans l'air lors du processus de claquage

Comme nous allons le voir au chapitre 5, l'absorption de l'énergie du rayonnement laser devient significative dès que les électrons primaires sont générés. Suite à la croissance rapide de la densité électronique, le plasma initial devient optiquement épais et peut dès lors absorber pratiquement toute l'énergie incidente postérieure au claquage. La figure 3.1 montre deux impulsions laser de type gaussienne présentant une largeur à mi-hauteur de 7 ns et des puissances crêtes d'une fois (figure 3.1(a)) et de trois fois supérieures au seuil de claquage (figure 3.1(b)).





FIG. 3.1: Structure temporelle du processus d'absorption d'énergie

Le seuil de claquage est indiqué par une ligne en trait plein. Deux lignes en traits interrompus indiquent les limites inférieure et supérieure de l'énergie incidente en-deça et au-delà desquelles la probabilité de claquer est respectivement nulle et unitaire. Entre ces deux limites, le claquage est un phénomène aléatoire. Le seuil de claquage optique se définit comme la valeur de l'énergie pour laquelle cinquante pour cent des impulsions incidentes sont absorbées et provoquent le claquage du milieu. Selon nos observations la portion d'énergie incidente absorbée par impulsion peut varier de 20 à 90%. Le processus d'absorption ne peut commencer qu'une fois cette énergie seuil est atteinte. La portion de l'énergie précédent le claquage traverse le volume de focalisation sans absorption. Suite au claquage, l'augmentation des électrons libres s'opère très rapidement jusqu'à atteindre une concentration suffisante pour absorber la plupart de l'énergie lumineuse avant la fin de l'impulsion; c'est-à-dire que le taux de croissance de la densité électronique est beaucoup plus rapide que le taux de déposition de l'énergie laser. Les portions des impulsions hachurées à la figure 3.1 correspondent approximativement à l'énergie totale déposée dans le plasma. Pour des impulsions lasers incidentes avec une certaine énergie pic, la dispersion de l'absorption entre des impulsions lasers indépendantes résulte de l'incertitude du moment d'initiation du claquage. En d'autres termes, l'absorption peut démarrer à n'importe quel instant pour autant que l'énergie soit comprise dans l'intervalle délimité par l'intersection de l'impulsion avec les limites inférieure et supérieure du seuil de claquage (figure 3.1). Cette incertitude est à peu près égale à 3 ns. Pour des impulsions beaucoup plus énergétiques, l'absorption commence plus tôt et dure donc plus longtemps; la dispersion sur l'absorption est nettement réduite.

### 3.4.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est présenté à la figure 3.2. Il est constitué d'un laser d'allumage (Nd :YAG), d'une carméra intensifiée, d'un échantillonneur optique, d'une lentille de convergence et de collectection, ainsi que de deux joulemètres.



FIG. 3.2: Montage expérimental utilisé pour étudier le claquage de l'air

La caméra intensifiée receuille le rayonnement spontané émis par le plasma dans une direction perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau laser. Le temps d'exposition de la caméra est de 2 ns. L'échelle de longueurs des images est calibrée en utilisant une mire placée

dans la région focale de la lentille. La résolution spatiale dans les directions horizontale et verticale est d'à peu près 9  $\mu$ m.

#### 3.4.2 Processus de déposition de l'énergie laser dans l'air

Dans cette section nous examinons des images d'émission spontanée des premiers instants de la naissance du plasma laser dans l'air. La structure spatiale du dépôt d'énergie est présentée à la figure 3.3. Le faisceau laser se propage de la gauche vers la droite. Lorsque l'énergie incidente est proche de la valeur seuil, le plasma reste localisé dans une région correspondant au volume focal (figure 3.3(a)). En revanche si l'énergie incidente est largement supérieure à la valeur seuil, le plasma s'étend dans une région beaucoup plus grande que le volume focal (figure 3.3(b)).



FIG. 3.3: Dépôt de l'énergie laser

La figure 3.4 présente une séquence d'images d'émission spontanée du claquage dû à une impulsion laser d'une énergie moyenne de 100 mJ.



FIG. 3.4: Dépôt d'énergie dans l'air d'une impulsion de 100 mJ

Seulement 60 mJ de cette énergie est absorbée lors de la création du plasma. Chaque image enregistrée correspond à un événement de claquage différent. Le faisceau laser se propage de la gauche vers la droite. De plus, les images sont toutes normalisées par rapport à leur propre maximum. L'analyse de l'ensemble des images obtenues pour un même instant montre que le phénomène de claquage est très reproductible et que la séquence présentée à la figure 6.10 correspond donc bien à l'évolution du plasma, des premiers instants jusqu'à bien après la fin de l'impulsion.

On voit qu'une fois que le claquage est produit et que l'étincelle est formée, le plasma émet instantanément un rayonnement dont la distribution spectrale dépend de la température et de la densité du plasma. Aux premiers instants la forme du plasma est sphérique et devient elliptique au fur et à mesure de son évolution. Plus l'énergie incidente est élevée plus la forme du plasma présente une asymétrie prononcée. Ceci s'explique par le fait que la densité électronique devient élevée et que le plasma devient absorbant pour le faisceau.

On remarque également que cette absorption s'accompagne d'une expansion de la décharge dont le volume devient supérieur au volume focal initial. La tâche lumineuse prend la forme d'une ellipsoïde allongée (figure 6.10(b)) et se déplace en sens inverse du flux lumineux, c'està-dire dans la direction de la lentille de focalisation. La propagation du plasma dans la direction de la lentille est beaucoup plus rapide que sa propagation dans la direction du faisceau laser. Plus l'énergie incidente est importante plus l'expansion de la décharge dans la direction du faisceau est faible. D'ailleurs, pour des valeurs très élevées de l'énergie cette expansion est presque inexistante.



FIG. 3.5: Onde radiative entretenue par laser

Cette expansion du palsma dans la direction inverse au flux lumineux s'explique par le fait qu'au droit de l'impact du faisceau lumineux, une couche chaude, fortement ionisée et très dense a pris naissance. Cette couche empêche un chauffage intense des régions postérieures. En revanche, l'intense rayonnement émis par ce plasma chauffe une région adjacente située en amont. Une fois que cette dernière couche atteint une température critique, elle devient à son tour absorbante au rayonnement laser qui va fortement l'ioniser et ainsi de suite (voir la figure 3.5).

La décharge se propage dans le sens opposé au flux lumineux sous la forme d'onde radiative entretenue par l'impulsion laser. Le seul modèle, à notre connaissance, développé pour ce type d'onde d'absorption a été proposé par Bergel'son et al. (1976). Une fois que l'impulsion est terminée, le plasma continue à s'étendre plus lentement pour finir par stagner après quelques dizaines de nanosecondes (figure 3.6). L'émission de l'étincelle cesse après quelques dizaines de microsecondes.



FIG. 3.6: Dimensions de l'étincelle en fonction du temps

#### 3.4.3 Claquage de l'air

La probabilité de claquer dans l'air est définie dans notre travail comme étant le nombre de tirs laser donnant effectivement lieu au claquage de l'air rapporté au nombre total de tirs. Les expériences ont été menées dans l'air ambiant.

Á la figure 3.7 nous présentons l'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente pour des expériences de claquage dans l'air ambiant. Le laser utilisé fournit un rayonnement de 355 nm, avec une fréquence de tirs de 10 Hz. Le faisceau est focalisé à l'aide d'une lentille plano-convexe de 50 mm de focale (01LQP015). On observe trois régions présentant des caractéristiques très

différentes. Pour des impulsions dont l'énergie se situe en-deçà d'à peu près 25 mJ (région 1), aucun claquage ne se produit. Toute l'énergie incidente est transmise à travers la région focale, et tous les points de mesures se situent sur la droite en pointillé correspondant à  $E_{tr} = E_{inc}$  (aucune absorption). Pour des énergies supérieures à 34 mJ (région 3), toutes les impulsions laser subissent une très forte absorption et donnent lieu au claquage de l'air. Pour les impulsions dont les énergies se situent entre 25 et 34 mJ (région 2), seules certaines d'entre elles induisent le claquage de l'air, le reste n'étant pas absorbé. L'énergie incidente moyenne correspondant à cette zone de transition est de 29,5 mJ $\pm$  15%.



FIG. 3.7: Énergie transmise en fonction de l'énergie incidente ( $\lambda = 355 \text{ nm}, f = 150 \text{ mm}$ )



FIG. 3.8: Absorption en fonction de l'énergie incidente ( $\lambda = 355 \text{ nm}, f = 150 \text{ mm}$ )

L'absorption se définit comme étant l'énergie incidente moins l'énergie transmise, rapportée à l'énergie incidente. L'absorption en fonction de l'énergie incidente est présentée à la figure 6.7. Cette figure montre qu'environ 10 à 15% de l'énergie incidente est abosrbée lorsque cette énergie est au-delà de la zone de transition, ce qui veut dire que suite à l'initiation du claquage, la croissance d'éléctrons libres ne se produit pas très rapidement (voir chapitre 5). Le taux de croissance des électrons libres, qui dépend de l'irradiance du laser, est d'autant plus rapide, par rapport à l'inverse de la durée de l'impulsion, que le rayonnement incident est plus énergétique.



FIG. 3.9: Énergie transmise en fonction de l'énergie incidente ( $\lambda = 355 \text{ nm}, f = 150 \text{ mm}$ )

La figure 3.9 correspond à un agrandissement de la zone de transition présentée à la figure 3.7. Les triangles qui se situent sur la droite en trait interrompu correspondent aux tirs qui ne produisent pas d'absorption d'énergie observable dans la région focale. Pour les impulsions donnant lieu à une absorption notable, on remarque d'importantes fluctuations de l'énergie transmise par rapport à l'énergie transmise moyenne. Si les électrons primaires, apparaîssant dans le processus de claquage, sont produits lorsqu'une certaine irradiance seuil est atteinte, les faibles variations de l'énergie incidente ne permettent pas d'expliquer les fluctuations de l'énergie transmise. De plus, nous montrerons au chapitre 5 que pour des longueurs d'onde situées dans l'ultra-violet, le seuil de claquage n'est pas influencé par la présence a priori d'électrons initiaux dans le volume focal. Dans le cas où le seuil de claquage est dominé par l'apparition du premier électron libre, ces variations de l'énergie transmise pourraient trouver leur origine dans l'aspect aléatoire de l'instant d'apparition du premier électron libre. Ce côté stochastique peut être lié à la structure multimode du laser Nd :YAG utilisé au cours de nos expériences. On peut donc attribuer ces fluctuations à celles de la densité électronique produite lors du processus de claquage. Cette concentration électronique dépend (voir chapitre 5) de la longueur d'onde du rayonnement, de l'énergie incidente et de la qualité du faisceau laser, ainsi que de l'optique de focalisation. Nous pouvons également observer sur la figure 6.7 que les fluctuations de l'absorption diminuent lorsque l'énergie incidente augmente. Cette atténuation est essentiellement due au processus d'absorption du rayonnement par breammsstrahlung inverse électron-neutre et électron-ion. On peut également attribuer une part de l'atténuation à la diffusion du rayonnement par le plasma. Cependant, les pertes par diffraction sont généralement négligeables (Syage et al., 1988).



FIG. 3.10: Énergie transmise en fonction de l'énergie incidente pour différentes focales ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

La figure 3.10 présente l'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente pour un rayonnement de 355 nm et pour différentes focales (f = 50, 100 et 150 mm). Les zones de claquage pour f = 50, 100 et 150 mm sont respectivement données par (4.2 mJ, 4.7 mJ), (12.3 mJ,15.2 mJ) et (25.1 mJ,33.7mJ). Les seuils de claquage sont donc de 4,5 ± 5,6%, 13.8 ± 10,5% et 29,4 ± 14,6%. on remarque que les seuils de claquage moyens ne sont pas dans les mêmes rapports que les carrés des rapports des focales correspondantes. Si on fait l'hypothèse que quel que soit le rayon du faisceau au point focal le claquage est atteint pour une certaine valeur  $I_{thr}$ , on a

$$\frac{E_{\rm thr}(f_1)}{f_1^2} = \frac{E_{\rm thr}(f_2)}{f_2^2}$$
(3.6)

Le tableau 3.1 présente le rapport des énergies seuil de claquage pour les différentes combinaisons de lentilles  $(E_{thr}(f_1)/E_{thr}(f_2))$ . On voit que dans la marge des incertitudes de nos mesures,

$f_2$	100 mm		50 mm	
$f_1$	Rapport expérimental	Rapport théorique	Rapport expérimental	Rapport théorique
150 mm 100 mm	$\begin{array}{c} 2 \cdot 2 \pm 0 \cdot 4 \\ -\end{array}$	2·25 -	$7 \cdot 2 \pm 1 \cdot 4$ $3 \cdot 2 \pm 0 \cdot 6$	9 4

les rapports expérimentaux sont en accord avec les rapports théoriques. De plus, la zone de transition est d'autant plus importante que la focale est grande.

TAB. 3.1: Rapports des énergies seuils pour différentes focales

Les figures 3.11 et 3.12 présentent respectivement l'énergie absorbée et l'absorption en fonction de l'énergie incidente pour une étincelle laser créée à 355 nm, pour les différentes focales. On note que l'absorption est très importante dans les trois cas. Elle se situe autour de 15 à 20% près du seuil de claquage et peut monter jusque 80% pour des énergies incidentes supérieures à 50 mJ. On note également (figure 3.12) que l'absorption est, quelle que soit l'énergie incidente, plus importante avec la focale de 50 mm qu'avec celle de 150 mm ; ce qui n'est plus vrai lorsque l'on compare les focales de 50 et 150 mm. En effet, pour des énergies incidentes comprises entre 14 et 24 mJ, l'absorption du plasma créé à l'aide de la première lentille (50 mm) est supérieure à celle obtenue dans le cas de la deuxième lentille (100 mm). Au-delà de 24 mJ, ce comportement s'inverse.



FIG. 3.11: Énergie absorbée en fonction de l'énergie incidente pour différentes focales ( $\lambda = 355$  nm)



FIG. 3.12: Absorption en fonction de l'énergie incidente pour différentes focales ( $\lambda = 355 \text{ nm}$ )

#### 3.4.4 Probabilité de claquage

La fréquence d'un événement (claquage) dans une série d'expériences se définit comme le rapport du nombre d'expériences où l'événement (claquage) est apparu au nombre total d'expériences effectuées (tirs laser). Cette fréquence est souvent appelée probabilité statistique ou empirique de l'événement. Lorsque le nombre d'expériences n'est pas important, la fréquence d'un événement revêt un caractère aléatoire et peut changer d'un groupe d'expériences à l'autre. Cependant lorsque le nombre d'expériences augmente, la fréquence de l'événement perd ce caractère aléatoire ; les conditions aléatoires intervenant dans chaque expérience isolée se trouvent mutuellement compensées et la fréquence tend à se stabiliser, s'approchant ainsi d'une grandeur constante. Étant donné le nombre limité d'expériences réalisables, il y a lieu d'estimer la probabilité d'occurence d'un événement.

La fréquence de l'événement considéré dans n expériences indépendantes, n'est rien d'autre que la moyenne arithmétique des valeurs observées de la variable X, qui dans chaque expérience prend la valeur 1 lorsque l'événement est réalisé, et 0 dans le cas contraire. La fréquence, f, des n expériences indépendantes est donc donnée par

$$f = \frac{\sum_{i=1}^{n} X_i}{n} \tag{3.7}$$

Si l'espérance mathématique de la variable X est égale à p et sa variance à p(1-p), on montre que l'espérance mathématique de la moyenne arithmétique est égale à p et sa variance à p(1-p)/n. On adopte donc comme estimation de la fréquence la valeur f. Cependant il est indispensable de connaître la précision et la fiabilité de cette estimation.

La probabilité pour l'événement d'apparaître exactement m fois est égale à

$$\mathcal{P}_{m,n} = C_n^m p^m (1-p)^{n-m}$$
(3.8)

Pratiquement, supposons que sur 50 tirs laser nous dénombrions seulement 2 tirs donnant lieu à un claquage de l'air. La proportion de tirs réussis vaut donc 0,04. Quel est l'intervalle qui aura disons 95% de chance de contenir la proportion p de tirs réussis ?

La valeur p = 0, 10, est-elle possible ? Si p = 0, 10, alors on s'attend à observer, en moyenne, 5 tirs réussis sur 50. Or, nous avons supposé que nous avons observé seulement 2 tirs réussis. La probabilité d'observer au plus 2 tirs réussis, sachant que p = 0, 10, est donnée par

$$\mathcal{P}(Y \le 2) = \sum_{m=0}^{2} C_n^m p^m (1-p)^{n-m} \simeq 11.2\%$$
(3.9)

Il n'est donc pas exceptionnel, dans ce cas, d'observer moins de deux tirs sur 50 donnant lieu au claquage. On peut en conclure que la valeur p = 0, 10 est plausible et fait partie de l'intervalle que nous cherchons. En revanche si nous considérons pour p une valeur de 0,20, nous obtenons une probabilité de 0.13% de chance d'observer plus de deux tirs réussis sur 50. Dans ce cas nous pouvons conclure que cette valeur ne fait pas partie de l'intervalle recherché.

Fixons maintenant de manière arbitraire le seuil de probabilité pour déclarer une valeur exceptionnelle à la moitié de 5%. De façon générale, la limite supérieure de l'intervalle de confiance, notée  $p_{sup}$ , est donc obtenue en résolvant l'équation suivante

$$\mathcal{P}(Y \le N) = \sum_{m=0}^{N} C_n^m p_{\sup}^m (1 - p_{\sup})^{n-m} = 0,025$$
(3.10)

De même, pour la limite inférieure, on trouve

$$\mathcal{P}(Y \ge N) = \sum_{m=N}^{n} C_n^m p_{\inf}^m (1 - p_{\inf})^{n-m}$$
$$= -\sum_{m=0}^{N-1} C_n^m p_{\inf}^m (1 - p_{\inf})^{n-m} + 1$$
$$= 0,025$$

Et finalement on obtient pour la limite inférieure, notée  $p_{inf}$ , l'équation suivante :

$$\sum_{m=0}^{N-1} C_n^m p_{\rm inf}^m (1-p_{\rm inf})^{n-m} = 0,975$$
(3.11)

Lorsqu'aucun tir ne produit de claquage, il est évident que la borne inférieure pour l'estimation de p est  $p_{inf} = 0$ . L'intervalle de confiance considéré présentera le même niveau de confiance que dans la situation précédente, c'est-à-dire 0,95. Il s'agit donc de résoudre  $\mathcal{P}(Y = 0) = (1 - p_{sup})^n = 0,05$ , ce qui donne  $p_{sup} = 1 - (0,05)^{1/n}$ . De même, lorsque tous les tirs sont réussis, la borne supérieure de l'intervalle de confiance est égale à 1 et la borne inférieure est dès lors donnée par  $p_{inf} = (0,05)^{1/n}$ .

## 3.5 Allumage de mélanges gazeux de méthane/air

Le montage expérimental utilisé pour mesurer l'énergie minimum d'allumage de mélanges méthane/air est le même que celui de la figure 3.2. L'étincelle se situe à 1.5 cm au-dessus de la sortie du brûleur. Les mesures sont faites pour trois longueurs d'ondes (355, 532 et 1064 nm) et pour trois focales (50, 100, 150 mm). La vitesse de l'écoulement à la sortie du brûleur est fixée a  $0.7 \text{ ms}^{-1}$ . La mesure de l'énergie absorbée par le milieu est faite à l'aide d'un ensemble de deux joulemètres permettant une mesure de l'énergie en amont et en aval de l'étincelle laser. Environ 6% de l'énergie incidente est renvoyé par le premier joulemètre. Lorsque le claquage se produit, l'atténuation du faisceau laser est attribuée à l'absorption de l'énergie par le plasma.



FIG. 3.13: Probabilité d'allumage en fonction de l'énergie incidente pour différentes richesses (0.8 à 1.4, de bas en haut),  $\lambda = 355 \text{ nm}, f = 50 \text{ mm}.$ 

La figure 3.13 montre la probabilité d'allumage du mélange, pour différentes richesses (de 0.8 à 1.4, de bas en haut), en fonction de l'énergie incidente. On voit que l'énergie incidente nécessaire pour initier les réactions de combustion est relativement constante pour des richesses variant de 0.8 à 1. Pour les richesses supérieures à 1, l'énergie incidente seuil augmente de façon plus importante.

#### 3.5.1 Calcul d'erreur

Supposons que l'énergie mesurée par le joulemètre suit une distribution de Gauss comme l'illustre la figure 3.14.



FIG. 3.14: Distribution de l'énergie du laser d'allumage effectuée sur 1000 tirs

On montre alors que la valeur

$$t = \frac{m - \mu}{s_m} \tag{3.12}$$

est décrite par une distribution de Student  $f_{n-1}(t)$ . Dans cette expression  $\mu$  est la vraie valeur de la grandeur mesurée (l'énergie de l'impulsion), m est la moyenne estimée à partir des mesures

$$m = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} E_i$$
(3.13)

et  $s_m^2$  la variance expérimentale de cette moyenne

$$s_m^2 = \frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (E_i - m)^2$$
(3.14)

La probabilité de trouver la vraie valeur,  $\mu$ , de l'énergie de l'impulsion dans l'intervalle compris entre  $m - s_m t_{\nu P}$  et  $m + s_m t_{\nu P}$  est donnée

$$P[m - s_m t_{\nu P}, m + s_m t_{\nu P}] = \int_{-t_{\nu P}}^{t_{\nu P}} f_{\nu}(t')dt'$$
(3.15)

où  $\nu = n-1$  et *P* correspondent respectivement au nombre de degrés de liberté de la distribution de Student et à la probabilité désirée.  $f_{\nu}(t)$  pour un nombre de mesures donné, *n*, est connue. On peut donc établir une bijection entre la valeur  $t_{\nu P}$ , qui nous définit l'intervalle et la probabilité *P*. On choisit donc la probabilité qui nous intéresse et à partir des tables on en déduit le coefficient de Student  $t_{\nu P}$  correspondant. Finalement, pour un nombre *n* d'impulsions, l'énergie moyenne est donnée par

$$E = m \pm s_m t_{\nu P} \tag{3.16}$$

Considérons les mesures présentées au tableau 3.2. Ces valeurs correspondent aux mesures de l'énergie de 20 impulsions.

Tir	Énergie (mJ)	Tir	Énergie (mJ)
1	13,820	11	15,112
2	14,466	12	14,337
3	16,403	13	15,241
4	13,949	14	9,041
5	14,853	15	12,399
6	12,270	16	16,403
7	14,078	17	11,237
8	14,982	18	10,333
9	12,528	19	13,820
10	14,207	20	14,466

TAB. 3.2: Résultats de mesures répétées de l'énergie d'une impulsion

Si on choisit un niveau de confiance de 95%, on obtient un coefficient de Student  $t_{\nu=19;P=0,95} = 2,093$ . La moyenne et l'écart-type de cet échantillon valent respectivement 13,697 mJ et 0,180 mJ, ce qui donne une énergie de 13,7 ± 0,4 mJ. Dans les conditions limites d'un grand nombre de mesures, les coefficients de Student  $t_{\nu P}$  coïncident avec les valeurs données par la distribution de Gauss. Pour un niveau de confiance de 95%, le coefficient  $t_{\nu=\infty;P=0,95} = 1,96$ .

Ajouter à cela, on doit tenir compte des erreurs systématiques. Celles-ci sont de deux natures. Il y a celles liées au protocol expérimental et celles dues à la calibration et qui sont fournies par le constructeur. Les caractéristiques des têtes pyroélectriques utilisées sont présentées au tableau 3.3.

Réponse spectrale	Absorbeur métallique : $0,15 - 3 \ \mu m$
Réflectivité	$\simeq 50\%$
Largeur maximale de l'impulsion	$30 \ \mu s$ (mode court)
	1  ms (mode long)
Fréquence maximale	4000 Hz (mode court)
	250 Hz (mode long)
Erreur due à la fréquence	$\pm$ 1% jusqu'à 3kHz et 4% au-delà
Erreur due à la calibration	$\pm$ 3%
Erreur due à la longueur d'onde	
300 – 800 nm	$\pm 4\%$
1064 nm	0%
Erreur de linéarité	$\pm$ 1% si la mesure est $\leq$ 10% de la gamme

TAB. 3.3: Caractéristiques des têtes pyroélectriques utilisées

Ces données constructeurs ne spécifient pas la manière dont ces incertitudes sont estimées. En l'occurence aucune indication sur la distribution des mesures n'est fournie. On a supposer une distribution uniforme pour les mesures. Dans ce cas on montre que l'écart-type de la distribution est donné par :

$$\sigma = \frac{e_{\max}}{\sqrt{3}} \tag{3.17}$$

où  $e_{\text{max}}$  représente l'erreur maximale sur la mesure.

Une autre contribution à l'incertitude provient de la résolution finie de l'appareil de mesure. Désignons par r la résolution de l'appareil et par x la valeur mesurée. La vraie valeur est comprise dans l'intervalle  $x \pm 0, 5r$ . En supposant que la probabilité d'obtenir une certaine valeur est uniforme on a donc un écart-type donné par

$$\sigma = \frac{r}{2\sqrt{3}} \tag{3.18}$$

On regroupe les différentes composantes systématiques de l'incertitude en quadrature aboutissant finalement à l'incertitude systématique suivante :

$$\delta E_{\text{syst}} = \frac{E_{\text{mes}}}{\sqrt{3}} \sqrt{\sum_{i} e_{r_i}^2} \tag{3.19}$$

où  $e_{r_i}$  représente la *i*ème composante relative.

L'incertitude systématique totale,  $\delta E_{\text{syst}}/E_{\text{mes}}$  vaut donc, pour les longueurs d'onde de 355 et 532 nm, 3% et 2% à 1064 nm.

On peut de même combiner en quadrature les composantes aléatoire et systématique de l'incertitude en une incertitude totale :

$$\delta E = \sqrt{(\delta E_{\text{syst}})^2 + (\delta E_{\text{aléa}})^2} \tag{3.20}$$

L'énergie incidente est donnée en fonction de la valeur lue et de celle du coefficient de réflexion par

$$E_{\rm inc} = (1 - \alpha)E_{\rm lue} \tag{3.21}$$

L'incertitude relative sur l'énergie incidente vaut donc

$$\frac{\delta E_{\rm inc}}{E_{\rm inc}} = \left(\frac{\delta \alpha}{\alpha}\right)_{\rm totale} + \left(\frac{\delta E_{\rm lue}}{E_{\rm lue}}\right)_{\rm totale}$$
$$= \left(\frac{\delta \alpha}{\alpha}\right)_{\rm totale} + \sqrt{\left(\frac{s_m t_{\nu P}}{E_{\rm inc}}\right)^2 + \left(\frac{\delta E_{\rm inc}}{E_{\rm inc}}\right)^2_{\rm syst}}$$
(3.22)

Les valeurs du coefficient de réflexion aux différentes longueurs d'ondes, ainsi que les incertitudes correspondantes sont donn'es au tableau 3.4.

Longueur d'onde (nm)	Coefficient de réflexion (%)	Incertitude relative (%)	
		aléatoire	systématique
355	5,83	0,4	6
532	8,55	0,2	6
1064	4,76	0,3	4

TAB. 3.4: Coefficients de réflexion aux différentes longueurs d'onde

Dans le cas de l'énergie transmise on a  $\delta \alpha / \alpha = 0$  et donc

$$\frac{\delta E_{\text{trans}}}{E_{\text{trans}}} = \sqrt{\left(\frac{s_m t_{\nu P}}{E_{\text{trans}}}\right)^2 + \left(\frac{\delta E_{\text{trans}}}{E_{\text{trans}}}\right)^2_{\text{syst}}}$$
(3.23)

### 3.5.2 Énergie minimum d'allumage

L'ensemble des mesures d'énergie minimum, aux différentes longueurs d'ondes et distances focales utilisées, est présenté dans l'annexe A. Les tableaux donnent, pour un  $\lambda$  et un f donné, le nombre de tirs ayant produit un allumage, sans et avec l'accrochage de la flamme à la sortie du brûleur. Pour chaque cas, nous donnons l'énergie incidente et transmise moyenne sur ce nombre de tirs, ainsi que l'écart-type expérimental correspondant.

Les figures 3.15, 3.16 et 3.17 présentent l'énergie incidente minimum d'allumage en fonction de la richesse pour les différentes longueurs d'ondes et focales des lentilles. On voit que l'énergie incidente nécessaire à produire l'allumage est d'autant plus importante que la longueur d'onde et/ou la distance focale augmente. De plus, pour les lentilles de 50 et 100 mm de focale, et pour une richesse comprise entre 0.8 à 1.2, l'énergie incidente seuil est constante. Pour les mélanges de richesse inférieure à 0.8, aucun allumage n'a été possible. Pour les richesses supérieures à 1.2, l'énergie incidente seuil augmente.



FIG. 3.15: Énergie incidente minimum d'allumage de mélanges gazeux de méthane/air en fonction de la richesse ( $\lambda = 355$  nm)



FIG. 3.16: Énergie incidente minimum d'allumage de mélanges gazeux de méthane/air en fonction de la richesse ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ )



FIG. 3.17: Énergie incidente minimum d'allumage de mélanges gazeux de méthane/air en fonction de la richesse ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ )

Nous présentons au chapitre 6, le cas de l'allumage d'un mélange méthane/air lorsque la focale utilisée est de 50 mm, avec un faisceau laser à 355 nm.

# 3.6 Allumage d'un nuage de gouttes

### 3.6.1 Génération d'un nuage de gouttes de n-heptane et de JP4

Notre étude nécessite l'utilisation d'un nuage de gouttes le plus simple possible. Le nuage de gouttes doit avoir une très faible dispersion de taille et de forme de gouttes. Les gouttes doivent être constituées d'un même composant et présenter une répartition spatiale statistiquement homogène. Ces contraintes nous permettent de bien caractériser le nuage de gouttes que l'on allume.

### 3.6.2 Choix de l'atomiseur

Un des problèmes majeurs inhérent à l'étude des nuages de gouttes est la création même du nuage. Les caractéristiques du nuage, telles que la distribution de la taille et de la vitesse, la densité des gouttes, la répartition spatiale au sein du nuage de gouttes, la longueur moyenne du nuage, l'angle d'ouverture, la présence d'atomisation secondaire, la coalescence des gouttes, sont des paramètres fondamentaux dans l'étude de tout problème, en présence d'une phase dispersée. Or, le processus d'atomisation contrôle ces caractéristiques.
groupe est constitué d'atomiseurs pour lesquels les instabilités de surface provoquant la rupture de la phase liquide et l'atomisation sont dues aux forces aérodynamiques. Dans ce cas une forte corrélation existe entre le champ aérodynamique et le nuage. Le second groupe contient les atomiseurs utilisant une excitation externe, par exemple des oscillations ultrasoniques ou un champ électromagnétique. Dans ce cas le champ ne dépend plus du champ aérodynamique.

Dans le cadre de notre étude, certains critères doivent être remplis ; une faible dispersion de la fonction de distribution de taille de gouttes est requise, incluant un diamètre moyen indépendant des débits de gaz et de liquide à atomiser, ce qui représente la contrainte majeure.

Une étude comparative sur les différents types d'atomiseurs a été menée par Lacas et al. (1994). Cette analyse montre que le système d'atomisation fondé sur les instabilités ultrasoniques de surface génére un nuage de gouttes dont les caractéristiques conviennent à notre étude. Un atomiseur ultrasonique est choisi pour générer un nuage de gouttes de diamètre moyen de 35  $\mu$ m.

#### 3.6.3 L'atomiseur ultrasonique

Lorsqu'un film liquide est déposé sur une surface vibrante, de sorte que la direction de la vibration soit perpendiculaire à la surface, le liquide absorbe une partie de l'énergie vibrationnelle, et on voit apparaître à sa surface une structure ondulatoire. Lorsque l'amplitude de vibration augmente, l'amplitude de ces ondes, appelées ondes capillaires, augmente également. Cette amplitude peut être augmentée jusqu'à atteindre une amplitude critique, à partir de laquelle l'amplitude des ondes capillaires dépasse celle nécessaire pour maintenir leur stabilité. De petites gouttes sont ainsi arrachées et éjectées perpendiculairement de la surface du liquide (Lang, 1962).

Bien que ces ondes capillaires peuvent être créées à des fréquences audibles ( $\leq 20$ kHz), cette technique est utilisée dans la pratique à des fréquences utltrasoniques ( $\geq 20$ kHz). On peut invoquer deux raisons à ce choix. Tout d'abord, en deçà de 20 kHz, le son produit par le système peut causer des désagréments pour les personnes travaillant dans son voisinage. Ensuite, la taille des gouttes produites serait trop grande pour la plupart des applications.

La fréquence des ondes transverses présentes à la surface du liquide est égale à la moitié de la fréquence excitatrice (Lang, 1962). La relation de Kelvin lie les caractéristiques physiques du liquide, telle que la tension de surface  $\sigma$  et la masse volumique  $\rho$ , à la longueur d'onde  $\lambda$  et à la fréquence f/2 des ondes de surface :

$$\lambda^3 = 8\pi \frac{\sigma}{\rho f^2} \tag{3.24}$$

Des études expérimentales menées par Lang (1962), ainsi que par Lacas et al. (1994), ont montré qu'il existe une relation de proportionnalité entre les différents diamètres moyens du nuage de gouttes D et la longueur d'onde des ondes de surfaces ( $\lambda$ ) :

$$D = K \left[ 8\pi \frac{\sigma}{\rho f^2} \right]^{1/3} \tag{3.25}$$

où K est donnné par la loi semi-empirique de Lang (1962) :  $K = 0.34m^{2/3}$ .

Nous disposons au laboratoire d'atomiseurs ultrasoniques *Sonics* dont la fréquence excitatrice est de 40 kHz. Cette fréquence correspond à un diamètre moyen d'à peu près 30 et 40  $\mu$ m, respectivement pour le n-heptane et pour l'eau (Lemaire, 2003).

Les systèmes d'atomisation ultrasoniques proposés par *Sonics* se composent de trois éléments. Ces éléments peuvent être modifiés en fonction des caractéristiques du nuage de gouttes désirées. On a :

- une alimentation de puissance qui convertit la tension de 50/60 Hz du secteur en une énergie électrique de puissance de 130 W à la fréquence ultrasonique de 40 kHz;
- un convertisseur qui transforme l'énergie électrique en énergie mécanique par l'intermédiaire d'anneaux de céramique piezoélectrique. La céramique piezoélectrique est constituée de cristaux de fils de zirconate de titanium;
- une sonde d'atomisation qui transmet les vibrations ultrasonores à la surface d'atomisation.
   Cette sonde est composée d'un alliage de titanium de haute impédance acoustique.

La sonde d'atomisation utilisée permet d'atomiser des débits de liquide allant de 0.12 à 30 mL s<sup>-1</sup>. Pour ne pas perturber le processus d'atomisation, le débit de liquide à atomiser doit être stable. Pour ce faire, un contrôleur/débitmètre liquide de la marque *Bronkhorst* régule le débit de n-heptane (valeur pleine échelle =  $0.5 \text{ lh}^{-1}$  – calibré pour du n-heptane). Son fonctionnement nécessite un différenciel de pression entre l'entrée et la sortie. En amont du contrôleur/débitmètre, le liquide est pressurisé dans une cuve à l'aide d'hélium comprimé. Notons que l'hélium sous pression se dissout dans le n-heptane et forme des bulles en se détendant. La présence de ces bulles de gaz perturbe fortement le processus d'atomisation. À la sortie du débitmètre, nous avons donc placé un tube vertical qui sert à détourner ces bulles d'hélium. L'écoulement d'air entrainant les gouttes a été régulé à l'aide d'un contrôleur/débitmètre gazeux de la marque *Bronkhorst* (valeur pleine échelle =  $4 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$  – calibré pour de l'azote).

# 3.7 Caractérisation du nuage de gouttes d'eau

Le brouillard a été caractérisé par une expérience d'anémométrie et de granulométrie par phase Doppler (Lemaire, 2003). L'étude a été effectuée avec de l'eau. Le volume de mesure est déplacé dans un plan vertical passant par l'axe de l'atomiseur. À chaque position, une distribution de taille et de vitesse de gouttes est obtenue.

La méthode de PDA est une méthode ponctuelle de mesure de diamètre et de vitesee des particules. C'est une méthode diagnostic qui apporte des informations statistiques sur le nuage de gouttes à travers ses fonctions de distribution de taille et de vitesse. De la fonction de distribution de la taille,  $f_n$ , la série des diamètres moyens  $(D_{qp})^{q-p}$  peut être déduite (Williams, 1990) :

$$(D_{qp})^{q-p} = \frac{\int_0^\infty f_n(D) D^q \, dD}{\int_0^\infty f_n(D) D^p \, dD}$$
(3.26)

Lemaire (2003) a utilisé quatre de ces diamètres pour étudier l'influence de divers paramètres sur le nuage de gouttes :

- le diamètre  $D_{10}$  qui représente le diamètre moyen sur un nombre N de gouttes ;
- le diamètre  $D_{20}$  qui correspond au diamètre de la goutte ayant le même rapport surfacique que le brouillard, c'est-à-dire que la surface totale des gouttes au sein du nuage est égale à  $S = N\pi D_{20}^2/4$ ;
- le diamètre  $D_{30}$  qui correspond au diamètre de la goutte ayant le même rapport volumique que le brouillard, c'est-à-dire que le volume total des gouttes au sein du nuage est égal à  $V = N\pi D_{30}^{1/3}/6$ ;
- le diamètre  $D_{32}$ , appelé diamètre de Sauter, correspond au diamètre de la goutte ayant le même rapport volume sur surface que l'ensemble du nuage :  $D_{32} = D_{30}^3/(6D_{30}^2)$ .

Le diamètre moyen  $D_{10}$  caractérise les propriétés optiques, tandis que le diamètre moyen  $D_{32}$  caractérise les propriétés d'évaporation du nuage. De plus, le rapport entre les diamètres moyens géométrique,  $D_{10}$ , et de Sauter,  $D_{32}$ , est un bon indicateur de la dispersion du nuage : plus la différence est grande, plus la distribution de taille est dispersée.

Lemaire (2003) a montré que la distribution de taille, à l'axe de l'atomiseur, 8 mm en dessous de la surface d'atomisation, est particulièrement étroite. Quatre-vingt-dix pour cent des gouttes possèdent un diamètre compris entre 25 et 45  $\mu$ m. Les diamètres moyens,  $D_{10}$  et  $D_{32}$ ont été calculés pour cette distribution. Lemaire trouve respectivement 40 et 56  $\mu$ m. De plus, on montre que la taille des gouttes est très peu dépendante de la puissance fournie ou de la quantité de liquide à atomiser, à partir du moment où l'énergie par unité de volume de liquide à atomiser est suffisante (Lang, 1962).

Au cours de nos expériences la puissance au transducteur piezo-électrique a toujours été réglée en fonction du débit du liquide à atomiser, au minimum permettant l'atomisation.

Les diamètres des gouttes, pour différents liquides, sont liés par la relation suivante (Lemaire, 2003) :

$$\frac{D_{combustible}}{D_{eau}} = \left[\frac{(\sigma/\rho)_{combustible}}{(\sigma/\rho)_{eau}}\right]^{1/3}$$
(3.27)

Ce résultat n'est valable que si le régime d'atomisation est identique pour l'atomisation de différents liquides, et en particulier si la puissance fournie au liquide par unité de volume est suffisante pour obtenir l'atomisation. On estime ainsi le diamètre moyen des gouttes formant le nuage de n-heptane et de JP4 à 31  $\mu$ m.

## 3.8 Montage expérimental

Le montage expérimental est constitué d'un brûleur équipé de l'atomiseur ultrasonique présenté à la figure 3.18. L'allumage s'effectue à l'aide d'un laser à impulsions (figure 3.19) *Quantel* dont le rayonnement se situe dans l'infrarouge à 1064 nm. Le diamètre du faisceau est de 3

mm. L'énergie est contrôlée à l'aide d'une paire de polariseurs, et mesurée par le joulemètre placé en amont du brûleur. La fraction de l'énergie redirigée vers le joulemètre se fait à l'aide d'un échantillonneur optique dont l'emplacement est indiqué sur la figure 3.19. L'optique de focalisation est constitué d'une paire de lentilles séparées d'une distance de 240 mm l'une de l'autre (figure 3.20). Une première lentille (L1) divergente (-75 mm de focale) sert à élargir le diamètre du faisceau de façon à être mieux focalisé par la deuxième lentille (L2) convergente (75 mm). Une troisième lentille (L3) est placée en aval du brûleur et sert à recueillir l'énergie transmise afin d'être mesurée par le deuxième joulemètre.



FIG. 3.18: Brûleur



FIG. 3.19: Paire de polariseurs + joulemètre



FIG. 3.20: Système de focalisation

# 3.9 Résultats

La figure 3.21 présente l'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente pour différents mélanges de n-heptane/air. Les richesses globales<sup>1</sup>,  $\Phi$ , sont de 0.3 ( $\triangleright$ ,  $\triangleright$ ), 0.7( $\circ$ ,  $\bullet$ ), 1.0 ( $\Box$ ,  $\blacksquare$ ), ( $\Diamond$ ,  $\blacklozenge$ ), ( $\triangle$ ,  $\blacktriangle$ ), 1.3 ( $\nabla$ ,  $\bigtriangledown$ ) et 1.7 ( $\triangleleft$ ,  $\blacktriangleleft$ ).



FIG. 3.21: Énergie transmise en fonction de l'énergie incidente ( $\lambda = 1064$ nm) pour différents mélanges de n-heptane/air. Les symboles vides et pleins correspondent respectivement à des allumages réussis et non-réussis. Les richesses globales sont de 0.3 ( $\triangleright$ ,  $\triangleright$ ), 0.7( $\circ$ ,  $\bullet$ ), 1.0 ( $\Box$ ,  $\blacksquare$ ), ( $\Diamond$ ,  $\blacklozenge$ ), ( $\Delta$ ,  $\blacktriangle$ ), 1.3 ( $\nabla$ ,  $\bigtriangledown$ ) et 1.7 ( $\triangleleft$ ,  $\triangleleft$ ).

 $<sup>{}^{1}\</sup>Phi = \left(\dot{m}_{\rm C_7H_{16}}/\dot{m}_{\rm O_2}\right)/\left(\dot{m}_{\rm C_7H_{16}}/\dot{m}_{\rm O_2}\right)_{st}$ 

Chaque point de mesure correspond à un tir unique. La vitesse de l'écoulement à la sortie du brûleur est de  $4.2 \text{ m s}^{-1}$  dans tous les cas sauf pour la richesse de 0.3 pour laquelle cette vitesse est de 8.5 m s<sup>-1</sup>.

Ces résultats montrent que pour toutes les richesses globales au moins 50% des tirs ont produit un allumage, à l'exception du mélange présentant une richesse globale de 1.7. Dans ce dernier cas, seul 10% des tirs sont réussis. De plus on note qu'une énergie par impulsion comprise entre 16 et 29 mJ est nécessaire pour allumer les différents mélanges. Les énergies incidentes et transmises ont été mesurées avec une incertitude de 4%. L'absorption, qui correspond à l'énergie incidente moins l'énergie transmise rapportée à l'énergie incidente, présente de très fortes fluctuations. Dans tous les cas une absorption d'au moins 50% de l'énergie est mesurée. Pour une richesse globale de 1, cette valeur monte jusque 97%. On note également que pour une énergie incidente donnée, la dispersion sur l'énergie transmise est toujours importante, et ce, que l'allumage ait eu lieu ou non. Les faibles variations de l'énergie incidente ( $\pm$  5%) ne permettent pas d'expliquer les fluctuations de l'énergie transmise. Une partie de l'atténuation du faisceau peut trouver son origine dans la diffusion du rayonnement par le plasma lui-même, mais Syage et al. (1988) ont montré que ces pertes étaient négligeables. D'un autre côté, si le seuil de claquage est déterminé par l'apparition du premier électron libre, les fluctuations de l'énergie transmise peuvent trouver leur origine dans le caractère aléatoire de l'apparition de ce premier électron. Cette aspect stochastique est probablement lié à la structure multimode du laser utilisé au cours de nos expériences. Une autre source de dispersion provient également de la nature intrinsèquement fluctuante de la structure du nuage de gouttes.



FIG. 3.22: Probabilité d'allumage de différents mélanges JP4/air en fonction de l'énergie incidente ( $\lambda = 1064$ nm). Les différents symboles correspondent à des mélanges différents (voir tableau 3.5).

La figure 3.22 présente la probabilité d'allumage de différents mélanges de JP4/air en fonction de l'énergie incidente du faisceau laser. Les probabilités d'allumage ont été obtenues à partir d'un échantillon de 20 tirs lasers. Pour des raisons de clarté, nous n'avons pas porté sur la figure 3.22 l'incertitude liée à l'énergie incidente. Plusieurs mélanges ont été étudiés. Le tableau 3.5 résume la composition de ces mélanges.

	Pourcentage pleine échelle du débitmètre liquide $(0.5 \ l \ h^{-1}$ de n-heptane)	Pourcentage pleine échelle du débitmètre gazeux $(4 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1} \text{ de } N_2)$	Symbole
Mélange 1	10%	20%	0
Mélange 2	20%	20%	
Mélange 3	30%	20%	$\diamond$
Mélange 4	40%	20%	$\triangle$
Mélange 5	20%	60%	$\bigtriangledown$
Mélange 6	30%	60%	$\triangleleft$
Mélange 7	40%	60%	$\triangleright$

TAB. 3.5: Différents mélanges de JP4/air étudiés

Pour les mélanges 1, 2, 3 et 4 la vitesse de l'écoulement d'air à la sortie du brûleur est de  $2.8 \text{ m s}^{-1}$ . Pour ces mélanges, l'énergie incidente nécéssaire pour allumer augmente avec la proportion de JP4. Cette énergie varie de 22 à 32 mJ. Dans le cas des mélanges plus pauvres, c'est-à-dire les mélanges 5, 6 et 7, la vistesse à la sortie du brûleur est de  $8.5 \text{ m s}^{-1}$ . Pour allumer ces derniers mélanges une énergie incidente plus importante (35 mJ) a été nécessaire et ceci pour deux raisons. Tout d'abord la proportion de JP4 est plus faible et donc on se rapproche de la limite d'inflammabilité inférieure (0.7% en volume). Ceci est confirmé par le fait que pour ces mélanges plus le pourcentage de JP4 est important plus l'énergie incidente nécessaire pour obtenir l'allumage est faible. Et finalement, il faut compenser les pertes dues à l'écoulement qui sont plus importantes.

Les bars d'erreurs présentées à la figure 3.22 correspondent aux intervalles de confiance (70%) calculés selon la méthode présentée à la section 3.4. On note l'importance de cette composante qui est liée à la taille de l'échantillon utilisé pour estimer la probabilité d'allumage. On voit que les bornes inférieures et supérieures se rapprochent de plus en plus de l'estimation de la probabilité à mesure que le nombre de tirs fructueux augmente. La différence entre l'estimation de la probabilité,  $\hat{p}$ , et la borne supérieur de l'intervalle de confiance varie de 4% ( $\hat{p} = 95\%$ ) à 220% ( $\hat{p} = 5\%$ ). Dans le cas de la borne inférieure, cette différence varie de 11.5% ( $\hat{p} = 95\%$ ) à 84% ( $\hat{p} = 5\%$ ). Nos calculs montrent que pour des échantillons de 200 tirs, les bornes des intervalles de confiance se rapprochent de plus en plus et deviennent plus symétriques autours des probabilités estimées. Cependant, l'incertitude varie toujours de 30-40% à 2 % dans le meilleur des cas. Pour obtenir une erreur relative de moins de 10%, chaque point de la courbe de probabilité devrait correspondre à plus de 1000 tirs laser !



FIG. 3.23: Énergie transmise en fonction de l'énergie incidente pour différents mélanges de JP4/air ( $\lambda = 1064$ nm)

Les figures 3.23(a), (b), (c), (d), (e) et (f) présentent l'énergie transmise en fonction de l'énergie

incidente pour différents mélanges de JP4/air. Dans ces figures les bars d'erreurs correspondent à la somme quadratique des composantes systématiques et aléatoires. Dans tous les cas, au moins 15 à 25% de l'énergie incidente est transmise. Un maximum de 30-32% de l'énergie est transmise dans le cas de tentatives d'allumage infructueuses. La figure 3.23(a) montre que l'énergie transmise augmente légèrement avec l'énergie incidente, de 1.2 mJ à 6.1 mJ, avant de décroître à 4.9 mJ. Le même comportement est observé dans le cas des mélanges 2, 3 et 4. En revanche pour les mélanges 5 et 6, la tendance est différente. On observe d'abord une décroissance de l'énergie transmise jusqu'à un minimum atteint pour une énergie incidente respectivement de 28 et 23 mJ avant d'augmenter.

## 3.10 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons étudié expérimentalement le claquage de l'air et l'allumage de mélanges monophasique et diphasique de combustible/comburant. Les expériences ont été effectuées à température ambiante et à pression atmosphérique.

Ce chapitre s'est concentré sur les mesures de seuils minimums de claquage dans l'air, ainsi que sur la mesure des énergies minimums d'allumage des mélanges inflammables pour différents paramètres, tels que la composition du mélange, la longueur d'onde du rayonnement laser, et la distance focale du système de focalisation. Une analyse qualitative de la propagation et de l'absorption de l'énergie laser a été faite à partir d'images d'émission spontanée. Globalement, nous avons montré que l'absorption de l'énergie laser commence immédiatement après le claquage et que plus de 15 à 20% de l'énergie incidente est directement absorbé. Cette absorption relativement importante de l'énergie, pour des valeurs légèrement supérieures au seuil de claquage, nous indique que le chauffage des électrons par le bremsstrahlung inverse est un processus important pour le chauffage et l'ionisation du plasma. Nous avons également montré que l'énergie transmise augmente lorsque l'énergie incidente augmente. Cela peut s'expliquer par une saturation du plasma dans le volume de focalisation. Nous avons observé trois régions caractéristiques, très différentes, sur les courbes d'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente. La première région correspond au cas où toute l'énergie incidente est transmise; aucune absorption n'a lieu. Dans le cas d'un rayonnement de 355 nm focalisé à l'aide d'une lentille plano-convexe de 50 mm, nous avons montré que cette région se situe entre 0 mJ et 25 mJ. Pour des énergies incidentes supérieures à 34 mJ, toutes les impulsions rendent le milieu conducteur et subissent une très forte absorption ( $\geq 50\%$ ). Le claquage se produit de façon aléatoire dans la région intermédiaire.

Concernant l'allumage de mélanges méthane/air, nous avons montré la possibilité d'initier les réactions de combustion dans le cas d'un écoulement. Les énergies minimums obtenues sont d'un ordre de grandeur supérieure à celles trouvées dans le cas de l'allumage traditionnel. Aucune différence notable des énergies minimums n'a été observée aux différentes longueurs d'ondes (355, 532 et 1064 nm) et avec les différentes lentilles utilisées (50, 100 et 150 mm). Bien que ces propriétés influencent le seuil de claquage, une fois que celui-ci est atteint, l'allumage ne dépend plus que de la quantité d'énergie déposée dans le milieu. Les courbes d'énergie minimums en fonction de la richesse sont relativement similaires à celles obtenues avec un

système d'électrodes. Du côté des mélanges richesses, nous disposions toujours d'une énergie suffisante pour provoquer l'allumage du mélange. Pour les mélanges pauvres, en-deçà d'une richesse de 0.7, il nous a été impossible d'allumer. Nous avons là une grande différence avec l'allumage classique pour lequel la limite d'inflammabilité basse correspond à une richesse de 0.5. Nous avons également démontré, par une telle étude paramètrique, qu'une densité de puissance optimum existe ; au-delà de cette valeur l'onde de choc émise et la turbulence induite par le dépôt d'énergie, peuvent perturber la naissance et la propagation de la flamme.

Dans le cas de l'allumage d'un nuage de goutelettes, nous avons également démontré la possibilité d'allumer. Ces expériences se sont faites à l'aide d'un laser dont le rayonnement se situe dans l'infrarouge (1064 nm). Nous avons montré que le seuil de claquage en présence de gouttes se voyait réduit considérablement. Deux combustibles liquides ont été étudiés, le n-heptane et le JP4. Dans les deux cas, l'énergie minimum incidente produisant l'allumage des mélanges varie de 16 à 30 mJ. Nous avons également montré que la méthode généralement utilisé pour mesurer les énergies minimums d'allumage pouvait conduire à des incertitudes très importantes.

## Chapitre 4

## EFFETS DE L'ABERRATION SPHÉRIQUE SUR LA FOCALISATION D'UN FAISCEAU GAUSSIEN

# 4.1 Introduction

Dans de nombreuses applications, un faisceau laser est focalisé de manière à produire une intensité lumineuse élevée dans une petite région de l'espace (volume de focalisation). Par exemple, dans le cas des plasmas entretenus par laser, la stabilité du plasma est liée aux intensités élevées obtenues par focalisation. On peut également citer la fluorescence induite par laser qui nécessite également l'utilisation d'intensité élevée dans un volume très restreint. Dans le traitement de matériaux par soudure, découpage et perçage, un faisceau focalisé est utilisé pour faire fondre ou vaporiser du métal ou un morceau de céramique. D'autres applications trouvent leurs places dans la fusion nucléaire et dans la chimie induite par laser.

Dans toutes ces applications une compréhension complète des processus impliqués dépend de la connaissance du champ d'intensité lumineux au voisinage du point focal du système optique. La détermination de la distribution d'intensité, dans le volume de focalisation, se complique du fait des effets de diffraction liés aux dimensions finies des lentilles, à l'amplitude et la phase du faisceau incident, et des aberrations trouvant leur origine dans les lentilles et dans les propriétés de propagation de la lumière. L'utilisation de l'optique géométrique (tracé de rayons) est très utile pour analyser la plupart des phénomènes lumineux. Néanmoins, la nature ondulatoire de la lumière en étant complètement absente, l'optique géométrique n'est plus adaptée lorsqu'il s'agit de déterminer les distributions d'intensité dans des régions de l'espace dont les dimensions sont de l'ordre de grandeur, voire deux fois l'ordre de grandeur, de la longueur d'onde. La théorie de la diffraction doit donc être utilisée.

Le problème traité dans le présent chapitre peut donc se formuler de la manière suivante : connaissant le champ complexe d'un faisceau laser incident sur une lentille, dont les caractéristiques sont connues, quelle sera la distribution d'intensité dans une petite région autour du point focal de la lentille ?

# 4.2 Travaux antérieurs

Bien que les premiers travaux sur les aberrations utilisant la théorie de la diffraction remontent à Rayleigh (1879), ce n'est que vers les années 1940 que Zernike (1942) et Zernike et Nijboer (1949) ont développé une théorie de la diffraction de la formation des images en tenant compte des aberrations. Dans leurs travaux, les auteurs ont traité le cas d'un rayonnement d'amplitude constant. Les effets des aberrations étaient pris en compte en ajoutant un terme de phase dans l'argument de l'exponentielle complexe intervenant dans l'intégrale de diffraction. Ce terme de phase était alors développé en une série de polynômes orthogonaux, appelés les polynômes circulaires de Zernike. Les termes individuels de ce développement correspondent aux aberrations sphérique, de coma, d'astigmatisme, de courbure de champ ou de distorsion en fonction de leurs effets sur l'image.

En 1948, Kingslake ainsi que Nienhuis et Nijboer, ont apporté une confirmation expérimentale à la théorie de Nijboer-Zernike, en photographiant la distribution d'intensité transversale en présence d'aberrations primaires. Plus tard Maréchal (1948) utilisa un intégrateur mécanique pour calculer la distribution d'intensité dans le plan méridional (c'est-à-dire un plan contenant l'axe optique) pour un faisceau circulaire uniforme focalisé en présence de l'aberration sphérique primaire, ainsi que la distribution d'intensité dans des plans transverses, mais en tenant compte cette fois des effets combinés des différents types d'aberrations. La théorie et les résultats de ces travaux sont présentés dans les livres de Linfoot (1955) et Born et Wolf (1980).

Bien que cette approche forme une base pour la théorie de la diffraction des aberrations, elle reste cantonnée à des systèmes n'utilisant que des lentilles circulaires et des faisceaux uniformes.

L'apparition des lasers a ravivé l'intérêt pour ce genre de problèmes. Les premiers travaux ont été étendu au cas des faisceaux ne présentant pas des profils uniformes (Holmes et al., 1972; Arimoto, 1974). Lowenthal (1974) et Sklar (1975) ont étudié, respectivement, la focalisation d'un faisceau gaussien entier et tronqué. Yoshida (1982) a considéré le cas d'un système ne présentant pas une symétrie cylindrique. En effet, l'auteur a étudié la focalisation d'un faisceau gaussien dont l'axe ne coïncide pas avec l'axe optique du système.

Plus récemment, Geary et Peterson (1984) ont utilisé l'approche de l'optique de Fourier pour étudier la distribution d'intensité dans le voisinage du point focal, suite à la focalisation d'une onde plane uniforme. En développant le terme de phase introduit par la présence de la lentille, et en ne conservant que les termes du deuxième ordre, ils ont obtenu une expression décrivant l'aberration sphérique dépendant explicitement des paramètres de la lentille. Les autres termes dans l'intégrale de diffraction étaient considérés seulement jusqu'au premier ordre. Dans un autre article (Geary et Peterson, 1986), une étude expérimentale du système a été effectuée. Pour cela, un scanner à fibre optique était placé dans le voisinage du point focal de la lentille et la distribution d'intensité, dans différents plans transverses a été mesurée.

Li et Wolf ont publié une série d'articles traitant du déplacement du point focal (Li et Wolf, 1981, 1982a,b). Ils ont montré que le pic d'intensité sur l'axe d'une onde sphérique convergente se situe avant le point focal gaussien. Leurs plus récentes contributions incluent la détermination des isophotes dans un plan méridional, au voisinage du point focal (Li et Wolf, 1984; Li, 1987). Notons toutefois, que ces études ont été effectuées dans le cas d'une onde plane uniforme, convergée par un système à symétrie cylindrique.

## 4.3 **Rappels théoriques**

La propagation de la lumière, dans la plupart des systèmes optiques de laboratoire, se fait soit à travers l'espace libre, soit à travers des milieux diélectriques. Bien qu'une description complète du rayonnement requièrt la connaissance des trois composantes du champ électrique et des trois composantes du champ magnétique en fonction des coordonnées spatiales et du temps, dans beaucoup de cas une seule composante suffit à caractériser le rayonement. Soit u(x, y, z, t) cette composante. Il peut s'agir du champ électrique ou magnétique. Dans le cas d'un rayonnement laser, le champ est presque monochromatique, de sorte qu'une très bonne approximation consiste à écrire u(x, y, z, t) sous la forme suivante :

$$u(x, y, z; t) = u(x, y, z) \cos(2\pi\nu t - \varphi(x, y, z))$$
(4.1)

où u(x, y, z),  $\nu$  et  $\phi(x, y, z)$  correspondent respectivement à l'amplitude du champ, la fréquence du rayonnement et à la phase du champ au point (x, y, z). L'analyse peut être simplifiée en travaillant avec une représentation du champ en terme de fonctions analytiques complexes. La composante réelle du champ s'écrit :

$$u(x, y, z; t) = \operatorname{Re}\left[U(x, y, z)e^{-i2\pi\nu t}\right]$$
(4.2)

Dans l'équation 4.2, le terme de phase est contenu dans la fonction d'amplitude complexe U(x, y, z). On peut montrer qu'à partir des équations de Maxwell, l'amplitude, U(x, y, z), est solution de l'équation de Helmholtz (Born et Wolf, 1980),

$$\nabla^2 U(x, y, z) + k^2 U(x, y, z) = 0 \tag{4.3}$$

où k est le nombre d'onde et est défini par  $k \doteq 2\pi/\lambda$ , et  $\lambda$  correspond à la longueur d'onde du rayonnement. L'équation 4.3 est le point de départ de la démonstration de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld qui décrit la propagation de la lumière sur des distances grandes comparées à la longeur d'onde du rayonnement. La démonstration de cette intégrale fait appel au théorème de Green, avec un choix judicieux du volume et de la surface d'intégration et un choix adéquat des fonctions de Green. Une démonstration complète pourra être trouvée dans le livre de Goodman. Seuls les résultats sont présentés ici.

#### 4.3.1 Propagation du champ

La distribution du champ U dans un plan  $(x_0, y_0)$  (figure 4.1) est donnée, en fonction de la distribution du champ U dans un plan  $(x_1, y_1)$ , par la relation intégrale suivante (Goodman, 1968) :

$$U(x_0, y_0, z_0) = \frac{1}{j\lambda} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} U(x_1, y_1, z_1) \frac{e^{j\vec{k}.\vec{r}_{01}}}{r_{01}} \cos(\vec{n}, \vec{r}_{01}) \, dx_1 dy_1 \tag{4.4}$$

où  $\vec{r}_{01}$  est un vecteur de  $(x_0, y_0, z_0)$  à  $(x_1, y_1, z_1)$ , et  $\vec{n}$  est un vecteur unitaire perpendiculaire au plan  $(x_1, y_1)$ .



FIG. 4.1: Distribution du champ U suite à la propagation de la lumière

#### 4.3.2 Effet d'une lentille sur la propagation du champ

Considérons une lentille centrée sur l'axe optique du système, avec sa surface avant située en z = 0 et sa surface arrière en  $z = \Delta_0$ , avec  $\Delta_0$  correspondant à l'épaisseur maximum de la lentille. Notons  $U(\rho, 0)$  le champ d'amplitude complexe incident sur la lentille (figure 4.2). Quel est l'effet produit par la lentille sur le champ transmis,  $U(\rho, \Delta_0)$  à la sortie de la lentille. Comment peut-on calculer l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld (équation 4.4) de manière à déterminer le champ dans la région focale,  $U(x_f, y_f, z_f)$  connaissant sa distribution à la sortie de la lentille,  $U(\rho, \Delta_0)$ ?



FIG. 4.2: Lentille de focalisation

La théorie scalaire de la diffraction du premier ordre suit l'approche suivante à ce problème. Tout d'abord, l'effet de la lentille est considéré dans l'approximation de la lentille mince. Dans cette approximation, la valeur de l'amplitude du champ ne varie pas suite à la traversée de la lentille. En revanche, la phase du champ incident est modifiée, étant donné que le champ traverse des épaisseurs différentes du matériau de la lentille présentant un indice de réfraction n. De plus, le point de sortie correspond au point d'entrée. L'effet de la lentille consiste donc simplement à introduire un terme de déphasage dans l'expression du champ. Le champ transmis et le champ incident sont donc liés par la relation suivante (Goodman, 1968, pp. 78-80) :

$$U(x, y, \Delta_0) = U(x, y, 0) P(x, y) e^{jk\Delta_0} e^{jk(n-1)\Delta(\rho)}$$
(4.5)

où P(x, y) correspond à la fonction pupille, qui décrit l'ouverture de la lentille, et  $\Delta(\rho)$  est l'épaisseur de la lentille à une distance  $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$  de son centre.

Pour une lentille sphérique bi-concave, avec des rayons  $R_1$  et  $R_2$ , l'épaisseur de la lentille est donnée par

$$\Delta(\rho) = \Delta_0 - R_1 \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{R_1^2}} \right) + R_2 \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{R_2^2}} \right)$$
(4.6)

L'approche classique consiste à supposer que  $\rho$  reste suffisament faible sur toute l'ouverture de la lentille de sorte que les racines carrées apparaîssant dans l'expression de l'épaisseur (équation 4.6) peuvent être développées en séries de Taylor et que l'on puisse négliger les termes d'ordre supérieur à l'ordre deux. Dans ce cas, l'épaisseur peut être approchée par la relation suivante :

$$\Delta(\rho) = \Delta_0 - \frac{\rho^2}{2} \left( \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right)$$
(4.7)

La substitution de ce terme dans l'expression (4.5) et l'utilisation de la définition de la longueur focale d'une lentille,

$$\frac{1}{f} \equiv (n-1)\left(\frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2}\right) \tag{4.8}$$

donne pour la relation liant le champ transmis au champ incident, dans l'approximation de la lentille mince, la relation suivante :

$$U(\rho, \Delta_0) \cong U(\rho, 0) P(\rho) \exp(jkn\Delta_0) \exp(-j\frac{\pi}{\lambda f}\rho^2)$$
(4.9)

Le terme de phase  $\exp(jkn\Delta_0)$  est une constante complexe qui n'affecte pas la variation spatiale du champ transmis. On ne tiendra donc plus compte de ce terme dans la suite.

La propagation du champ transmis jusqu'à la région focale s'obtient en approximant l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld. Si la distance de propagation de la surface de sortie de la lentille au plan  $(x_f, y_f)$ , définie par  $z_p = |z_f - \Delta_0|$ , est très grande comparée à l'extension physique du champ à l'intérieur de l'ouverture de la lentille, alors sur toute l'aire d'intégration, le terme  $\cos(\vec{n}, \vec{r}_{01})$  est plus ou moins égal à 1, et au dénominateur, la distance  $r_{01}$  est à peu près égale à  $z_p$ .

Les termes d'ordre supérieur négligé sont sources d'erreurs. Et bien que les approximations faites sur le facteur en cosinus et sur la distance  $r_{01}$  au dénominateur ne restent valables que dans certains cas, l'omission des termes d'ordre supérieur dans les exponentielles complexes est habituellement la source d'écart par rapport à la théorie de la diffraction du premier ordre. On introduit donc une fonction  $\Phi(x, y; x_f, y_f z_f)$  de manière à inclure ces termes d'ordre supérieur. Dans ce cas, l'expression du champ au point focal s'écrit

$$U(x_f, y_f, z_f) \sim \frac{1}{\lambda z_f} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} U(x, y, 0) P(x, y) \exp\left[jk\Phi(x, y; x_f, y_f z_f)\right] \\ \times \exp\left[j\frac{\pi}{\lambda}\left(\frac{1}{z_f} - \frac{1}{f}\right)(x^2 + y^2)\right] \exp\left[-j\frac{2\pi}{\lambda z_f}(xx_f + yy_f)\right] dxdy$$
(4.10)

Les effets que le terme de phase supplémentaire introduit sont appellés aberrations. Il est à noter que ces aberrations trouvent leurs origines aussi bien à cause de la présence de la lentille, qu'à cause des propriétés de propagation du rayonnement, c'est-à-dire, qu'en plus des déviations au premier ordre introduit par les surfaces sphériques de la lentille, le comportement de la lumière, tel qu'il est décrit par l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld, introduit également une légère différence par rapport à la relation obtenue en utilisant les approximations précédemment introduites. Même dans le cas d'une lentille asphérique parfaite, le calcul du champ, qui se propage de la sortie de la lentille vers la région focale, se complique par l'introduction de terme exponentiel supplémentaire dans l'expression de l'intégrale. Du fait de leur similarité avec les effets causés par la présence de la lentille, ces déviations dues à la propagation portent également le nom d'aberration.

Supposons que le faisceau est un diamètre avant convergence de d et que la lentille ait un rayon de a. L'intégrale est réécrite en terme de coordonnées cylindriques définies par

$$\begin{aligned} x &= a\rho\cos\theta & x_f &= r\cos\psi \\ y &= a\rho\sin\theta & y_f &= r\sin\psi \end{aligned}$$

Après ce changement de variables, le champ focalisé s'écrit

$$U(r,\psi,z_f) \sim \frac{a^2}{\lambda z_f} \int_0^{2\pi} \int_0^{d/2a} U(\rho,\theta,0) \exp\left[jk\Phi(\rho,\theta;r,\psi,z_f)\right] \\ \times \exp\left[j\frac{\pi a^2}{\lambda} \left(\frac{1}{z_f} - \frac{1}{f}\right)\rho^2\right] \exp\left[-j\frac{2\pi ar\rho}{\lambda z_f}\cos(\theta - \psi)\right] \rho \,d\rho d\theta$$
(4.11)

La borne supérieure de l'intégrale est fixée à d/2a de manière à ce que seule l'aire de la lentille sur laquelle le faisceau laser tombe soit prise en compte. En terme de coordonnées optiques,

$$u = \frac{2\pi a^2 \Delta z}{\lambda f^2}$$
$$v = \frac{2\pi a}{\lambda f} r,$$

on a finalement :

$$U(u,v,\psi) \sim \frac{a^2}{\lambda z} \int_0^{d/2a} \int_0^{2\pi} U(\rho,\theta,0) \exp\left\{j\left[k\Phi(\rho,\theta) - \frac{u\rho^2}{2} - v\rho\cos(\theta - \psi)\right]\right\} \rho \,d\rho d\theta$$
(4.12)

Afin d'évaluer cette intégrale sur un disque de rayon unitaire, Nijboer et Zernike ont développé la fonction d'aberration en une série de polynômes orthogonaux appelés les polynômes circulaires de Zernike,

$$k\Phi(\rho,\theta) = \alpha_{00} + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{n=2}^{(n-m)/2} \alpha_{n0} R_n^0(\rho) + \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \alpha_{nm} R_n^m(\rho) \cos(m\theta)$$
(4.13)

où  $R^m_n(\rho)$  sont les polynômes de Zernike circulaires définis par

$$R_n^m(\rho) = \sum_{i=0}^{(n-m)/2} (-1)^i \frac{(n-i)!}{i! \left[\frac{1}{2}(n+m) - i\right]! \left[\frac{1}{2}(n-m) - i\right]!}$$
(4.14)

De la sorte, chaque type d'aberration peut être décrit et quantifié par le coefficient  $\alpha_{nm}$  correspondant dans le développement (4.14). Par exemple, l'aberration sphérique primaire correspond à n = 4 et m = 0, le coma correspond à n = 3 et m = 1, et l'astigmatisme correspond à n = 2 et m = 2. Les autres types d'aberrations primaires et secondaires sont tabulés dans les livres de Linfoot (1955) et Born et Wolf (1980).

Finalement, l'intensité au voisinage du point focal s'écrit :

$$I = \left(\frac{a^2}{\lambda z}\right)^2 \left| \int_0^{d/2a} \int_0^{2\pi} U(\rho, \theta, 0) \exp\left\{j \left[k\Phi(\rho, \theta) - \frac{u\rho^2}{2} - v\rho\cos(\theta - \psi)\right]\right\} \rho \, d\rho \, d\theta \right|^2$$
(4.15)

## 4.4 Résultats

#### 4.4.1 **Profils spatiaux**

L'ensemble des lasers peut être classé en deux grandes familles. Cette classification est basée sur les caractéristiques transverses de leurs faisceaux. On trouve les lasers monomodes transverses et les lasers multimodes.

Les lasers monomodes correspondent au mode électromagnétique transverse fondamental, *i.e.*, TEM<sub>00</sub>. La distribution spatiale d'intensité dans la direction perpendiculaire à la propagation du faisceau est gaussienne. La qualité de la distribution d'intensité est caractérisée à l'aide de

la grandeur  $M^2$  (Kogelnik et Li, 1966). Une valeur de  $M^2$  unitaire équivaut à une distribution gaussienne parfaite. La distribution d'intensité est toujours considérée comme gaussienne pour des valeurs de  $M^2$  allant jusque 1.2.

Les lasers multimodes, quant à eux, possèdent une distribution transverse autre que celle du mode électromagnétique fondamental. La structure multimode du faisceau apparaît clairement pour des valeurs de  $M^2$  supérieures à 1.3. La distribution d'intensité à travers le faisceau laser n'est plus gaussienne. Pour des lasers présentant une structure multimode d'ordre élevé, la distribution d'intensité transverse peut presque être rectangulaire.

Dans nos calculs, nous considérons les deux types de profils spatiaux transverses.

### 4.4.2 Les aberrations sphériques

En l'absence d'aberrations, la distribution de l'intensité présente un maximum au point focal de la lentille. De plus, cette distribution est symétrique de part et d'autre du plan focal. Cependant, en présence d'aberrations, ce n'est plus le cas.

Pour des lentilles présentant de faibles aberrations (moins d'une longueur d'onde) et pour des ondes planes et uniformes, l'intégrale (4.15) peut être résolue analytiquement (Zernike et Nijboer, 1949).

La fonction d'aberration pour une lentille mince est donnée par (Mahajan, 1991) :

$$\Phi(r,\theta;h') = a_s r^4 + a_c h' r^3 \cos\theta + a_a h'^2 r^2 \cos^2\theta + a_d h'^2 r^2$$
(4.16)

Les différents termes correspondent respectivement aux aberrations sphériques, de coma, d'astigmatisme et de distorsion du champ. r et  $\theta$  correspondent aux coordonnées du point considéré sur la lentille ; h' désigne la hauteur de l'image. On note donc que si l'on considère un faisceau laser parfaitement collimaté, seule l'aberration sphérique subsiste (h' = 0).

Pour une lentille de distance focale f, ne présentant que des aberrations sphériques primaires, la fonction d'aberration est donnée par l'expression suivante (Mahajan, 1991; Born et Wolf, 1980) :

$$\Phi(\rho) = -\frac{(a\rho)^4}{32n(n-1)f^3} \left[ \frac{n^3}{n-1} + (3n+2)(n-1)p^2 + \frac{n+2}{n-1}q^2 + 4(n+1)pq \right]$$
(4.17)

où p et q représentent respectivement le facteur de position et de forme. Ils sont donnés par :

$$p = (2f/S) - 1 \tag{4.18}$$

$$= 1 - 2f/S'$$
 (4.19)

et

$$q = \frac{R_2 + R_1}{R_2 - R_1} \tag{4.20}$$

où S, S',  $R_1$  et  $R_2$  désignent respectivement la distance axiale de la lentille à l'objet, la distance axiale de la lentille à l'image, le rayon de la face de la lentille se trouvant dans l'espace objet et le rayon de la face de la lentille se trouvant dans l'espace image.

Dans le cas d'une lentille biconvexe, avec  $R_1 = |R_2|$ , servant à focaliser un faisceau laser collimaté, on a p = -1 et q = 0. Pour une lentille plano-convexe on a p = -1, q valant -1 si  $R_1 = \infty$  et  $R_2 < 0$ , et +1 si  $R_1 > 0$  et  $R_2 = \infty$ .

Les aberrations sphériques ne dépendent que de la coordonnée radiale (équation 4.17). On peut donc simplifier la relation donnant la distribution de l'intensité dans le voisinage du point focal (équation 4.15). On obtient<sup>1</sup> :

$$I(u,v) = \left(\frac{2\pi a^2}{\lambda z}\right)^2 \left| \int_0^{d/2a} U(\rho) \exp\left\{j \left[k\Phi(\rho) - \frac{u\rho^2}{2}\right]\right\} J_0(v\rho)\rho \,d\rho\right|^2 \tag{4.21}$$

#### 4.4.3 Influence du rayon du faisceau laser sur les aberrations sphériques

 $\Phi_{\text{max}}$  est défini comme la plus grande distance entre le front d'onde sphérique convergent idéal et le front d'onde réel. Cette distance maximale correspond à  $\Phi(d/2a)$ . Les calculs sont faits en considérant l'indice de réfraction du uv grade synthetic fused silica pour les différentes longueurs d'onde (figure 4.3).



FIG. 4.3: Indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde du BK7 et de l'uv synthetic fused silica

La figure 4.4 montre la manière dont  $\Phi_{max}$  varie en fonction du rayon du faisceau et de la distance focale de la lentille pour les trois longueurs d'onde utilisées au cours de nos travaux (355, 532 et 1064 nm).

 ${}^{1}J_{0}(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{0}^{2\pi} \exp(jx\cos\phi) \, d\phi$ 



FIG. 4.4:  $\Phi_{\text{max}}$  en fonction de la focale, pour différentes longueurs d'onde (UV synthetic fused silica) – lentille plano-convexe (q = 1)

On ne note pas de grandes différences entre les courbes correspondant aux différentes longueurs d'ondes. Néanmoins, nous les donnons à titre indicatif puisqu'elles permettent d'un simple coup d'oeil d'avoir une idée de l'importance des aberrations sphériques pour les différents rayons du faisceau incident en fonction de la longueur d'onde.

### 4.4.4 Cas d'une onde plane d'amplitude constante

Nous allons tout d'abord traiter le cas d'une onde plane d'amplitude constante incidente sur la lentille. Il s'agit, comme nous l'avons déja indiqué, d'un cas représentatif des lasers multimodes.

Supposons que la puissance totale tombant sur cette lentille soit de 1 W. Dans ce cas, l'intégrale de Fresnel-Kirchhoff s'écrit :

$$I(u,v) = \frac{16\pi a^4}{\lambda^2 z^2 d^2} \left| \int_0^{d/2a} \exp\left\{ j \left[ k\Phi(\rho) - \frac{u\rho^2}{2} \right] \right\} J_0(v\rho)\rho \, d\rho \right|^2$$
(4.22)

La manière dont la distribution d'intensité, pour une puissance incidente totale constante, dépend du rayon du faisceau incident et donc de  $\Phi_{max}$ , est présenté à la figure 4.5.



FIG. 4.5: Intensité axiale, pour différents rayons incidents, lorsque les aberrations sont prises en compte.

Le faisceau se propage de la gauche vers la droite et  $\Delta z = 0$  correspond au point focal. Les calculs ont été effectués en considérant une lentille plano-convexe (p = -1, q = +1), de 50 mm de diamètre, et de 100 mm de distance focale. L'indice de réfraction de la lentille (uv grade synthetic fused silica) est de 1.47609 à 355 nm (figure 4.3).

La figure 4.5(a) correspond à  $\Phi_{max} = 0.04\lambda$ . Elle montre que dans le cas de faibles aberrations, la distribution d'intensité présente un maximum unique proche du point focal gaussien. L'énergie

est répartie sur une distance axiale de 2.0 mm. La figure 4.5(b) correspond à  $\Phi_{\text{max}} = 0.56\lambda$ . L'énergie se repartit sur une distance axiale de 0.5 mm. En revanche, le déplacement du maximum d'intensité vers la lentille est plus important (-0.15 mm). Les figures **??**(c-f) montrent la complexité croissante de la structure de l'intensité axiale, ainsi qu'un déplacement de plus en plus grand du volume focal dans la direction de la lentille. Ces figures correspondent à des  $\Phi_{\text{max}}$  de plus en plus importants. On a respectivement pour les figures 4.5(c), (d), (e) et (f), les valeurs  $9.03\lambda$ ,  $22.06\lambda$ ,  $45.74\lambda$  et  $144.56\lambda$ . Pour cette dernière valeur, on voit que l'énergie se distribue sur une distance de 5 mm le long de l'axe optique et que le déplacement du point focal est de -2.6 mm. Le volume focal augmente lorsque  $\Phi_{\text{max}}$  augmente. Typiquement, la distribution d'énergie dans le cas de la figure 4.5(f) est 2.5 fois plus large que celle de la figure 4.5(a) et 10 fois plus large que celle de la figure 4.5(b).

On note également que l'intensité la plus importante (figure 4.5(b) ne correspond pas au cas où le maximum de la fonction d'aberration est la plus faible. En effet, pour  $\Phi_{max} = 0.04\lambda$ , on obtient une intensité maximale de  $1.5 \times 10^{10}$  Wm<sup>-2</sup> (figure 4.5(a)), tandis que pour  $\Phi_{max} = 0.56\lambda$ , on a  $5.7 \times 10^{10}$  Wm<sup>-2</sup> (figure 4.5(b)). Le maximum d'intensité diminue ensuite au fur et à mesure qu'augmente le rayon du faisceau incident. On voit donc que toute tentative d'augmenter l'intensité en augmentant le diamètre du faisceau incident est voué à l'échec à partir d'une certaine valeur du rayon incident.

#### 4.4.5 Cas d'une onde plane d'amplitude gaussienne

Considérons le cas où l'amplitude de l'onde incidente est gaussienne : <sup>2</sup>

$$U(\rho) = \frac{2P^{1/2}}{d\sqrt{\pi(1-e^{-1})}} \exp\left(-\frac{2a^2}{d^2}\rho^2\right)$$
(4.23)

Dans cette expression, P désigne la puissance totale du faisceau laser en watts. On a pour l'intensité l'expression suivante :

$$I(u,v) = \frac{16\pi a^4}{\lambda^2 z^2 d^2 (1-e^{-1})} \left| \int_0^{d/2a} \exp\left(-\frac{4a^2}{d^2}\rho^2\right) \exp\left\{j\left[k\Phi(\rho) - \frac{u\rho^2}{2}\right]\right\} J_0(v\rho)\rho \,d\rho \right|^2$$
(4.24)

Les figures 4.6, 4.7 et 4.8 représentent les distributions d'intensité au voisinage du point focal dans un plan contenant l'axe optique du système. Il s'agit de la focalisation d'un faisceau d'amplitude gaussienne par une lentille plano-convexe en UV-grade fused silica de 75 mm de distance focale. Chacune des figures correspond à un rayon du faisceau incident différent. La figure 4.6(a) correspond à un rayon de 3 mm sans aberration. Les figures 4.6(b), 4.7(a) et (b), 4.8 correspondent respectivement à des rayons de 3, 7, 12,5 et 17,5 mm.

<sup>2</sup>La puissance totale est égale à  $2\pi a^2 \int_0^{d/2a} I_0 \exp(-4a^2\rho^2/d^2) \rho d\rho \Rightarrow I_0 = 4P / \left[\pi d^2(1-e^{-1})\right]$ 



(a)  $r = 3.0 \text{ mm}, \Phi = 0$ 



(b)  $r = 3.0 \text{ mm}, \Phi_{\text{max}} = 0.17 \lambda$ 

FIG. 4.6: Isophotes dans le cas d'un faisceau gaussien.



(a)  $r = 7.0 \text{ mm}, \Phi_{\text{max}} = 5.14 \lambda$ 



(b) r = 12.5 mm,  $\Phi_{\text{max}} = 52.29 \lambda$ 

FIG. 4.7: Isophotes dans le cas d'un faisceau gaussien.

La figure 4.6(a) est similaire aux résultats présentés par Linfoot et Wolf (1956). On note que le point focal gaussien et le principal maximum d'intensité coïncident. Les autres maxima sont situés sur l'axe optique de part et d'autre du point focal et sont de très faibles intensités. De plus, le premier zéro d'intensité dans le plan focal coïncide avec la valeur obtenue par la relation d'Airy. On note également que la structure des contours d'isointensités, tracée en traits continus blancs, est symétrique par rapport au plan focal.

La figure 4.6(b) correspond aux mêmes conditions que la figure 4.6(a) hormis la prise en compte cette fois des aberrations sphériques ( $\Phi_{max} = 0.17 \lambda$ ). Cette figure démontre clairement l'influence d'une très faible quantité d'aberrations sphériques. Le principal maxima de diffraction ne coïncide désormais plus avec le point focal gaussien. Ce maxima s'est déplacé dans la direction de la lentille d'environ 0.5 mm. De plus, les isocontours ne sont plus symétriques par rapport au plan focal. On ne note aucune différence quant à l'intensité maximale obtenue dans les deux cas.

La figure 4.7(a) ( $\Phi_{max} = 5.14 \lambda$ ) montre un écart très important de la symétrie de la distribution d'intensité par rapport au plan focal. Le déplacement du maxima principal de diffraction est plus important. On note l'apparition de maxima secondaires, dans la direction de la lentille, le long de l'axe optique. De plus, l'intensité atteint est plus importante que dans les cas précédents.



Finalement, les figures 4.7(b) ( $\Phi_{max} = 52.29 \lambda$ ) et 4.8 ( $\Phi_{max} = 200.86 \lambda$ ) montrent des distributions d'intensités complètement déformées. On voit apparaître des maxima secondaires le long de l'axe optique de plus en plus intenses. Les maxima principaux et secondaires se trouvent dans un rapport de 12 sur 8.



<sup>(</sup>b) Calculs effectués en considérant la contribution des aberrations sphériques

FIG. 4.9: Intensité axiale au voisinage du point focal pour une lentille plano-convexe

Les profils d'intensité axiale dans le cas de la convergence d'un faisceau laser par une lentille plano-convexe de 100 mm de focale sont présentés aux figures 4.9(a) et4.9(b). Comme le montre la figure 4.9(a), en l'absence d'aberrations, les pics d'intensités sont d'autant plus élevés que le nombre f/# est petit. La prise en compte de l'aberration sphérique montre que le nombre F optimal correspond à f/10. L'intensité pic n'est que très légèrement affectée par la prise en compte de ce type d'aberration : on passe de  $3.9 \times 10^{10}$  Wm<sup>-2</sup> ( $\Phi = 0$ ) à  $3.7 \times 10^{10}$  Wm<sup>-2</sup> ( $\Phi = 0.56\lambda\rho^4$ ). Pour f/20, l'énergie s'étend sur une distance axiale de 2 mm avant de se concentrer sur 1.1 mm pour f/10 (figure 4.9(b)). Pour les nombres f supérieurs à ce dernier, la distribution d'intensité s'étale le long de l'axe optique sur une distance de plus en plus grande : 1.9 mm et 2.5 mm respectivement pour f/5 et f/4.

La figure 4.10 présente le comportement qualitatif du seuil de claquage en fonction de la focale utilisée, pour un faisceau incident gaussien et pour différents rayons incidents (3, 5 et 10 mm). Ces courbes sont calculées à partir de l'équation 4.24, pour un rayon incident et une distance focale donnés, en supposant que l'intensité seuil ( $I_{seuil}$ ), du gaz considéré, est constante.



FIG. 4.10: Puissance seuil en fonction de la focale, pour différents rayons incidents.

Pour les différents rayons, on observe un comportement identique. La puissance seuil suit une loi du type  $P_{seuil} \propto f^2$  pour les grandes distances focales . À partir d'une certaine distance focale, dépendant du rayon incident, la puissance seuil en fonction de la distance focale s'écarte de cette loi. Les écarts deviennent importants pour une distance focale en deçà de 40, 80 et 210 mm respectivement pour les rayons incidents de 3, 5 et 10 mm. Ces trois paires de paramètres correspondent respectivement à  $\Phi_{max}$  valant 1.14, 1.10, 0.975. On voit donc que la relation  $P_{seuil}/f^2 = C^{te}$  n'est valable que lorsque la condition  $\Phi_{max} \leq 1$  est remplie.

Dans le cas d'un laser monomode, on montre que le rayon au point focal, w, est donné par :

$$w = \frac{\lambda}{\pi} \frac{f}{w_0} \tag{4.25}$$

où  $\lambda$ ,  $w_0$  et f correspondent respectivement à la longueur d'onde, au rayon du faisceau avant focalisation et à la distance focale de la lentille. On a donc pour un rayonnement à 355 nm et pour un rayon de 3 mm,  $w = 3.77 \times 10^{-5} f$ .

De plus, la puissance seuil,  $P_{\text{seuil}}$ , est reliée à l'énergie incidente seuil,  $E_{\text{seuil}}$ , par (voir le chapitre 6) :

$$P_{\text{seuil}} = 0.94 \, \frac{E_{\text{seuil}}}{\tau} \tag{4.26}$$

où  $\tau$  correspond à la durée de l'impulsion (largeur à mi-hauteur).

Les mesures des énergies seuils se sont faites à l'aide de quatre lentilles différentes : 50, 75, 100 et 150 mm. Ces quatre lentilles correspondent respectivement à un  $\Phi_{max}$  de 0.59, 0.17, 0.07 et 0.02.

L'incertitude relative sur la puissance seuil est donnée par :

$$\frac{\Delta P_{\text{seuil}}}{P_{\text{seuil}}} = \frac{\Delta E_{\text{seuil}}}{E_{\text{seuil}}} + \frac{\Delta \tau}{\tau}$$
(4.27)

Comme nous l'avons montré au chapitre 3, l'incertitude relative sur l'énergie seuil, pour un rayonnement de 355 nm, est de 9%. Le profil temporel de l'impulsion a été mesuré à l'aide du photodiode rapide (temps de montée  $\leq 200$  ps) et d'un oscilloscope Le Croy possédant une bande passante de 1 GHz et une fréquence d'échantillonnage de 16 GHz. Un exemple représentatif de signal acquis est présenté à la figure 4.11. Les croix représentent les points de mesures et la ligne continue rouge correspond à la courbe d'ajustement. Il s'agit d'une fonction gaussienne de la forme  $A = A_0 \exp \left[-(t - t_0/\tau)^2\right]$ . Dans le cas présenté sur cette figure, on trouve respectivement pour  $A_0$ ,  $t_0$  et  $\tau$ , les valeurs 5.7, 4.57 et 4.71; ce qui donne une largeur à mi-hauteur de 7.8 ns. Sur une population de 1000 impulsions, on trouve des valeurs de  $\tau$  comprises entre 7.6 et 8.0. On a donc  $\tau = 7.8 \pm 2.6\%$ . Finalement, l'incertitude relative totale sur la puissance seuil est de 12%.



FIG. 4.11: Mesure de la structure temporelle de l'impulsion laser.

À la figure 4.12, on a porté  $\ln P_{\text{seuil}}$  en fonction de  $\ln f$ . On voit que la relation les liant est linéaire, c'est-à-dire que  $P_{\text{seuil}} \propto f^n$ , où n est une constante. Un ajustement par la méthode des moindres carrés donne pour n une valeur de 1.7 (courbe en traits continus noirs de la figure 4.12).



FIG. 4.12: Mesure de la puissance seuil en fonction de la focale.

Une estimation de l'incertitude sur la valeur de n est obtenue en considérant les droites de pentes extrêmes (courbe en traits interrompus verts et bleus de la figure 4.12). On a donc  $n = 1.6 \pm 0.2$ , valeur à rapprocher de la valeur théorique 2. En admettant que la puissance seuil présente une dépendance de la distance focale en  $f^2$ , cela implique que pour un gaz à une pression donnée l'irradiance seuil,  $I_{seuil}$ , est indépendant de f.

L'irradiance seuil peut être déterminée en considérant l'intersection de la droite d'ajustement (trait continu noir sur la figure 4.12) avec la droite f = 1. En effet,

$$\ln P_{\text{seuil}} = 2\ln f + \ln \frac{I_{\text{seuil}}\lambda^2}{\pi w_0^2}$$
(4.28)

On a  $(I_{\rm seuil}\lambda^2)/(\pi w_0^2)=7.558\times 10^7,$  avec une incertitude donnée par :

$$\frac{\Delta I_{\text{seuil}}}{I_{\text{seuil}}} = 2\frac{\Delta\lambda}{\lambda} + 2\frac{\Delta w_0}{w_0} + \frac{\Delta C}{C}$$
(4.29)

où C correspond à l'argument du logarithme du deuxième terme de l'équation (4.28) déterminé par la méthode des moindres carrées.

Le premier terme du membre de droite vaut 0.2/355, c'est-à-dire 0.05%. Le deuxième terme vaut  $2 \times 0.5/6$ , c'est-à-dire 16.7%. Finalement, pour le dernier terme on trouve, étant donné que l'incertitude absolue sur  $\ln C$  est de 0.137, une incertitude relative de 13.7%. On aboutit à une incertitude relative de 30% sur la valeur de l'irradiance seuil. Cette dernière vaut donc :

$$I_{\text{seuil}} = (1.70 \pm 0.50) \times 10^{12} \text{ Wcm}^{-2}$$

Cette étude montre le besoin de prendre en compte l'influence de l'action de l'aberration sphérique primaire. C'est d'autant plus vrai lorsque l'on travaille avec des faisceaux de grands diamètres et/ou lorsqu'on utilise des lentilles avec de faibles distances focales. Il est d'ailleurs souvent préférable de travailler avec des lentilles asphériques du type de celles utilisées par Champetier et al. (1968). Autrement, pour pouvoir interpréter plus facilement les mesures, la condition  $\Phi_{\text{max}} \leq \lambda$  doit être vérifiée. En utilisant la relation (4.17), on voit que cette condition peut s'écrire :

$$\frac{f^3}{w^4} \ge \frac{1}{32n(n-1)\lambda} \left[ \frac{n^3}{n-1} + (3n+2)(n-1)p^2 + \frac{n+2}{n-1}q^2 + 4(n+1)pq \right]$$
(4.30)

Le tableau 4.1 donne les focales minimales à utiliser lorsque l'on travaille avec des lentilles en UV grade fused silica, avec un faisceau laser à 355 nm, de 6 mm de diamètre.

Tune de lentille		$\lambda$ (nm)		
Type de leitime	355	532	1064	
Lentille plano-convexe : face courbée dans l'espace objet	42	37	30	
Lentille plano-convexe : face courbée dans l'espace image		58	46	
Lentille bi-convexe		41	33	

TAB. 4.1: Focales minimales (mm) à utiliser pour avoir  $\Phi_{\max} \leq \lambda$ 

## 4.5 Montage expérimental

Nous clôturons ce chapitre en illustrant, à l'aide de trois montages expérimentaux élémentaires, l'effet des aberrations sur la valeur du seuil de claquage de l'air.

# 4.5.1 Influence du rayon du faisceau incident sur le seuil de claquage de l'air



FIG. 4.13: Montage expérimental utilisé pour étudier l'effet du rayon incident sur la mesure du seuil de claquage

Le premier montage est présenté à la figure 4.13. Le laser utilisé pour ces expériences est un laser Nd :YAG (CONTINUUM) opérant à 355 nm et à une fréquence de tir de 10 Hz. Le faisceau se propage de la gauche vers la droite. Il traverse d'abord un échantillonneur optique qui permet de recueillir une fraction de l'énergie ( $\sim 6\%$ ) afin d'en déduire la valeur de l'énergie incidente sur le système de convergence. Le reste de l'énergie ( $\sim 94\%$ ) arrive sur une première lentille divergente (f = -75 mm) pour être divergé, avant d'être focalisé par une deuxième lentille convergente (f = +75mm) placée à une distance d de la première. Le faisceau incident possède un diamètre de 6 mm, et donc le diamètre du faisceau arrivant sur la deuxième lentille, D, en fonction de la distance d est donné par :

$$D = 6 + \frac{d}{12.5} \tag{4.31}$$

L'énergie du faisceau incident se règle à l'aide d'une paire de polariseurs (voir chapitre 3). Le seuil de claquage correspond à l'énergie pour laquelle l'étincelle apparaît. La figure 4.14 présente la mesure de l'énergie seuil en fonction du rayon incident sur la deuxième lentille. On voit que le seuil de claquage diminue lorsque l'on augmente le rayon incident. Cela reste vrai jusqu'à une certaine valeur du rayon incident valant  $\sim 9 \text{ mm}$ . Au delà de cette valeur, l'énergie seuil augmente. Pour cette valeur critique du rayon incident, la contribution de l'aberration sphérique devient trop importante et la décroissance du rayon au point focal avec le rayon incident n'est plus suffisante pour compenser l'effet croissant de l'aberration sphérique avec l'augmentation du rayon incident. Lorsque l'on passe d'un rayon de 6 mm à un rayon de 9 mm, le seuil de claquage est divisé par 2. À partir du rayon critique, le seuil de claquage semble augmenter linéairement en fonction du rayon incident pour atteindre une valeur de 7.5 mJ pour un rayon de 23 mm.



FIG. 4.14: Énergie seuil de claquage de l'air en fonction du rayon incident.

# 4.5.2 Influence de l'angle d'incidence du faisceau sur le seuil de claquage de l'air

Le montage expérimental est pratiquement le même que celui de la figure 4.13. Pour cette manipulation, il n'y a plus de lentille divergente et la lentille convergente est montée sur une rotation de précision.



FIG. 4.15: Énergie seuil de claquage de l'air en fonction de l'angle d'incidence du faisceau laser.

Les résultats sont présentés à la figure 4.15. Cette figure donne l'énergie seuil de claquage en fonction de l'angle d'incidence (en degré) sur la lentille. On peut faire plusieurs observations. Tout d'abord, le seuil de claquage est symétrique par rapport à l'incidence normale. Ensuite, l'énergie seuil reste à peu près constante pour des angles variant de -8 à 8 degrés. En dehors de cet intervalle, le seuil de claquage dépend fortement de l'angle d'incidence. L'énergie seuil peut être multipliée par un facteur 20 pour des angles proches de 19 degrés.

#### 4.5.3 Influence de la position du faisceau sur le seuil de claquage de l'air

Dans le dernier montage, la rotation sur laquelle la lentille de convergence est posée, est remplacée par une translation de précision. Cette modification nous permet de déplacer la lentille perpendiculairement par rapport à l'axe optique du système.



FIG. 4.16: Énergie seuil de claquage de l'air en fonction de la position du faisceau incident sur la lentille

Les résultats sont présentées à la figure 4.16. On a porté le seuil de claquage en fonction de la position du faisceau incident sur la lentille de convergence. On note que pour des déplacements de moins de trois mm le seuil de claquage est presque constant. Au-delà de cette valeur l'énergie seuil augmente considérablement pour atteindre une valeur de 130 mJ pour un déplacement transverse de 11 mm.

## 4.6 Conclusions

Les isophotes que nous avons présentées aux figures 4.6 et 4.7 démontrent le rôle important joué par les aberrations sphériques primaires sur la détermination de la distribution d'intensité au point focal. Ces courbes permettent de connaître la valeur absolue de l'irradiance en n'importe quel point. Elles montrent que lorsque l'intensité nécessaire est très importante, l'utilisation de lentilles ayant une faible fonction d'aberration se révèle être nécessaire. Dans ce cas, la région focale est bien localisée et la distribution d'intensité est symétrique par rapport au plan focal. Les maxima secondaires sur et en dehors de l'axe sont soit inexistants, soit possèdent des intensités complètement négligeables.

À côté de cela, les lentilles possèdant des aberrations plus importantes, présentent une distribution d'intensité complètement asymétrique. La structure est rendue plus compliquée par l'ampleur de la région dans laquelle les maxima secondaires deviennent importants.

Cette étude montre également que toute tentative pour augmenter l'intensité du faisceau laser focalisé, en augmentant le diamètre du faisceau incident, se révèle infructueuse au-delà de la limite définie par  $\Phi_{max} \sim \lambda$ . Lorsque les aberrations sont plus importantes, l'énergie se distribue dans un volume focal plus grand. Dans le cas des lasers monomodes, on aboutit à une distribution d'intensité axiale presque constante. L'expression communément utilisée pour calculer la longueur de la région focale,  $l = 2(\sqrt{2} - 1)f^2\theta/D$ , n'est applicable que lorsque  $\Phi_{\max}$  est très petit. Lorsque  $\Phi_{\max}$  est plus grand qu'une fois la longueur d'onde, la longueur l augmente avec le diamètre du faisceau incident, D, au lieu de diminuer en 1/D. On aboutit à des comportements identiques lorsqu'on étudie le comportement du rayon de focalisation. Une conséquence très importante de cette dernière remarque est que lorsque  $\Phi_{\max} \ge \lambda$  l'expression usuellement utilisée conduit à une surestimation de l'irradiance au point focal en sous- estimant la section du faisceau focalisé.

En plus de préciser le type de rayonnement et la sa durée, nous avons montré qu'il est également nécessaire de donner les aberrations du système optique utilisé.

## CHAPITRE 5

#### CALCUL DU SEUIL DE CLAQUAGE

## 5.1 Modèle

L'intérêt croissant dans les phénomènes d'étincelles laser se traduit par les nombreuses études expérimentales entreprises dans ce domaine. Ces études expérimentales ont montré que l'intensité seuil de claquage pour a molécule d'azote n'augmente pas systématiquement lorsque la longueur d'onde du rayonnement augmente, mais présente des pics dans le domaine ultra-violet (335 nm). Des tentatives pour interpréter les résultats expérimentaux de Sircar et al. (1996), en adoptant un modèle simplifié tenant compte de l'effet combiné de l'ionisation multiphotonique et de l'ionisation par cascade et en négligeant les pertes d'électrons, ont été faites (Gamal et Abdel Harith, 1981). Bien qu'un bon accord fut trouvé pour les longueurs d'onde de 532 nm et de 1064 nm, les valeurs d'intensités seuils obtenues pour 266 nm et 355 nm présentaient des divergences importantes par rapport aux mesures expérimentales.

Les seuils de claquage des gaz peuvent être calculés, en principe, en intégrant l'équation de continuité (5.1) par rapport au temps et aux variables spatiales et en requérant qu'un certain degré d'ionisation soit atteint avant la fin de l'impulsion.

$$\frac{\partial n}{\partial t}(\vec{r},t) = \sum_{i} a_i F^i + (\nu - \nu_a)n + D\nabla^2 n - Rn^2$$
(5.1)

Il s'agit là d'une tâche assez complexe étant donné que les fréquences, et le ou les coefficients de diffusion doivent être calculés à partir de l'équation de Boltzmann, ce qui exige la connaissance de nombreuses sections efficaces inélastiques souvent mal connues. De plus, seul le taux d'ionisation multiphotonique de quelques gaz, à des longueurs d'onde spécifiques, est mesuré. C'est pourquoi nous avons choisi d'aborder le problème d'un point de vue plus phénoménologique.

#### 5.1.1 Terme de transition multiphotonique

La probabilité pour qu'un électron soit présent, dans le tout petit volume qu'est le volume de focalisation avant la décharge, est pratiquement négligeable. Les électrons primaires de la décharge doivent donc être produits par le flux laser lui-même. Les photons du laser ayant une énergie très inférieure à l'énergie d'ionisation des atomes du gaz, l'effet photoélectrique simple est énergétiquement impossible. Compte tenu des très fortes valeurs du flux lumineux, on est conduit à admettre que des transitions multiphotoniques se produisent. L'électron initial, à partir duquel le phénomène de cascade peut se développer, peut facilement être généré par ionisation multiphotonique du gaz, si la longueur d'onde du rayonnement est suffisamment courte et la puissance suffisante. Par exemple, considérons le cas de l'azote, à pression atmosphérique, irradié par un rayonnement de longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm. Le flux d'énergie lumineuse seuil

nécessaire pour obtenir le claquage est de  $2 \cdot 10^{11}$  Wcm<sup>-2</sup>, pour une impulsion de 15 ns (Rosen et Weyl, 1987). L'ionisation multiphotonique de la molécule d'azote requiert l'absorption de sept photons. La section efficace d'ionisation multiphotonique pour un faisceau incohérent est de  $\sigma = 9 \cdot 10^{-75}$  (Wcm<sup>-2</sup>)<sup>-7</sup>s<sup>-1</sup> (Rosen et Weyl, 1987). La densité d'électron produit pendant 10 ns vaut donc  $9 \cdot 10^{-75} \times (2 \cdot 10^{11})^7 \times 10^{-8}$   $n = 1.2 \cdot 10^{-3}$  n, où n représente la densité volumique du nombre de molécules d'azote. À la pression atmosphérique,  $n = 2 \cdot 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>et on peut donc s'attendre à trouver au moins un électron produit par ionisation multiphotonique si le volume de focalisation dépasse  $4.3 \cdot 10^{-17}$  cm<sup>3</sup>. La présence d'impuretés présentant de faibles potentiels d'ionisation, telles que les vapeurs organiques, peuvent également contribuer significativement à la génération d'électrons initiaux par ionisation multiphotonique.

Le problème de l'électron initial devient plus sérieux aux grandes longueurs d'onde. Le seuil de claquage par avalanche est beaucoup plus bas et les transitions multiphotoniques ne peuvent plus fournir le moindre électron. Des expériences menées dans l'air à une longueur d'onde de 10.6 μm ont montré que le claquage devenait un évènement sporadique. La probabilité d'initier un claquage augmente en fonction du flux lumineux de 0 à 100%. La définition du claquage est généralement prise comme étant la densité de flux lumineux au-dessus de laquelle le claquage du gaz se produirait dans cinquante pour cent des cas (Hill et al., 1971; Chan et al., 1973). On a également découvert que la présence de particules coloïdales en suspension dans le volume de focalisation pouvait également initier le claquage (Lencioni, 1973; Canavan et Nielsen, 1973). Dans des conditions normales, la concentration de particules plus grandes que 0.1  $\mu m$  peut excéder 10<sup>4</sup> particules/cm<sup>3</sup>. Ces particules s'échauffent sous le rayonnement du laser et peuvent donc ainsi fournir des électrons par émission thermoïonique. Afin d'éliminer le caractère sporadique du claquage, des expériences ont été menées dans un milieu gazeux partiellement préionisé. L'impulsion laser était déclenchée un certain temps  $\Delta t$ , après qu'une décharge, dont la fonction était d'ioniser le gaz, ait traversé le gaz (Chalmeton, 1969; Smith, 1970; Brown et Smith, 1972; Chan et al., 1973). En supposant un taux de recombinaison dissociative à deux corps de  $10^{-7}$  cm<sup>3</sup>s<sup>-1</sup> pour N<sub>2</sub><sup>+</sup>, on peut facilement calculer la décroissance de la concentration d'électrons :

$$\frac{dn_e}{dt} = -10^{-7} n_e^2 \tag{5.2}$$

Ce qui donne, en supposant que  $n_e \ll n_{e0}$  :

$$n_e = 10^7 \frac{n_{e0} - n_e}{n_{e0}\Delta t} = \frac{10^7}{\Delta t}$$
(5.3)

où  $n_{e0}$  représente la concentration initiale en électrons. Cette dernière équation montre que si  $\Delta t < 10^{-3}$ s,  $n_e$  est plus grand que  $10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, cela représentera une concentration suffisamment élevée pour fournir les électrons primaires dans le volume focal.

Des expériences menées par Yablonovich (1974; 1975) à une longueur d'onde de 10.6  $\mu$ m ont démontré, de manière convaincante, l'influence des électrons primaires sur le seuil de claquage. Il a notamment montré que ce seuil pouvait augmenter de quelques ordres de grandeur lorsque l'on élimine les impuretés et autres particules du volume de focalisation. En filtrant toutes les
Pour des intensités laser suffisamment élevées, le champ électrique peut être suffisamment intense pour arracher un électron périphérique par effet tunnel. Un traitement semi-classique de la photoionisation par effet tunnel dans le champ d'un laser a été développé, en 1964, par Keldysh.

et d'impuretés organiques présentant des potentiels d'ionisation faibles.

Il est à noter que même dans un milieu dépourvu de poussières et d'impuretés, on peut toujours s'attendre à un faible taux d'ionisation dû aux rayonnements cosmiques et à la radioactivité naturelle. La concentration en ions dans l'atmosphère, au niveau de la mer, est de l'odre de  $10^2$  à  $10^3$  cm<sup>-3</sup>. Il n'existe néanmoins pas d'électrons libres, étant donné qu'une fois générés ceux-ci s'attachent rapidement aux molécules d'oxygène, dans une collision à trois corps, pour former des ions  $O_2^-$  qui présentent une énergie de liaison de 0.36 eV (Huber et Herzberg, 1979). Le temps de vie de  $O_2^-$  est de  $10^{-7}$  s pour une densité d'énergie de  $2 \cdot 10^9$  Wcm<sup>-2</sup>. Puisque le seuil de claquage pour une longue impulsion de l'air à 10.6 µm est de  $3 \cdot 10^9$  Wcm<sup>-2</sup> (Kroll et Watson, 1972; Canavan et al., 1972; Brown et Smith, 1972; Lencioni, 1973), et peut être même plus faible pour les plus courtes longueurs d'onde, il est correct de traiter les électrons liés comme libres pour toutes les expériences ménées avec des rayonnements laser de longueurs d'onde plus petites que 10.6 µm.

Le taux d'ionisation par transition multiphotonique est proportionnel à  $I^i$ , où *i* représente le nombre de photons devant être absorbés simultanément pour ioniser la particule *i* du gaz (*i.e.*, m = partie entière de  $E_I/h\nu + 1$ ). Le coefficient  $a_i$  est obtenu soit par calcul soit par mesure à de très faibles densités.

Les calculs et travaux théoriques pionniers sur l'ionisation multiphotonique ont été entrepris à la moitié des années soixante par Keldysh (1965), Bebb et Gold (1965), Morton (1967), Voronov (1967) et Gontier et Trahin (1968). La plupart des traitements théoriques utilisent la théorie des perturbations à l'ordre *i* afin de calculer les éléments de matrice  $\langle i|[(e/c)\mathbf{p}\cdot\mathbf{A}]^i|f\rangle$  de cette transition entre l'état initial  $\langle i|$  (lié) et l'état final  $|f\rangle$  (libre), avec  $\mathbf{A}$  représentant le potentiel vecteur du champ électromagnétique associé au faisceau laser. Les calculs deviennent très vite compliqués et longs lorsque *i* augmente, des sommes multiples sur des états intermédiaires devant être calculées.

Bebb et Gold (1965) utilisent des approximations pour le calcul des sommes sur les différents états et ont traité séparément les états intermédiaires ayant des énergies proches des énergies résonnantes proportionnelles à l'énergie des photons, *i.e.*,  $\epsilon_j \simeq kh\nu$  (k < m) Ceci conduit à une optimisation du taux d'ionisation photonique au voisinage de la résonance, où l'ordre du processus passe de m à k.

Une autre expression du taux d'ionisation multiphotonique a été obtenue par Morgan (1975). A cette fin, il a résolu un système d'équations différentielles couplées pour les états virtuels peuplés par l'absorption de k photons. Ces états sont supposés se désexciter spontanément avec

un temps de vie  $\tau_k$  donné par le principe d'incertitude d'Heinsenberg. En supposant toutes les sections efficaces d'absorption,  $\sigma_k$ , égales, il trouve

$$W_m = \left(\frac{\sigma}{\hbar\omega^2}\right)^m \frac{2\pi\omega}{(m-1)!} \tag{5.4}$$

Keldysh (1965) a utilisé une approche non-perturbative pour étudier le cas de l'atome d'hydrogène dans un champ de radiation très intense. La relation qu'il obtient pour le taux d'ionisation est la suivante :

$$w_{0} = \omega \sqrt{\frac{2E_{I}}{\hbar\omega}} \left(\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^{2}}}\right)^{3/2} S\left(\gamma, \frac{\tilde{E}_{I}}{\hbar\omega}\right) \exp\left[-\frac{2\tilde{E}_{I}}{\hbar\omega} \left(\sinh^{-1}\gamma - \gamma \frac{\sqrt{1+\gamma^{2}}}{1+2\gamma^{2}}\right)\right]$$
(5.5)

où  $S(\gamma, \tilde{E}_I/\hbar\omega)$  est une fonction qui varie lentement par rapport à une fonction exponentielle,  $\tilde{E}_I$  est le potentiel d'ionisation efficace valant par définition  $E_I(1 + 1/\gamma^2)$ ,  $\gamma$  est un paramètre qui vaut  $(\omega^2 \tilde{E}_I m_e/e^2 E^2)^{1/2}$  et  $\Phi(x) = \int_0^y \exp(y^2 - x^2) dy$  correspond à l'intégrale de Dawson (Abramowitz et Stegun, 1972).

Pour les longueurs d'onde utilisées dans notre travail, on trouve des fréquences angulaires de  $5.3 \times 10^{15}$ ,  $3.5 \times 10^{15}$  et  $1.8 \times 10^{15}$  respectivement pour 355 nm, 532 nm et 1064 nm. De manière plus générale, pour la plupart des atomes et molécules on trouve des potentiels d'ionisation compris entre 5 et 25 eV. De plus, l'ordre de grandeur du champ électrique rencontré dans les problèmes d'étincelle laser est de  $10^7$  V cm<sup>-1</sup>. Par exemple, si on considére un potentiel d'ionisation de 15 eV, on obtient finalement pour  $\gamma$  une valeur de l'ordre de  $2 \times 10^{15} \cdot 1.32 \times 10^{-14} \sim 26 \gg 1$ . Dans ce cas, le terme d'ordre zéro devient prépondérant dans le développement de  $S(\gamma, \tilde{E}_I/\hbar\omega)$  (éq. 5.7).

Dans le système MKS, le champ électrique efficace, E, est lié à la densité de puissance crête, I, par

$$E^2 = \frac{I}{cn\varepsilon_0} \tag{5.6}$$

On aboutit finalement à l'expression suivante pour le taux d'ionisation,

$$w_0 = \sqrt{2}\,\omega \left(\frac{E_I}{\hbar\omega}\right)^{3/2} \left(\frac{e^2 I}{4m_e n\varepsilon_0 c\omega^2 E_I}\right)^k \exp\left(2k - \frac{\tilde{E}_I}{\hbar\omega}\right) \Phi\left(\sqrt{2k - 2\frac{\tilde{E}_I}{\hbar\omega}}\right) \tag{5.7}$$

où k représente le plus petit nombre entier de photons dont la somme des énergies dépasse le potentiel d'ionisation.

#### 5.1.2 Phénomène de cascade

Les électrons primaires ont à leur naissance une énergie très faible. Ils gagnent cependant de l'énergie lorsqu'ils sont soumis à un flux lumineux. Les mécanismes d'échauffement des électrons sont :

- les collisions élastiques photon-életrons (effet Compton);

– les collisions inélastiques photon-électron-3<sup>ème</sup> particule (bremsstrahlung inverse).

Ces deux effets peuvent a priori être soit à un photon soit à plusieurs photons. L'effet Compton est généralement négligeable comme nous allons le montrer. En effet, on peut monter que l'effet dominant est dû à un terme non linéaire d'émission induite. On obtient ainsi,

$$\frac{d}{dt}(kT_e)^{3/2} = \frac{1}{2}r_e^2 \frac{\lambda^3}{\sqrt{m_e}} \left(\frac{Fh\nu}{c}\right)^2$$
(5.8)

où  $r_e$  est le rayon classique de l'électron.

a /a

D'autre part, l'analyse des collisions inélastiques photon-électron donne en considérant  $\nu_1$  constant, la formule suivante,

$$\frac{d}{dt}(kT_e)^{3/2} = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{Fh\nu}{c}\right) \frac{e^2\nu_1}{m\omega^2}$$
(5.9)

En rapprochant ces deux derniers résultats on peut écrire :

$$\frac{\frac{d}{dt}(kT_e)_{\text{Compton}}^{3/2}}{\frac{d}{dt}(kT_e)_{\text{bremsstrahlung}}^{3/2}} = \frac{\pi}{2} \frac{h}{\sqrt{3m_e c^2 kT_e}} r_e \frac{c}{\nu_{\text{e-n}}} F \simeq 4 \times 10^{-20} \frac{F}{\nu_{\text{e-n}}\sqrt{kT_e}}$$
(5.10)

Typiquement,  $kT_e$  est de l'ordre de 10 eV, le flux de photons, F, est de l'ordre de  $10^{29}$  photons cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>et  $\nu_{e_n}$  est de l'ordre de  $10^{12}$  s<sup>-1</sup>. Ce qui donne un rapport de  $10^{-3}$ . On en conclut que l'effet Compton ne peut jouer de rôle prépondérant qu'aux basses pressions et pour des flux photoniques très élevés.

L'effet dominant dans notre cas est donc le bremsstrahlung inverse. Cet échauffement est dû à l'action combinée du champ électrique et des collisions et s'exprime par la relation (Raizer, 1997) :

$$\frac{du}{dt} = \frac{e^2}{m_e} \frac{\nu_{\rm e-n}}{\omega^2 + \nu_{\rm e-n}^2} E^2$$
(5.11)

où u est l'énergie moyenne des électrons, E l'amplitude du champ efficace,  $\omega$  sa fréquence angulaire et  $\nu_1$  la fréquence de collision électron-neutre. Dans le cas d'un gaz homogène, la fréquence de collision électron-neutre moyenne vaut  $nu\sigma_{e^n}$ . Pour l'air à la température ambiante  $\sigma_{e^n} \sim 10^{-15}$  cm<sup>2</sup>. De plus, proche du seuil de claquage, l'énergie électronique moyenne est d'à peu près le tiers, voire le quart de l'énergie d'ionisation du gaz, *i.e.*, 3 à 6 eV. Nous obtenons donc pour la fréquence de collision,  $\nu_{e^n} \sim 2 \times 10^{12} p$ , avec p correspondant à la pression en atmosphère. On a donc  $\nu_{e^n}^2 \ll \omega^2$  et on trouve un taux d'échauffement qui varie en  $\lambda^2$  (eq. 5.11).

Négligeons pour l'instant les pertes par collisions et considèrons de plus que tous les électrons dont l'énergie cinétique atteint l'énergie d'ionisation,  $E_I$ , produisent rapidement un nouvel électron libre. Par unité de temps, un électron gagne une énergie du/dt donnée par la relation (5.11), c'est-à-dire que le temps nécessaire à l'électron pour atteindre une énergie égale au potentiel d'ionisation est donné par  $E_I/(du/dt)$ . On obtient une fréquence d'ionisation par collision électronique donnée par  $(du/dt)/E_I$ . Le taux d'ionisation est donc donné par :

$$\nu_{\rm cas} = \left(\frac{\nu_{\rm e-n}}{\omega^2 + \nu_{\rm e-n}^2}\right) \left(\frac{e^2 E^2}{m_e E_I}\right) \tag{5.12}$$

En utilisant la relation (5.6), on obtient finalement pour le taux d'ionisation en fonction de l'intensité I:

$$\nu_{\rm cas} = \left(\frac{\nu_{\rm e-n}}{\omega^2 + \nu_{\rm e-n}^2}\right) \left(\frac{e^2}{cn\varepsilon_0 m_e E_I}\right) I(t)$$
(5.13)

### 5.1.3 Terme de perte par collision élastique

Une collision élastique est un processus au cours duquel la structure interne (l'énergie potentiel) des particules entrant en collision ne change pas. Ce processus est représenté par la réaction suivante :

$$A + B \longrightarrow A + B$$

avec

$$E_T = K_A + V_A + K_B + V_B = K'_A + V'_A + K'_B + V'_B$$

$$V_A = V'_A$$
 et  $V_B = V'_B$ 

où  $K_A$  et  $V_A$  représentent respectivement les énergies cinétique et potentielle de la particule A avant la collision. Ces énergies deviennent  $K'_A$  et  $V'_A$  suite à la collision. Les grandeurs  $K_B$ ,  $V_B$ ,  $K'_B$  et  $V'_B$  sont similaires mais concernent la particule B.

Un électron qui entre en collision avec un atome ou une molécule peut donc perdre de l'énergie au profit de l'énergie cinétique de l'autre particule par des collisions élastiques. On montre que le taux de perte d'énergie par collision élastique est donné par la relation suivante :

$$\frac{du}{dt} = -2\frac{m_e}{M}\frac{\omega^2\nu_{\text{e-n}}}{\omega^2 + \nu_{\text{e-n}}^2}u$$
(5.14)

Ce qui donne, en suivant le même raisonnement qu'à la section précédente, un terme de contribution négative à la fréquence d'ionisation (éq. 5.13), donné par

$$\nu_{\rm ce} = -2 \frac{m_e}{ME_I} \frac{\omega^2 \nu_{\rm e-n}}{\omega^2 + \nu_{\rm en}^2} u \tag{5.15}$$

Cette expression peut encore être simplifiée si on suppose que l'énergie moyenne des électrons vaut  $E_I/2$  pour un ensemble d'électrons quasi-libres possédant des énergies cinétiques comprises entre 0 et  $E_I$ . On obtient finalement :

$$\nu_{\rm ce} = -\frac{m_e}{M} \frac{\omega^2 \nu_{\rm en}}{\omega^2 + \nu_{\rm en}^2} \tag{5.16}$$

#### 5.1.4 Terme de diffusion

Les électrons qui sortent du volume focal ne sont plus soumis au flux du laser; ils refroidissent rapidement par collision et ne participent dès lors plus au phénomène de cascade; ils peuvent donc être considérés comme perdus. La diffusion est libre au début de la cascade et ensuite ambipolaire.

En général, on peut considérer, comme l'ont proposé Haught et al. (1966), que le volume focal est de forme cylindrique de rayon, r, et de longueur axiale, l, donnés par,

$$r = \frac{1}{2}f\theta \tag{5.17}$$

$$l = \frac{\sqrt{2} - 1}{2} \frac{f^2 \theta}{R}$$
(5.18)

où R et  $\theta$  correspondent repectivement au rayon et à la divergence du faisceau tombant sur la lentille de distance focale f.

MacDonald (1966) a montré que dans le cas d'une cavité cylindrique de longueur l et de rayon r, la longueur caractéristique de diffusion  $\Lambda$  est donnée par

$$\frac{1}{\Lambda_d^2} = \left(\frac{\pi}{l}\right)^2 + \left(\frac{2.4}{r}\right)^2 \tag{5.19}$$

Le taux de perte d'électrons du volume focal par diffusion est donné par (Smith et Meyerand, 1976; Kroll et Watson, 1972) :

$$\nu_{\rm dif} = \frac{D}{\Lambda^2} \tag{5.20}$$

D'autre part, le coefficient de diffusion est donné quant à lui par :

$$D = \frac{2u}{3m_e\nu_{en}} = \frac{E_I}{3m_e\nu_{en}}$$
(5.21)

Et finalement, on obtient pour le taux de perte d'électrons par diffusion l'expression suivante :

$$\nu_{\rm dif} = \frac{E_I}{3m_e\nu_{\rm e-n}} \left[ \left(\frac{\pi}{l}\right)^2 + \left(\frac{2.4}{r}\right)^2 \right]$$
(5.22)

#### 5.1.5 Terme de perte par collision inélastique

Dans le cas des collisions inélastiques, il y a un changement dans l'état interne des atomes ou des molécules participant aux collisions aux dépend de l'énergie cinétique des électrons. La collision  $A + B \longrightarrow A + B^*$  est un exemple de collision inélastique. L'étoile sur *B* indique que cette particule se trouve dans un état excité, c'est-à-dire que  $V'_B$  est plus grand que  $V_B$ . On peut se référer par exemple à l'ouvrage de Hasted (1964) pour une description exhaustive des collisions non élastiques faisant intervenir des atomes.



- 1. Production des électrons primaires.
- 2. Échauffement par bremsstrahlung.
- 3. Ionisation par choc électronique.
- 4. Excitation par choc électronique.
- 5. Ionisation photonique des atomes/molécules excités.
- 6. Ionisation par choc électronique des atomes/molécules excités.
- 7. Pertes par diffusion.
- 8. Refroidissement des électrons par collisions élastiques.

FIG. 5.1: Schéma de l'ensemble des processus intervenant dans le claquage

Le changement de la structure interne peut concerner, lorsqu'il s'agit d'atomes, différents états électroniques. Dans le cas de molécules, il faut également tenir compte de l'excitation des niveaux vibrationnels et rotationnels. Le calcul exacte des termes de pertes liés à ce mécanisme est très difficile, étant donné la méconnaissance des taux d'excitation et de désexcitation des

différents niveaux énergétiques. Le problème est également compliqué par le fait que l'excitation d'un atome ou d'une molécule ne représente pas forcément un terme de perte. Si la particule reste excitée suffisamment longtemps et qu'elle reste dans le volume de focal, elle peut fournir un électron par photoionisation ou bien être ionisée par collision électronique. Lorsque le temps de vie du niveau excité est très court, la désexcitation peut se produire avec l'émission d'un photon. Ce dernier pouvant être réabsorbé par le gaz puisqu'il correspond à une fréquence caractéristique des particules du gaz. Étant donné ces complications, les pertes par collisions inélastiques sont généralement traitées en introduisant des paramètres phénoménologiques (Chan et al., 1973). Dans notre modèle, nous n'avons pas tenu compte de ce terme de perte.

L'ensemble des processus élémentaires qui interviennent dans le phénomène de cascade est schématisé à la figure 5.1

### 5.1.6 Terme de recombinaison

La recombinaison électron-ion est un processus important pour déterminer le développement de l'ionisation lors du phénomène de cascade. Dans les premiers instants, la contribution de la recombinaison aux pertes est relativement faible. Néanmoins, ces pertes sont d'autant plus importantes que la densité électronique augmente (éq. 5.1).

### 5.1.7 Critère de claquage

Nous avons adopté comme critère de claquege celui proposé par Phelps (1966) et qui indique que le claquage d'un gaz correspond à l'ionisation de 0.1% de ses particules. Il s'agit d'un critère qui trouve une justification expérimentale dans les travaux de Young et Hercher (1967).

Si on considère un gaz à une pression p et à une température T, on obtient une concentration électronique seuil (en cm<sup>-3</sup>) de  $7.34 \times 10^{18} p/T$ , où la pression s'exprime en atmosphère et la température en kelvin. À la température ambiante (298 K) et à la pression atmosphérique, on a donc  $n_{e, \text{seuil}} = 2.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

### 5.1.8 Équation du claquage optique

Afin de déterminer la densité de puissance requise pour produire le claquage optique, l'évolution de la concentration éléctronique sous l'influence de l'impulsion laser doit être calculée. La forme générique de l'équation à laquelle obéit la concentration électronique est la suivante :

$$\frac{dn_e}{dt} = w_0 N + [\nu_{\rm cas} - \nu_{\rm ce} - \nu_{\rm dif}]n_e - Rn_e^2$$
(5.23)

Les trois premiers termes décrivent la création d'électrons à travers l'absorption multiphotonique et l'ionisation par cascade. Les termes restant tiennent compte des pertes d'électrons respectivement par diffusion en dehors du volume focal, et par recombinaison. La plupart des études précédentes négligent soit l'ionisation multiphotonique soit les pertes par recombinaison. Dans notre analyse nous tenons compte de tous ces termes. À côté de cela, une analyse de l'absorption et de la densité d'énergie du plasma est également faite. Le démarrage du phénomène de cascade requiert, comme nous l'avons dit, la présence d'électrons primaires dans le volume focal. Nous avons montré que dans des gaz très purs, ces électrons sont produits par l'intermédiaire de l'ionisation multiphotonique. Nous considérons donc, dans notre modèle, que le processus de cascade ne peut se déclencher que lorsqu'au moins un électron primaire apparaît, *i.e.*,  $n_e \pi r^2 l \ge 1$ . Le claquage en présence d'impuretés est modélisé en considérant a priori l'existence d'un électron dans le volume focal.

### 5.2 Résultats



#### 5.2.1 Influence de la longueur d'onde

FIG. 5.2: Évolution de la concentration électronique à différentes longueurs d'ondes

La figure 5.2 présente l'évolution de la densité d'électrons libres dans un gaz d'azote  $(N_2)$  pour les différentes longueurs d'ondes. Ces figures méritent quelques remarques. Tout d'abord

on voit que l'évolution de la concentration électronique est essentiellement pilotée par l'ionisation multiphotonique aux faibles longueurs d'ondes (figure 5.2 (a)). Pour les plus grandes longueurs d'ondes l'ionisation par les collisions électroniques prend plus d'importance (figure 5.2(b) et (c)). À 1064 nm (figure 5.2(d)) la densité électronique d'électrons libres croît lentement à cause des transitions multiphotoniques. Cependant dès que le premier életron libre est généré dans le volume focal, l'ionisation par cascade commence et domine très rapidement la production d'électrons libres. La concentration électronique croît considérablement en moins d'une nanoseconde. Lorsque l'on atteint des concentrations électroniques très élevées, la croissance exponentielle est alors freinée par les réactions de recombinaison ( $\propto n_e^2$ ). Un équilibre dynamique entre la production et la perte d'électrons s'établit durant cette phase. L'évolution de la concentration électronique suit dès lors le comportement temporel de la densité de puissance de l'impulsion. Lorsqu'on arrive à l'aile de la gaussienne les réactions de recombinaison ne peuvent plus être compensées par la production d'électrons libres. La densité d'électrons libres décroît très rapidement à la fin de l'impulsion. Les électrons produits par cascade sont de 9 à 11 ordres de grandeur plus importants que la contribution de l'ionisation multiphotonique.

Pour une longueur d'onde de 355 nm le temps de montée de la cascade électronique est beaucoup plus faible. Un taux d'ionisation plus élevé est nécessaire pour atteindre la densité critique. La densité de puissance seuil augmente. Cela à pour effet de favoriser la production d'électrons par ionisation multiphotonique à cause de la forte dépendance du taux d'ionisation à la densité de puissance radiative ( $\propto I^k$ ). Le taux d'ionisation par cascade à une dépendance en I (voir équation 5.13). La contribution de l'ionisation multiphotonique devient donc plus importante avec la décroissance de la longueur d'onde. Le rôle des transitions multiphoniques est particulièrement important pour les longueurs d'onde inférieures à 400 nm (figure 5.4).

L'évolution de la densité des électrons libres est caractérisé par une interaction entre l'ionisation multiphotonique, l'ionisation par cascade et par les pertes par recombinaisons durant la durée de l'impulsion. Nos résultats suggèrent, que pour des impulsions et pour des longueurs d'onde situées dans l'infrarouge (1064 nm), le seuil de claquage est déterminé par la densité de puissance nécessaire pour produire le premier électron libre par absorption multiphotonique. À cette densité, qui est atteinte au maximum de l'impulsion laser, le taux d'ionisation par cascade est si important que la densité électronique critique est atteinte presque instantanément. Ce comportement diffère aux longueurs d'onde situées dans le visible, où la différence entre le taux d'ionisation par transition multiphotonique et par cascade est beaucoup plus faible. À cause d'une probabilité plus grande d'ioniser par les transitions multiphotoniques, la densité électronique augmente considérablement avant que l'impulsion n'ait atteint son pic de puissance. Le seuil de claquage est dès lors déterminé par l'interaction entre l'ionisation par cascade et la recombinaison. Étant donné que le taux d'ionisation par cascade est ralenti par les recombinaisons, la densité critique est atteinte lorsque l'impulsion passe par son maximum de puissance.

On a montré que pour des impulsions de quelques nanosecondes, un électron primaire suffisait pour déclencher l'emballement. En revanche, pour des impulsions plus courtes, de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, un nombre beaucoup plus important d'électrons primaires doit être produit par ionisation multiphotonique afin de compenser le fait que pour qu'un électron produise un nouvel électron par collision ionisante il faut un temps minimum de  $k\tau$ . Pour une longueur d'onde de 1064 nm, par exemple, on a k = 11, et donc le temps nécessaire pour produire deux électrons à partir d'un seul est d'à peu près 6 ps. Une cascade qui démarre à partir d'un seul électron (figure 5.3) produira au bout de 30 ps au plus  $2^{30/6} = 32$  électrons libres ce qui est complètement négligeable.



FIG. 5.3: Production d'électrons par cascade

La figure 5.4 présente l'évolution du seuil de claquage en fonction de la longueur d'onde du laser. Les courbes noir, bleu et rouge correspondent respectivement à des lentilles de focale de 50, 100 et 150 mm.



FIG. 5.4: Seuil de claquage en fonction de la longueur d'onde.

Dans le cas de la plus courte focale, on distingue une évolution du seuil de claquage en fonction de la longueur d'onde en escalier jusqu'à peu près 700 nm. Entre chaque saut de l'énergie seuil, on a une valeur constante. Ce comportement traduit le fait que, jusqu'à 700 nm, l'évolution de la concentration électronique, et donc du seuil de claquage, est pilotée par l'ionisation multiphotonique. Les longueurs d'ondes auxquelles surviennent ces sauts correspondent aux discontinuités de la fonction donnant l'entier immédiatement supérieur à  $1.014234 \times 10^7 \lambda$ . Au-delà, le seuil de claquage dégringole lorsque la longueur d'onde augmente ; l'ionisation par collision électronique est devenue prépondérante. Pour les lentilles de distances focales plus grandes, l'énergie seuil maximale est déplacée vers les plus courtes longueurs d'ondes. Contrairement au cas de la lentille de 50 mm de focale, pour les longueurs d'ondes supérieures à celle correspondant à l'énergie seuil maximale, le seuil augmente par palier lorsque  $\lambda$  croît.

#### 5.2.2 Influence des impuretés

La figure 5.5 présente l'évolution de la densité électronique lorsque l'on considère dans le volume focal la présence *a priori* d'électrons libres. La densité électronique initiale est prise telle qu'un électron libre soit présent dans le volume focal ( $n_e(0) = 1/2\pi w_f^2 z_R$ ). Étant donné que le processus d'ionisation multiphotonique n'est pas nécessaire pour produire l'électron primaire, la densité de puissance critique pour un rayonnement à 1064 nm est considérablement diminuée par rapport au cas d'un gaz ne contenant pas d'électron libre *a priori*. On constate également que le taux d'ionisation par cascade progresse plus lentement. Le seuil de claquage est dès lors déterminé par la valeur du champ nécessaire pour contre-balancer les pertes par recombinaison.



FIG. 5.5: Concentration électronique en fonction du nombre d'électrons libres présents dans le volume focal,  $E_{inc} = 14.7 \text{ mJ}, \tau = 6 \text{ ns}$ 

Pour les longueurs d'ondes situées dans le visible, nos calculs ne montrent pas de différences entre le seuil de claquage dans le cas d'un gaz d'azote pur et en présence d'impuretés. Une influence très forte des impuretés est toutefois obtenue pour des longueurs d'ondes dans l'infrarouge, région pour laquelle la présence d'un électron primaire est un prérequis au déclenchement de l'ionisation par cascade. Les impuretés peuvent faciliter la génération d'électrons primaires et dès lors changer radicalement l'évolution temporelle de la densité électronique et changer ainsi le seuil de claquage.

### 5.2.3 Influence de la durée de l'impulsion

Les figures 5.6(a) et 5.6(b) montrent l'évolution temporelle de la densité électronique dans un gaz, pour des impulsions respectivement de 30 et 300 ps.



FIG. 5.6: Évolution de la concentration électronique pour des impulsions de 30 et 300 ps

Dans les deux cas, l'énergie incidente correspond à l'énergie seuil, c'est-à-dire 320  $\mu$ J pour l'impulsion de 30 ps, et 1.4 mJ pour l'impulsion de 300 ps. En traits interrompus, nous montrons l'évolution de la concentration électronique due à l'ionisation multiphotonique. Nous

voyons que ce processus d'ionisation devient plus important lorsque la durée de l'impulsion diminue. Son rôle est beaucoup plus prononcé pour l'impulsion de 30 ps, que celle de 300 ps. Bien que les pertes par recombinaison soient importantes pour des impulsions nanosecondes, leur influence devient négligeable pour les impulsions picosecondes.

La figure 5.7 montre l'énergie seuil en fonction de la durée de l'impulsion, pour une lentille de 50 mm de distance focale. Les calculs ont été faits à 355 et 1064 nm. L'énergie seuil est toujours plus faible à 355 nm qu'à 1064 nm. Pour un rayonnement de 355 nm, l'énergie seuil présente une dépendance en  $\tau^{0.98}$  ( $\tau$  est la durée de l'impulsion) quelle que soit la durée de l'impulsion. À 1064 nm, la dépendance est en  $\tau^{0.97}$  pour les impulsions dont la durée est supérieure à 2 ns.



FIG. 5.7: Énergie seuil en fonction de la durée de l'impulsion, f = 50 mm

#### 5.2.4 Influence de la distance focale de l'optique

La figure 5.8 montre l'énergie seuil en fonction de la distance focale à 355, 532 et 1064 nm. Pour les distances focales très petites ( $\leq$  38 mm) l'énergie requise pour claquer augmente avec la longueur d'onde. Pour les distance focales comprises entre 38 et 120 mm, nous obtenons un seuil de claquage qui n'est pas monotone en fonction de  $\lambda$ . Les valeurs d'énergies seuils les plus élevées sont obtenues à 532 nm. Au-delà de 120 mm, l'énergie requise pour claquer à 1064 nm augmente considérablement. À 355 et 532 nm, l'augmentation du seuil de claquage en fonction de la distance focale est beaucoup plus modeste. Le rapport entre l'énergie seuil à 1064 nm et celle à 355 ou 532 nm peut valoir 2, voire 4 pour les plus grandes focales.



FIG. 5.8: Énergie seuil en fonction de la distance focale du système optique,  $\tau = 6$  ns

### 5.2.5 Énergie absorbée

L'énergie absorbée par unité de volume,  $E_{abs}$ , est donnée par :

$$E_{abs} = \int_{\text{Durée de l'impulsion}} \frac{du}{dt} n_e(t) dt$$
  
$$= \frac{e^2}{m_e c \varepsilon_0 n} \frac{\nu_{e-n}}{\omega^2 + \nu_{e-n}^2} \int_{-2\tau}^{2\tau} n_e(t) I(t) dt$$
(5.24)

Pour des impulsions de quelques nanosecondes, le coefficient d'absorption est à peu près constant. Cela provient du fait que le profil de la densité électronique, pour des durées d'impulsions de l'ordre de la nanoseconde jusqu'à quelques dizaines de nanosecondes, reste relativement similaire. Au début de l'impulsion (aile de la gaussienne) la densité électronique est négligeable. Celle-ci devient subitement très importante lors de l'apparition du premier électron primaire transformant le gaz limité par le volume focal en un plasma très absorbant. Lorsque la durée de l'impulsion tombe en dessous de la nanoseconde, le coefficient d'absorption décroît jusqu'à atteindre une valeur minimum située aux environs de 3 ps. Cette diminution s'explique par le fait que des concentrations électroniques élevées ne sont atteintes que tardivemement durant la durée de l'impulsion.



FIG. 5.9: Énergie seuil en fonction de la distance focale du système optique,  $\tau = 6$  ns

La figure 5.9 montre également que le gaz d'azote devient absorbant pour des énergies incidentes de 15, 30 et 60 mJ correspondant respectivement à des distances focales de 50, 100 et 150 mm. Ces valeurs sont relativement concordantes avec le choix de la densité électronique critique proposé par Phelps (1966)

## 5.3 Conclusions

Un modèle OD a été développé pour calculer l'évolution de la densité électronique durant l'impulsion. Nous avons tenu compte simultanément de l'ionisation multiphotonique et de l'ionisation par collision électronique. Les transitions multiphotoniques ont été incorporées dans ce formalisme en utilisant la théorie de l'ionisation multiphotonique développée par Keldysh (1965).

Nous avons montré que, dans le cas des impulsions nanosecondes, la génération d'électrons libres est initiée par des transitions multiphotoniques. Pour une lentille de 50 mm de focale, nous avons démontré que l'ionisation multiphotonique pilote, à elle seule, l'évolution de la concentration électronique lorsque la longueur d'onde du rayonnement laser est inférieure à une certaine valeur. Dans notre cas, nous avons montré que cette longueur d'onde se situe aux environs de 700 nm. Au-delà de 700 nm, l'évolution de la densité électronique est dominée par le phénomène de cascade dès l'apparition du premier électron libre.

Le seuil de claquage se détermine en requérant qu'un certain degré d'ionisation soit atteint avant la fin de l'impulsion. Nous avons adopté, dans notre approche, le critère proposé par Phelps (1966) et qui consiste à considérer que le claquage correspond à l'ionisation de 0.1% des particules du gaz. Nous avons trouvé un accord qualitatif et quantitatif relativement bon entre les valeurs prédites et celles mesurées. Cette remarque est toutefois à prendre avec beaucoup de précaution, vu l'incertitude liée à la connaissance des sections-efficaces de collisions utilisées.

Notre modèle prédit également une dépendance entre le seuil de claquage et la distance focale beaucoup plus forte lorsque le rayonnement se situe dans l'infrarouge. Nous avons vu qu'il peut exister un facteur 4 entre les seuils de claquage obtenus à 1064 nm et ceux déterminés à 355 ou 532 nm.

À côté de cela, nous avons déterminé l'évolution de l'énergie absorbée en fonction de l'énergie incidente. Bien que cette évolution nous permette de justifier la cohérence du critère de Phelps (1966), nous avons obtenu un comportement très loin de celui mesuré expérimentalement. Cet écart, entre les prédictions du modèle et les mesures expérimentales, trouve son origine, dans notre approche, dans l'usage d'une énergie électronique moyenne constante.

### Chapitre 6

### LASER-SPARK INDUCED IGNITION AND FLAME CONTROL IN LEAN METHANE/AIR MIXTURES. ANALYSIS BY OH-PLIF MEASUREMENTS

H. El-Rabii and J.C. Rolon.

Accepté pour la publication dans ISCAP "Advances in Combustion and Atmospheric Pollution". Editors G. Roy and S. Frolov, Torus-Press, Moscou 2004.

### 6.1 Introduction

Ignition is defined as the transformation of a system from a nonreactive to a reactive state leading to thermochemical runaway followed by a rapid transition to self-sustained combustion (Kuo, 1986). The study of this transformation, as well as the control of the combustion, is of crucial concern in the combustion field and in a lot of applications. There are many ways to initiate combustion reactions. The most conventional means is achieved by creating an intense electrical field between two electrodes to induce breakdown in the gas.

In internal combustion engine, ignition is generally obtained by using a spark device. The lightening is realized at high frequencies and for a very long operating time. In aircraft gas-turbine engine, ignition of a reactive stream is achieved once; the stabilization of the flame is insure by the recirculation of exhaust gases. Normal operating mode strongly dependent on the way used to achieve ignition and to stabilize the flame. Thus, a too long ignition delay time can lead to an accumulation of reactive components in the combustion chamber and can cause a too important overpressure during the ignition event leading to catastrophic structural damage.

Traditional electric spark ignition devices present severe drawbacks. For instance, one may think to the presence of high voltage in the system, high level electromagnetic field perturbations and the necessity to locate the ignition device in the neighborhood of a wall. Several options have been proposed to overcome theses disadvantages. Among them one may quote plasma jet ignitors, flame jet ignitors, pulsed-jet combustion or systems using the recirculation of exhaust gases.

Another alternative has appeared after the discovery made in 1963 by Meyerand et Haught, that under certain conditions, bringing a laser beam to focus can cause a gas to break down, and subsequently initiate ignition. Weinberg et Wilson (1971) were the first to study the feasibility of using a laser as an ignition source for measuring minimum ignition energy. Since then, laser-induced ignition has been received considerable attention. The studies reported have been essentially devoted to the measurement of minimum ignition energies, ignition delay time, and the study of the evolution of the structure of the ignition kernel for different kinds of laser

sources (pico- and nanosecond, wavelengths varying from the near UV to the near IR), for gas mixtures including hydrogen (Spliganin et al., 1995), ammonia (Chen et al., 2001) and hydrocarbons such as methane (Phuoc et White, 1999; Beduneau et al., 2003) and propane (Lee et al., 2001).

Nowadays, the design of reproducible and reliable igniters is one of the most challenging task which is especially relevant to the aircraft gas-turbine engine manufacturers. Issues, such as the relight of engines following flame extinction at high altitudes, is of crucial concern. Additionally, the possibility of doing multipoint ignition appears to be of great benefit for the use in internal combustion engines. The use of a suitable optical converging system may allow one to obtain an optimal flame-front area-to-volume ratio, which has as a consequence to lower the optimal combustion mixture to the fuel lean side, and hence decrease the emission of pollutants. However, as fuel-air mixtures becomes lean, small perturbations in the flow, generally due to thermo-acoustic driven oscillations, can cause the flame to quench. In such regime, laser can be used to obtain a stable combustion which would be impossible otherwise.

In this paper, we study the laser spark ignition of methane/air mixtures flows using the planar laser-induced fluorescence (PLIF) technique. The time-resolved images obtained provide radiative and hydrodynamical information on the structure of the nascent kernel. A simple model, based on the breakdown propagation wave, is used to estimate the dimensions of the volume within which the energy is deposited. Minimum ignition energy versus the equivalence ration are also reported.

### 6.2 Breakdown wave and plasma dimensions

The focal volume is generally supposed to be cylindrical with length and radius given by the following relations (Haught et al., 1966) :

$$l = (\sqrt{2} - 1)\frac{\theta}{D}f^2 \tag{6.1}$$

$$r = \left(\frac{2\lambda}{\pi}\right) \left(\frac{f}{D}\right) \tag{6.2}$$

where f is the focal length,  $\lambda$  is the laser wavelength, D is the unfocused beam diameter and  $\theta$  is the beam divergence. However, if we suppose the optical system carefully aligned, the only significant distortion is introduced by primary spherical aberration (Born et Wolf, 1980). However, as Aaron et al. (1974) showed, relations (7.4) and (7.5) are valid if the greatest distance between the ideal convergent spherical wavefront and the distorted wavefront,  $\Phi_{\text{max}}$ , is  $\ll \lambda$ . In the present work, the laser beam was brought to focus by a plano-convex UV-grade synthetic fused-silica lens having a focal length of 50 mm. At 355 nm, the refractive index of the lens material, n, is equal to 1.4761 (Malitson, 1965). The aberration function for a plano-convex lens, due to primary spherical aberration, is given by (Mahajan, 1991):

$$\Phi(\rho) = -\frac{(D\,\rho)^4}{512f^3} \left[\frac{4n^3 - 8n^2 + 8}{n(n-1)^2}\right],\tag{6.3}$$

where  $\rho = 2r/a$ , and r represents the distance measured orthogonal to the beam optic axis, defined as the z direction. The unfocused beam diameter is 7 mm, which gives for  $\Phi_{\text{max}}$  the value  $1.1\lambda$ . Hence, condition under which relations (7.4) and (7.5) could be applied is not fulfilled.

Another approach to estimate the volume within which the energy is released was presented by El-Rabii et al. (2003).

For a Gaussian laser pulse, the temporal laser irradiance profile, P(t), is given by

$$P(t) = P_{\text{peak}} e^{-(t/\tau)^2}$$
(6.4)

The maximum laser power,  $P_{\text{peak}}$ , is related to the measured pulse energy,  $E_{\text{inc}}$ , by

$$E_{\rm inc} = P_{\rm peak} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-(t/\tau)^2} dt = P_{\rm peak} \tau \sqrt{\pi}$$
(6.5)

where  $\tau$  is related to the full width at half maximum ( $\tau_{\rm FWHM}$ ) by the following relation

$$\tau = \frac{\tau_{\rm FWHM}}{2\sqrt{\ln 2}} \tag{6.6}$$

The laser beam used presents a full-divergent angle (86 % of energy) of 0.5 mrad and a pulse width ( $\tau_{\rm FWHM}$ ) of 7 ns. It is well known that laser beams differ somewhat from a perfect gaussian beam (Siegman, 1990). In order to take this deviation into account, one introduces the  $M^2$  factor which describes the departure from ideal gaussian beams and which is defined by

$$M^2 = \frac{\pi \theta w_0}{\lambda} \tag{6.7}$$

where  $\lambda$ ,  $\theta$  and  $w_0$  stand respectively for the laser wavelength, the far-field half-divergent angle, and the laser beam waist. In our case,  $M^2$  is equal to 8. A more rigorous expression for the laser beam quality should take the degradation due to spherical aberration into account (Siegman et Ruff, 1992).

Assuming an aberration-free optical system and a gaussian beam, the beam waist,  $w_f$ , at the focal point is given by (Kogelnik et Li, 1966) :

$$w_f = \frac{f\lambda}{\pi w_0} M^2 \tag{6.8}$$

where f stand for the focal length of the lens. Expression (7.10) is valid as long as  $f >> w_0$ , which is the case in our experiments. In the present study, a focal length of 50 mm has been used, which provides a beam waist of 12.5  $\mu$ m.

The beam radius, as a function of the axial distance after the focusing lens, is given by

$$w(z) = w_f \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda M^2}{\pi w_f^2}\right)^2}$$
(6.9)

The volume, V, of the deposited energy is then given by

$$V = 2 \int_0^{l/2} \pi w^2(z) \, dz \tag{6.10}$$

where l stands for the maximum axial length of the plasma produced by the laser. In order to derive an expression for this length, we neglect the effect due to the light emitted by the plasma and absorbed through an absorption wave (Root, 1989). In addition, we suppose that breakdown occurred independently at each location where the conditions are fulfilled and that the breakdown threshold is independent of the beam radius.

The local power density is given by

$$I(z,t) = \frac{P_{\text{peak}}}{\pi w^2(z)} e^{-(t/\tau)^2}$$
(6.11)

Breakdown takes place as soon as  $I(0,t) = I_{thr}$ , and the half of the maximum plasma length, l/2, corresponds to the position for which the peak density power equals the irradiance threshold.

$$I_{\rm thr}\pi w_f^2 \left[ 1 + \left(\frac{l\lambda M^2}{2\pi w_f^2}\right)^2 \right] = P_{\rm peak}$$
(6.12)

which gives

$$l = \frac{2\pi w_f^2}{\lambda M^2} \sqrt{\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} - 1}$$
(6.13)

and finally, we obtain for the volume within which the energy is released, the following expression :

$$V = \frac{2(\pi w_f^2)^2}{3\lambda M^2} \left(\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} + 2\right) \sqrt{\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} - 1}$$
(6.14)

Figure 7.6 presents the plasma volume, at the end of the pulse, versus the ratio of the incident energy to the threshold energy. We see that the volume increases with the incident energy. The slope of the curve decreases until the energy ratio reaches about one and a half the threshold energy; value above which the behavior is rather linear. Volumes of the order of  $10^{-7}$  cm<sup>-3</sup> are obtained.



FIG. 6.1: Plasma volume versus ratio of the peak power to the threshold power

## 6.3 Experimental setup

A schematic of the experimental apparatus is presented in figure 6.2. It consists of six subsystems : a burner, a flow controller, an ignition laser, a probe laser, an intensified charge-coupled device (ICCD) camera, and a timing system.



FIG. 6.2: Experimental apparatus

The burner is made of two concentric nozzles. The inner injection nozzle is 20 mm in diameter and is surrounded by an annular nozzle with a diameter of 40 mm. The inner nozzle is fed with a mixture of methane/air, while nitrogen is injected through the surrounding nozzle in order to prevent the reactive stream from chemical and hydrodynamical disturbances.



FIG. 6.3: Burner schematic

The gas handling system consists of three Bronkhorst HI-TEC EL-FLOW mass flow meter/controlers. Two of them are used to adjust the methane and air flows to obtain a specific equivalence ratio. These flows are mixed in a manifold before being directed through the outlet of the in-

jection nozzle. The third mass flow meter/controller is used to set up the nitrogen flow. The laser-induced spark is produced at the focus of a 50 mm focal-length lens, by using the output of the third harmonic (355 nm) of a Nd :YAG laser (Continuum Surelite) operating as a Q-switched nanosecond (7 ns) laser. The laser is triggered by an external signal provided by a Berkeley Nucleonics pulse delay generator (model 555), which has eight independent outputs, with digitally-controlled delay and pulsewidth. Two outputs are used to provide the input TTL level negative-going signals (5 V  $\rightarrow$  0 V, 10  $\mu$ m wide) at a frequency of 10 Hz. A jitter of 1 ns between input commands and laser output is obtained. The first TTL signal causes the laser head lamps to flash. The second TTL signal fires the Pockels cell. Laser energy is controlled by varying the delay between these two signals. To let only one pulse ignite the mixture, the laser is operated in single shot mode. The probe laser consists of a dye laser (Rodhamine 590) pumped by a second Nd :YAG laser operating at 532 nm. The probe laser is tuned to the  $Q_1(5)$  line of the (1,0) vibrational band of the  $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$  (282.667 nm) transition. The pulse energy of the probe beam is about 6 mJ, thus operation is in the linear fluorescence regime. The fluorescence signal is collected between 306 and 318 nm. The camera system consists of a Princeton Instruments ST-133 controller, a programmable timing generator, and a PI-MAX camera. The camera contains a thermoelectrically cooled (Peltier effect) charge-coupled device sensor and an intensifier, which consists of a module mounted to the front of the CCD via a fused fiberoptic bundle. The intensifier can be gated in time down to 2 ns. In operation, data acquired by the camera are routed to the controller and then to the computer for processing and display. The external TTL signal which triggers the programming timing generator is provided by a third output of the pulse delay generator. The duration of light detection is chosen sufficiently short to keep at negligible level spontaneous emission and chemiluminescence of excited OH radicals. Figure 6.4 shows the relative positions of the various signals. The window signal is used in order to supply a pulse signal to the laser just after the ignition pulse has been sent. The delay time between the Q-switch of the laser ignition and the Q-switch of the probe laser can be varied.



FIG. 6.4: Timing diagram for PLIF imaging of spark ignition events

## 6.4 Imaging technique

The PLIF imaging technique was used to visualize the instantaneous structure and the shape of the evolving flame kernel initiated by the laser spark. In the present work, we used the OH radical as the tracer. We choose this molecule because its relaxation processes with different collision partners are well known. Knowledge of the temperature and the composition of the flame under study allows one to correct the fluorescence signal for the relaxation processes. Seitzmann et Hanson (1993) compared the different regimes of LIF and concluded that, if the quenching is known, the linear regime is the more appropriate regime for quantitative measurements of the OH radical in reacting flows.

The excitation strategy was based on several criteria. The excitation line should be sufficiently isolated from its closest neighbors in order to be able to tune the dye laser selectively on that transition. The transition probability should be high enough to provide a high fluorescence signal yield. In addition, although measurements of flame temperature are available, the corrections to be made may be minimized by choosing a transition weakly sensitive to the temperature. Finally, the excitation line and the spectral window of observation of the fluorescence signal should be spectrally resolved in order to prevent interferences with Rayleigh diffusion or possible reflexions.

The excitation/detection scheme recommended by Seitzmann et Hanson (1993) includes excitation of the OH molecule in the (1-0) vibrational band at  $\lambda \simeq 283$  nm, and time-integrated detection of the induced fluorescence signal in the (0-0) and (1-1) vibrational band of the  $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$  electronic transition (between  $\lambda \simeq 306$  nm and  $\lambda \simeq 318$  nm). Analysis of the absorption spectrum of the (1-0) vibrational band of OH shows that it is preferable to excite a line of a principal band, that is, the  $Q_1$  or  $Q_2$  band. We excite the  $Q_1(5)$  line. It is aliased by the  $Q_1(5')$  line which presents an absorption coefficient ten times weaker than  $Q_1(5)$ , and is therefore negligible.

The global population of the excited  $A^2\Sigma^+$  state corresponds to molecules that have been excited by the laser. Once excited, the molecules may get deexcited through various processes. Deexcitation may occur with the emission of a photon or by quenching. Transfer of population by RET and VET in the excited state  $A^2\Sigma^+$  have only for consequence to redistribute the population.

## 6.5 Energy Measurement Experiments

The spark energies were measured with two pyroelectric sensors (Ophir PE25-SH-V2 - figure 6.5). The first head measured the incident energy by splitting off a fraction of the laser beam energy, while the second one was placed into the path of the transmitted beam. The fraction of the energy diverted by the beamsplitter was found to be about 6 %. In order to collect the maximum of transmitted light a converging lens was inserted between the spark and the last detector.





FIG. 6.5: Minimum ignition energy measurement setup

The laser spark energy was then calculated from the incident energy minus the transmitted energy. Figure 6.6 presents the transmitted energy versus incident energy in still air at ambient temperature. This curve shows that below a certain value of the incident energy ( $E_{\rm inc} \simeq 3$  mJ – no breakdown region), the laser crosses the focal volume without undergoing attenuation. Between 3.0 mJ and 3.9 mJ, all shots do not lead necessarily to breakdown (transition region). Above 3.9 mJ (breakdown region), breakdown is obtained at each shot. The transmitted energy decreases drastically. The important dispersion of the values of the transmitted energy can be attributed to the fluctuation of the electronic density produced by the breakdown process, which depends strongly on the laser pulse. At the breakdown threshold, about 15% of the incident energy is absorbed by the laser spark.



FIG. 6.6: Transmitted energy versus incident energy

We may also note that the spark energy increases with the incident energy (figure 6.7), reaching levels of absorption of about 80% for incident energies of 90 mJ. This is possible if the number of free electrons grows rapidly to a sufficient concentration to absorb the laser energy, which indicates that the electron number growth is faster than the laser energy deposition rate.



FIG. 6.7: Absorption versus incident energy

In the present work, the sources of errors can be resolved into two components. The first one is due to fluctuations in the conditions where the experiment is conducted. Secondly, there is a statistical component owing to the limited number of data in each set of measurements. Energy losses related to diffraction, light emission, and acoustic waves have not been taken into account. In addition, as pointed out by Chen et al. (2000), systematic errors can be introduced owing to the presence of residual species within the focal volume of preceding pulses. In order to prevent pressure perturbation created by the breakdown, all tests were conducted in single shot mode with a few minutes between two successive shots.

The spark was created at 15 mm above the center of the burner outlet by focusing the laser beam using a 50 mm fused silicate lens. The energy threshold measurements were made as follows. The incident laser beam energy was set at its maximum. Then twenty shots were fired and successful as well as unsuccessful ignition events were recorded along with their corresponding incident and transmitted energy. Afterwards, the incident energy was decreased by a few millijoules. New shots were done and so on until no ignition was possible. The number of successful attempts divided by the total number of shots defines the ignition probability. Examples of measurements obtained for different equivalence ratios for a mixture of methane/air are shown in figure 6.8.



FIG. 6.8: Ignition probability versus incident energy in a methane/air mixture

Laser-induced breakdown and ignition are stochastic processes. As shown in figure 7.10, breakdown is not a sufficient condition for ignition. The probability of achieving breakdown depends on several parameters such as the gas composition, the state of the gas, the optical converging system, the wavelength and the laser beam profile characteristics.



FIG. 6.9: Minimum ignition energy versus equivalence ratio in a methane/air mixture

However, our measurements (figure 7.10) show a parabolic dependence of the breakdown threshold on the equivalence ratio. Given its stochastic behavior, some researchers have reported breakdown or ignition probabilities for a given measured incident laser energy and defined a successful ignition event if the ignition probability is equal to 50 %. The minimum ignition energies presented in figure 7.10 have been obtained following this procedure. It can be observed that it is impossible to ignite mixtures with an equivalence ratio lower than 0.8, although a blow off kernel flame was observed for an equivalence ratio of 0.7. On the same figure we have presented minimum ignition energy measurements reported by Lim (1997). For equivalence ratio above 0.9, our results are in very good agreement with his measurements. However, in the lean side, our results show a drastically increase of the minimum ignition energy as the equivalence ratio decreases. Although it was not possible to reach the lowest limit of flammability of methane in air (5 % in volume), the upper limit was reached (15 % in volume). This discrepancy is essentially due to the setup used in either experiments. Indeed, in our case, a successful event corresponds to an ignited and stabilized flame. Ignition for an equivalence ratio of 0.8, followed by a blow off of the flame, requires only 1.2 mJ, which agrees with Lim's measures. Besides, near stoichiometry, a minimum ignition energy of about 1 mJ is necessary to ignite the mixture. This value should be compared to the energy needed when using traditional electrical spark (0.4 mJ-Lewis et von Elbe (1987)). As pointed out by Lee et al. (2001), electromagnetic and thermal condition differences between electric and laser spark ignition could lead to different rates of chemical and thermal diffusion. This may partly explain the discrepancies between these two ways of initiating combustion reactions. However, Phuoc et White (2002) showed that the strong shock wave emitted when the spark is created takes about 50% of the deposited energy, while losses due to radiation represent about 40%, which leaves only about 10% of the deposited energy for ignition. This could explain the discrepancies in the minimum ignition energy.

### 6.6 Planar laser-induced fluorescence measurements

The physical processes leading to breakdown are multiphoton excitation and/or electron avalanche (Chin et Lambropoulos, 1984; Morgan, 1975). Once primary electrons are created, they are heated by inelastic photon-electron collisions (Compton effect) and by inverse bremsstrahlung. These two effects lead to single or multiphoton ionization. It has been shown that heating by Compton effect is generally negligible (Delcroix, 1968; Peyraud, 1968). Nevertheless, once primary electrons gain enough energy they ionize particles and produce secondary electrons. During this period of preionization and cascade, the degree of ionization remains weak. Hence, the plasma is still transparent to the laser beam and the energy deposited by the laser serves essentially to ionize the gas, while keeping heavy particle cold. When the electronic density becomes high enough, the plasma becomes very absorbent. This absorption is accompanied by an expansion of the discharge. The spark presents then an elongated ellipsoidal form, with a tendency to propagate more rapidly towards the focussing lens. This period of expansion lasts about 10 to 20 ns Root (1989). On account of the strong absorption due to the dense plasma, a strongly ionized hot layer is produced towards the laser beam. This layer attenuates the heating of adjacent layers located in the direction of the propagating beam. Since the laser beam goes on irradiating its front face, the plasma expands through an absorption wave. In the present study, the laser irradiance is of the order of one to tens of  $GW \ cm^{-2}$ , which corresponds to a laser-supported radiation wave (Root, 1989).

Electronic temperatures of tens to hundreds of eV were reported for air (Mandel'shtam, 1966; Vanyukov et al., 1968; Litvak et Edwards, 1966). Towards the end of the laser pulse the irradiance of the laser beam decreases, while the irradiated plasma surface increases. The absorption wave is no longer sustained. Besides, due to the high collision frequency, thermal equilibrium is rapidly reached. In the extreme case of hydrogen at the temperature of 10 eV the distance travelled by an atom within a time of 10 ns is less than 0.3 mm. Therefore, the density of the heavy particle is the same as before breakdown occurs. Then for a gas Z times ionized, the pressure is increased by the electronic partial pressure by a factor of 1+Z. The pressure attained in this small volume can reach  $10^3$  to  $10^4$  atm. This local and quasi-instantaneous overpressure relative to the surrounding medium gives rise to a strong shock wave, which in some cases, is of sufficient strength to ignite gas or two-phase mixtures and even to extinguish a diffusion flame (Schmeider, 1981). This strong shock wave is usually modelled as a blast wave (Taylor, 1950b).



FIG. 6.10: OH-PLIF series of laser ignition of a  $CH_4$ /air mixture ( $\Phi = 0.9, v = 0.8 \text{ m s}^{-1}$ )

During the experiments, the mixture equivalence ratio was varied within the range of 0.8 to 1.4 for an outlet flowspeed of 0.7 m s<sup>-1</sup>. Successful and unsuccessful ignition events were recorded. No significant differences were observed during the first hundreds  $\mu s$  for different mixture equivalence ratios, as well as when tracking both ignition and non-ignition events. A representative selection of instantaneous OH PLIF images of the laser ignition of a CH<sub>4</sub>/air mixture ( $\Phi = 0.9$ , v = 0.8 m s<sup>-1</sup>) is shown in figure 6.10.





FIG. 6.11: Relative fluorescence signal versus equivalence ratio

A quick growth of the reaction zone is observed at the early times (t  $< 100 \mu s$ ) and then at a slo-

wer pace as energy density within the flame kernel decreases. Globally, a clear anisotropy in the evolution of the kernel evolution was observed. At short times (t  $< 10 \ \mu$ s), a pear-shape kernel undergoing axial contraction is observed. At about 20  $\mu$ s, the contracted kernel splits into two parts, giving a toroidal shape (similar to electrode spark ignition). At 40  $\mu$ s, a tendency of the flame to move back towards the laser source is observed, until the kernel splits again, leading to two separate reactive zones. This hydrodynamical behavior agrees with those reported by Spliganin et al. (1995) and Chen et al. (2001).

Spatially-integrated total OH PLIF signal as a function of the equivalence ratio for different time delays between ignition and probing are represented in figure 6.11. Each point is the average of 30 images. We note that variations of the total OH production for time under 6 ms present a weak dependence on the equivalence ratio. A stronger dependence is observed for times past 10 ms with a peak near stoichiometry.

# 6.7 Conclusions

An experimental facility has been developed to investigate laser breakdown ignition of  $CH_4$ /air mixtures. The laser-induced spark was created by focusing nanosecond pulses from a frequency tripled Nd :YAG laser. Measurements of minimum laser breakdown ignition energy were performed. It is interesting to note the correlation observed between these minimum energies (figure 7.10) and the flammability limits of a  $CH_4$ /air mixtures observed by laser induced fluorescence as function of the equivalence ratio (figure 6.11). It was showed that the energy absorption starts just above the optical breakdown, which indicates that the inverse bremsstrahlung process is important in subsequent heating and ionization of the plasma; 15 to 80% of the laser beam energy was absorbed by the plasma. Minimum ignition energy presents in this work agreed very well with the literature.

Planar laser induced fluorescence was employed to track flame development during the ignition process. We observed a high reproducibility of these processes during the experiments. PLIF imaging of the ignition kernel showed anisotropic evolution of the kernel. It was observed, in the first instants, an axial contraction along with a radial expansion of the kernel, leading to a toroidal ignition kernel. A weak dependence with the equivalence ratio of the fluorescence signal was observed for time before 6 ms, while a stronger dependence was observed after 10 ms.

## Chapitre 7

#### LASER-IGNITION IN A LEAN PREMIXED PREVAPORIZED INJECTOR

H. El-Rabii, K. Zähringer, J.C. Rolon et F. Lacas. *Combust. Sci. Tech.*, 176 (9) (2004), 1391-1417

## 7.1 Introduction

Ignition is defined as the transformation of a system from a nonreactive to a reactive state, leading to thermochemical runaway followed by a rapid transition to self-sustained combustion (Kuo, 1986). This process is produced by providing the system, within a specific time, with a minimum amount of energy in a minimum critical volume of a medium, where fuel and oxidizer mixture exist in the right proportion. Ignition is a very complex process because it involves simultaneously chemical kinetics, heat transfer and fluid dynamics.

There are many ways to initiate combustion reactions. The most conventional means is achieved by creating an intense electrical field between two electrodes in order to induce breakdown in the gas. Minimum ignition energies of most flammables gas mixtures, using electrical spark, have been systematically studied and reported by Lewis et von Elbe (1987). However, traditional electric spark ignition devices present severe drawbacks such as the presence of high voltage in the system and perturbations due to high level electromagnetic field. In addition, it is necessary to locate the ignition device in the neighborhood of a wall. Several options have been proposed to overcome such disadvantages. Among them one may quote plasma jet ignitors, flame jet ignitors, pulsed-jet combustion or systems using the recirculation of exhaust gases.

Another alternative has appeared after the discovery made in 1963 by Meyerand et Haught, that under certain conditions, bringing a laser beam to focus can cause a gas to break down, and subsequently initiate ignition. Weinberg et Wilson (1971) first studied the feasibility of using a laser as an ignition source for measuring minimum ignition energy. Since then, laser-induced ignition has received considerable attention. The studies reported have been essentially devoted to the measurement of minimum ignition energies, ignition delay time, and the study of the evolution of the structure of the ignition kernel for different kinds of laser sources (pico- and nanosecond, wavelengths varying from the near UV to the near IR), for gas mixtures including hydrogen (Spliganin et al., 1995), ammonia (Chen et al., 2001) and hydrocarbons such as methane (Phuoc et White, 1999; Beduneau et al., 2003) and propane (Lee et al., 2001). It has to be noted that most of this works were pursued in simplified geometries, far from real application configurations.

The influence of the equivalence ratio, as well as the pressure was investigated by Weinberg

et Wilson in 1971. They showed that, for very lean or rich mixtures or at pressures below half an atmosphere, the minimum ignition energies were lower for laser-induced sparks than for electrical sparks. For near-stoichiometric mixtures at higher pressures, the minimum ignition energies were higher for laser-induced sparks. For rich and lean mixtures, ignition using laser-induced sparks need less energy than in the case of electrical sparks. The differences in minimum ignition energies were attributed to the influence of heat losses at the electrodes for electric spark sources. Weinberg et Wilson (1971) suggested that the higher minimum ignition energies near stoichiometry for laser-induced sparks were due to either shock losses or light scattered from the breakdown region.

The role played by the pulse duration and the wavelength of the laser on the minimum ignition energy has been investigated by Syage et al. (1988). The authors report measurements for laser ignition of mixtures of  $H_2/air$  and  $H_2/air/CO_2$  by using the first, second and third harmonic of a Nd :YAG laser operating as a Q-switched nanosecond laser or a pulse mode-locked picosecond laser. No significant dependency on the laser wavelength was observed. Although, for the mixture of  $H_2/air$  at stoichiometry, minimum ignition energy was several orders of magnitude higher than in the case of an electrical discharge, they showed that the overall behavior was qualitatively very similar, discrepancy decreasing for higher ratio of the mixtures.

Phuoc et White (1999) studied the laser-induced spark ignition of methane/air mixtures. The minimum ignition energy reaches its lowest values for mixtures containing 10% of methane in volume and increases towards the lean and the rich sides. The minimum ignition energy, measured for a stoichiometric mixture of methane/air at atmospheric pressure, was in agreement with those reported by Lim et al. (1996) for a picosecond laser. The authors found a methane-air mixture to be ignitable beyond its rich flammability limit (17% of methane in volume), which is richer than the upper limit reported by Chou et Zukowski (1991). However, they were only able to ignite mixtures of about 6.5% of methane, which is higher than the lean limit of flammability. They found minimum ignition energies of about one order of magnitude higher than those obtained using an electric spark.

Chen et al. (2000) investigated the influence of the exit velocity of gases from a McKenna flat-flame burner and the pulse rate at which the laser operates. They found that the flow speed was the dominant parameter. Simultaneously, the determination of the production of NH electronic ground state for breakdown and ignition events was also performed. They concluded that the NH concentration is a reliable early indicator of successful or unsuccessful ignition in the case of ammonia.

Lee et al. (2001) reported minimum ignition energy for fuel-air mixtures involving propane, dodecane and jet-A fuels for different pressure and equivalence ratio. They showed that for a mixture of propane-air at atmospheric pressure, minimum ignition energy using a laser spark were consistently larger than by using electrical spark. The equivalence ratio corresponding to the minimum ignition increases away from stoichiometry as the hydrocarbon fuels are heavier. In the case of the jet-A fuel, the minimum ignition energy exhibited a parabolic variation versus temperature. This behavior was observed for different pressures ranging from 0.3 atm to 1 atm. It is worth noting that minimum ignition energy becomes less sensitive to the pressure as the

fuel varies from propane to dodecane to jet-A fuel.

Beduneau et al. (2003) investigated the minimum ignition energy of a laminar premixed flow of  $CH_4$ /air. A parametrical study emphasized the effect of several parameters, such as the flow velocity, equivalence ratio, and the focal length of the lens. The authors showed that successful ignition events correspond to a laminar flame front propagation at about 10 ms after the energy deposition. They found that the minimum ignition energy curve does not behave the same in the fuel lean and fuel rich side. In fact, in the lean part of the curve, the shape of the curve was in good agreement with that observed for electrical spark ignition, while in the rich side the curve tended to a maximum. They pointed out that in the rich side, increasing the flow velocity could increase convection losses, leading to the observed increase of the minimum ignition energy, contrary to the lean side, for which a higher flow velocity corresponds with a lower minimum ignition energy. Beduneau et al. (2003) reported also that the minimum ignition energy increased with the lens focal length.

Table 7.1 summarizes the results of minimum ignition energy published in the mentioned literature. The values given for all mixtures except for dodecane/air and jet-A/air mixtures correspond to stoichiometric mixtures at atmospheric pressure. In the case of dodecane/air mixtures, Lee et al. (2001) found that the minimum ignition energy occurs at a relatively high equivalence ratio (3.5), but they do not provide any measurement for a stoichiometric mixture. For jet-A/air mixtures, minimum ignition energy is given versus the temperature at which ignition occurred, with respect to the flashpoint temperature (319 K). All lasers used in these works were operated in the Q-switch mode, except the picosecond laser used by Lim (1997), which was operated in the mode-locked mode. From the preceding studies, one may conclude that laser ignition presents a weak dependency on the wavelength of the laser beam. This technique has proven to be successful in the case of ignition of premixed flames, as well as diffusion flames, and it appears to be profitable for various gas mixtures involving hydrogen, methane, propane and ammonia.

Although ignition of gas-phase fuel/oxidizer mixtures are of great interest, two-phase mixtures are also important because in many applications fuel is transported and stored in the liquid phase. Boilers, gas turbines and diesel engines are many examples of practical systems using fuels in the liquid phase. Presently, the design of reproducible and reliable igniters is a challenging task especially relevant to the aircraft gas-turbine engine manufacturers. Issues such as the relight of engines and flame extinction at high altitudes are of crucial concern. Additionally, the possibility of doing multipoint ignition appears to be of great benefit for internal combustion engines. The use of a suitable optical converging system may allow one to obtain an optimal flame-front area-to-volume ratio, thereby lowering the optimal combustion mixture to the fuel lean side, and hence decreasing the emission of pollutants.

However, it is first essential to acquire a basic understanding of the chemical and physical processes involved in the initiation of combustion reactions. As pointed out by Ronney (1994), probably the most attractive advantage of laser ignition versus conventional electric spark devices is the possibility to initiate combustion reactions in desired spatial regions, away from the walls, where mixtures are not optimum. Although experimental research studies published on laser ignition increase, there is still a lack of experimental data when dealing with liquid fuel.

Mixture	λ	MIE	$ au_{ m FWHM}$	f	References
	(nm)	(mJ)	(ns)	(mm)	
$H_2/Air$	532	0.1	$35 \times 10^{-3}$	50.8	Syage et al. (1988)
$H_2/Air/CO_2$	532*	0.2	$35  imes 10^{-3}$	50.8	Syage et al. (1988)
	532†	2	$35 \times 10^{-3}$	50.8	Syage et al. (1988)
CH <sub>4</sub> /Air	532	4	12	38	Lim (1997)
	532	1	$35 \times 10^{-3}$	50	Lim (1997)
	532	0.2 - 0.7	8	50	Beduneau et al. (2003)
	532	0.5 - 1.5	8	100	Beduneau et al. (2003)
	532	1.6 - 2.0	8	300	Beduneau et al. (2003)
	1064	3.0 - 4.0	5.5	75	Phuoc et White (1999)
$\mathrm{CH}_4/\mathrm{He}/\mathrm{O_2}^\ddagger$	532	4	12	38	Lim (1997)
$\mathrm{CH}_4/\mathrm{Ar}/\mathrm{O}_2$ §	532	0.15	12	38	Lim (1997)
	532	0.5	$35 \times 10^{-3}$	50	Lim (1997)
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> /Air	532	0.8	12	38	Lim (1997)
	532	4.6	$35 \times 10^{-3}$	50	Lim (1997)
	532	0.8	10	50	Lee et al. (2001)
$\mathrm{C}_{12}\mathrm{H}_{26}/\mathrm{Air}$	532	0.5	10	50	Lee et al. (2001)
Jet-A/Air	532	2	10	50	Lee et al. (2001)

 $\lambda$  : laser beam wavelength ; MIE : minimum ignition energy ;  $\tau_{\rm FWHM}$  : full width at half maximum pulse duration; f: focal length.

20% CO<sub>2</sub>. \*

40% CO<sub>2</sub>. t

- 21% O<sub>2</sub>, 79% He.
- ‡ § 21% O<sub>2</sub>, 79% Ar.

TAB. 7.1: Minimum ignition energies for different gas mixtures found in the literature
Application of this technique to more realistic configurations, such as aircraft gas-turbine engines is not a straightforward task. Indeed, one may wonder what would be the effect of liquid fuel on laser ignition. May a too highly heterogeneous fuel concentration make ignition impossible? As shown by Phuoc et al. (2001), the optimal ignition point may vary with the flow conditions and a too high level of heat diffusion, due to the high level of turbulence, can make ignition impossible. All these points make the study of laser ignition in a more realistic configuration an unavoidable step in the design of igniters.

In this paper, we demonstrate the feasibility of laser spark ignition at the outlet of a lean premixed prevaporized injector, similar to those used in low- $NO_x$  air jet engines. This injector uses liquid n-heptane as a fuel in preheated air, with a high level of turbulence. After a description of the combustion facility and of the experimental set up, experimental results are presented and discussed. Special attention is paid to ignition energy thresholds for various positions of the focusing point in the combustion chamber. The influence of energy level on ignition probability is also presented. Finally, shadowgraphy visualizations of one ignition event with a high speed camera are shown.

#### 7.2 Breakdown and ignition

The process of liquid fuel laser ignition may be described as follow. First, when the pulsed laser is focused on a region where droplets exist, a tiny amount of the liquid phase is vaporized. Vapors thus released diffuse into the surrounding gas until a flammable mixture is obtained.



FIG. 7.1: Transmitted energy versus incident energy

Then the breakdown event may take place. The physical processes, which bring the breakdown

about, are multiphoton ionization, in order to produce the primary electrons (Chin et Lambropoulos, 1984), and cascade (Morgan, 1975). Once primary electrons are created, they are heated by inelastic photon-electron collisions (Compton effect) and by three-body inelastic photonelectron-third particle collisions (inverse bremsstrahlung). These two effects could be single or multiphoton ionization. It has been shown that heating by Compton effect is generally negligible (Delcroix, 1968; Peyraud, 1968). Nevertheless, once primary electrons gained enough energy, they are in turn able to ionize particles and therefore produce secondary electrons and so on. During this period of preionization and cascade, the degree of ionization remains weak. Hence, the plasma is still transparent to the laser beam and the energy deposited by the laser serves essentially to ionize the gas, while keeping heavy particles cold. When the electronic density becomes high enough, the plasma becomes very absorbent. This is illustrated in figure 7.1, where the transmitted energy has been reported versus the incident energy.

These measurements have been obtained using two pyroelectric energy meters (OPHIR) arranged according to figure 7.2.



FIG. 7.2: Breakdown threshold measurement setup

The data in figure 7.1 correspond to the breakdown of heated air (353 K) with a flow rate of 15 g s<sup>-1</sup>. This curve shows that under a certain value of the incident energy ( $E_{inc} \approx 5$  mJ), the laser crosses the focal volume without undergoing attenuation. Above this threshold energy, the transmitted energy decrease drastically. The important dispersion of the values of the transmitted energies can be attributed to the fluctuation of the electronic density produced by the breakdown process, which depends strongly on the laser pulse. However, the spark energy itself does not present such important fluctuations, as shown in figure 7.3.



FIG. 7.3: Spark energy versus incident energy

At the breakdown threshold, about 50% of the incident energy is absorbed by the laser spark. We may also note that the spark energy increases with the incident energy, while reaching levels of absorption of about 90% for incident energies of 90 mJ. This is possible if the number of free electrons grows rapidly to a sufficient concentration to absorb the laser energy, which indicates that the electron number growth is faster than the laser energy deposition rate.

The main mechanism responsible of the laser beam absorption is the free-free transition of the electrons in the field of atoms, molecules and ions. At temperatures below 10000 K (p = 1 atm), electron-neutral inverse bremsstrahlung dominates. For temperatures above this value, electron-ion inverse bremsstrahlung becomes dominating. The absorption coefficient,  $k_{\nu}$ , is then given by (Root, 1989) :

$$k_{\nu} = \left(1 - e^{-hc/\lambda kT}\right) \left(\frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e}\right) \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e kT}} \ n_e \sum_i z_i^2 n_i g_i \tag{7.1}$$

where h is Planck constant  $(6.625 \times 10^{-27} \text{erg K}^{-1})$ , c is the speed of the light in vacuum  $(2.9979 \times 10^{10} \text{ cm s}^{-1})$ ,  $\lambda$  is the laser beam wavelength  $(532 \times 10^{-7} \text{ cm})$ , k is the Boltzmann constant  $(1.380 \times 10^{-16} \text{erg K}^{-1})$ , T is the electronic temperature (K), e is the elementary charge  $(4.803 \times 10^{-10} \text{ abs-esu})$ ,  $m_e$  is the electron mass  $(9.108 \times 10^{-28} \text{ g})$ ,  $g_i$  is the Gaunt factor which is of the order of 1 (Karzas et Latter, 1961),  $z_i$  is the charge and the number density of the *ith* ionic species. If we suppose that the plasma is singly ionized we have  $n_i = n_e$  and  $z_i = 1$  which gives the following absorption coefficient :

$$k_{\nu} = 2.06 \times 10^{-36} \left( 1 - e^{-2.7 \times 10^4/T} \right) \frac{n_e^2}{\sqrt{T}}$$
(7.2)

The electronic density,  $n_e$ , is taken about  $10^{-19}$  cm<sup>-3</sup> based on values found in the literature (Root, 1989; Phuoc et White, 1999). To our knowledge, measurements are only available for still and laminar flows. However, the timescale of the plasma formation is few nanoseconds with typical velocities reached in the combustion chamber of 25 to 100 m s<sup>-1</sup> (Robart, 2000). The flow can thus be considered as frozen during the plasma formation.

On the other side,  $k_{\nu}$  is also given by the Beer-Lambert law :

$$k_{\nu} = \frac{1}{l} \ln \left( \frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm tr}} \right) \tag{7.3}$$

From the measurements of incident and transmitted energies, and from values for the length l of the plasma obtained by the approach presented in the next section (Ignition kernel size), one can obtain the absorption coefficients presented in figure 7.4.



FIG. 7.4: Absorption coefficient versus incident laser energy

This figure shows that the absorption coefficient undergoes important fluctuations for the same reason as presented above and that it varies from 4 to  $10 \text{ cm}^{-1}$  depending on the incident energy. These values correspond to electronic temperatures ranging from 45,000 K to 100,000 K (see fig. 7.5). Electronic temperatures estimated from these measurements are in good agreement

with those reported in the literature (Mandel'shtam, 1966; Ma et al., 1998; Phuoc et White, 1999).



FIG. 7.5: Electronic temperature versus Absorption coefficient

Energy absorption is accompanied by an expansion of the discharge, for which the volume becomes larger than the initial focal volume. The spark presents an elongated ellipsoidal form, with a tendency to propagate more rapidly in the direction of the focusing lens. This period of expansion lasts about 10 to 20 ns (Root, 1989). On account of the strong absorption, due to the sufficiently dense plasma, a hot strongly ionized layer is produced towards the laser beam. This layer attenuates the heating of adjacent layers situated in the direction of the propagating beam. Since the laser beam continues to irradiate the plasma front face, the latter expands through an absorption wave. In the present study, the laser irradiance is of the order of one to tens of GW cm<sup>-2</sup>(see Ignition kernel size), which corresponds to a laser-supported radiation wave (Root, 1989).

By the end of the laser pulse, the irradiance of the laser beam decreases, while the irradiated plasma surface increases. The absorption wave is no longer sustained. Due to the high collision frequency, thermal equilibrium is rapidly reached. In the extreme case of hydrogen, at the temperature of 10 eV, the distance travelled by an atom within a time of 10 ns is less than 0.3 mm. Therefore, the density of the heavy particle is the same as before breakdown occurs. For a gas Z times ionized, the pressure is increased by the electronic partial pressure by a factor of 1+Z. Pressures attained in this small volume can then reach  $10^3$  to  $10^4$  atm. This local and quasi-instantaneous surpressure, relative to the surrounding medium, gives rise to a strong shock wave, which in some cases, is of sufficient strength to ignite gas or two-phase mixtures

and even to extinguish a diffusion flame (Schmeider, 1981). This strong shock wave is usually modeled by a blast wave (Taylor, 1950b). As pointed out by Lee et al. (2001), electromagnetic and thermal condition differences between electric and laser spark ignition could lead to different rates of chemical and thermal diffusion. This may explain partly the discrepancy between these two ways of initiating combustion reactions. However, Phuoc et White (2002) showed that the strong shock wave emitted when the spark is created takes about 50% of the deposited energy, while losses due to radiation represent about 40%, which leaves only about 10% of the deposited energy for ignition. This could in part explain the discrepancy on the order of the minimum ignition energy.

### 7.3 Ignition kernel size

For combustion reactions to take place it is necessary to have a critical amount of energy released in a critical volume. The focal volume was previously approximated by a cylindrical volume (Haught et al., 1966) with length and radius given by the following relations :

$$l = (\sqrt{2} - 1)\frac{\theta}{D}f^{2}$$
(7.4)

$$r = \left(\frac{2\lambda}{\pi}\right) \left(\frac{f}{D}\right) \tag{7.5}$$

where f is the focal length,  $\lambda$  is the laser wavelength, D is the beam diameter and  $\theta$  is the beam divergence in mrad. There are at least two problems with this approach. First, as pointed out by Morgan (1975), equations (7.4) and (7.5) are valid only if the aberrations of the system are negligible. Second, this approach implies that the laser energy is deposited symmetrically around the focal point, which is not the case experimentally.

Predicting the dimensions of the volume of energy deposition is a complex task, since it involves taking into account simultaneously chemical kinetics, heat transfer and fluid dynamics. In this section, we propose a more physical method to estimate the dimension of this critical volume.

For a Gaussian laser pulse, the temporal laser power shape P(t) is given by the following relation

$$P(t) = P_{\text{peak}} e^{-(t/\tau)^2}$$
(7.6)

The maximum laser power  $P_{\rm peak}$  can be related to the measured incident pulse energy  $E_{\rm inc}$  by

$$E_{\rm inc} = P_{\rm peak} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-(t/\tau)^2} dt = P_{\rm peak} \tau \sqrt{\pi}$$
(7.7)

 $\tau$  is related to the pulse duration at full width at half maximum ( $\tau_{\rm FWHM}$ ) by the following relation

$$\tau = \frac{\tau_{\rm FWHM}}{2\sqrt{\ln 2}},\tag{7.8}$$

which gives in our cases  $\tau = 4.2$  ns.

The laser beam we used presents a beam waist of 3 mm, a full-divergent angle (86 % of energy) of 0.6 mrad and a pulse width ( $\tau_{\rm FWHM}$ ) of 7 ns. It is well known that laser beams differ somewhat from perfect Gaussian beams (Siegman, 1990). In order to take this deviation into account, the  $M^2$  factor, which describes the departure from ideal Gaussian beam profile, has been introduced and is defined by

$$M^2 = \frac{\pi \theta w_0}{\lambda} \tag{7.9}$$

where  $\lambda$ ,  $\theta$  and  $w_0$  stand respectively for the laser wavelength, the far-field half-divergent angle and the laser beam waist. From this relation, we estimate  $M^2$  to be about 5.3 using the following values :  $\theta = 0.3 \text{ mrad}$ ,  $w_0 = 3 \text{ mm}$ ,  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . A more rigorous expression for the laser beam quality should take into account the degradation due to spherical aberration (Siegman et Ruff, 1992).

Assuming an aberration free optical system, and a nearby Gaussian beam, the beam waist,  $w_f$ , is given after converging by (Kogelnik et Li, 1966)

$$w_f = \frac{f\lambda}{\pi w_0} M^2 \tag{7.10}$$

where f,  $\lambda$  and  $w_0$  stand respectively for the focal length of the lens, the laser wavelength and the spot size of the laser beam at the lens. Expression (7.10) is valid as long as  $f >> w_0$ , which is the case in our experiments. In the present study, a focal length of 75 mm has been used, which provides a beam waist of 23 µm. The energy threshold required to generate the breakdown is about 5 mJ per pulse (see figure 7.1), which gives a peak power of  $7 \times 10^5$  W (eq. 7.7). The irradiance threshold is thus  $4.2 \times 10^{10}$  W cm<sup>-2</sup> ( $1.2 \times 10^{29}$  photons cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>).

The radius of the beam, w(z), dependence on the axial distance, z, after focusing is given by

$$w(z) = w_f \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda M^2}{\pi w_f^2}\right)^2}$$
(7.11)

The volume, V, within which the energy is deposited is thus given by

$$V = 2 \int_0^{l/2} \pi w^2(z) \, dz \tag{7.12}$$

where l stands for the maximum length of the laser plasma. This length may be estimated as follows.

The local power density is given by

$$I(z,t) = \frac{P(t)}{\pi w^{2}(z)} = \frac{P_{\text{peak}}}{\pi w^{2}(z)} e^{-(t/\tau)^{2}}$$
(7.13)

Breakdown takes place as soon as  $I(0,t) = I_{thr}$  and the half of the maximum length of the plasma, l/2, corresponds to the position for which the peak power density equals the irradiance threshold,

$$I_{\rm thr}\pi w_f^2 \left[ 1 + \left(\frac{l\lambda M^2}{2\pi w_f^2}\right)^2 \right] = P_{\rm peak}$$
(7.14)

which gives,

$$l = \frac{2\pi w_f^2}{\lambda M^2} \sqrt{\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} - 1} \tag{7.15}$$

The expressions for the volume within which the energy is deposited is thus given by,

$$V = \frac{2(\pi w_f^2)^2}{3\lambda M^2} \left(\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} + 2\right) \sqrt{\frac{E_{\rm inc}}{E_{\rm thr}} - 1}$$
(7.16)



FIG. 7.6: Energy deposition volume versus the ratio of incident energy to the threshold energy

In order to derive this expression, we have not taken into account the effect of the light emitted by the plasma formed early during the laser pulse. This assumption may underestimate the maximum axial length of the laser plasma and thus its volume. This is a severe simplification as it does not take into account the absorption wave. It has also been supposed that breakdown occurred independently at each location where the conditions are fulfilled and the breakdown threshold is independent of the beam radius. We may also note that if incident energy equals the threshold energy, the maximum axial plasma length and the volume vanish. This is contradicted by the experimental results (figure 7.1). Figure 7.6 presents the plasma volume, at the end of the pulse, versus the ratio of the incident energy to the threshold energy. We see that the volume increases with the incident energy. The slope of the curve increases until the energy ratio reaches about one and a half the threshold energy; value above which the behavior is rather linear. Volumes of the order of  $10^{-6}$  cm<sup>-3</sup> are obtained. The relation (7.16) provides a way to estimate the volume within which the energy is deposited in order to obtain the amount of mJ cm<sup>-3</sup>. In this paper, all results are presented in terms of incident energy.

## 7.4 Experimental setup

A schematic of the experimental apparatus is presented in figure 7.7. It consists in four subsystems : a lean premixed prevaporized (LPP) injection device, a combustion chamber, the flow gas control and an ignition laser.



FIG. 7.7: Experimental setup

The injection device is set up in a precombustion chamber. The latter consists of a cubic structure of 150 mm and is made from stainless steel with 4 mm thickness. Nickel/graphite seals are used in order to make it hermetically sealed for high temperatures. The principal part of the injector is made of two spins which can be oriented in order to induce either a co- or counterrotating flow. The injection device is fed radially with air through the paddles of the swirlers. The paddle angles inducing the tangential flows are respectively 35° for the internal spin and 50° for the external spin. Angles are defined against the radial direction. More details on the injection device may be found in the paper of Bernier et al. (2003).



FIG. 7.8: Transverse view of the combustion chamber

The combustion chamber (figures 7.7 and 7.8) presents a square section of  $10 \times 10$  cm<sup>2</sup> for a length of 50 cm. A stainless steel structure ensures the mechanical stability of the system. The

four sides of the chamber are made of a moulding of refractory concrete. However, in order to allow the use of optical diagnostics, lateral fused silica windows of  $10 \times 10 \text{ cm}^2$ have been set with a transmission bandwidth from the near UV (0.3 µm) to the near IR (2.7 µm). A layer of compressed alumina fiber ensure the sealing between the windows and the walls of refractory concrete. At the entrance of the combustion chamber, thermal isolation of the precombustion chamber against the flame is ensured by a ceramic layer.

The burner is supplied with electrically preheated air up to 600 K. The preheater device consists in an electrical resistor coil, directly plunged in the air flow (Osram SuperSerpX-18kW). In order to regulate the temperature level, a PID control device has been used. The output temperature of the air preheater device serves as an input for the control system (Masser Industrie). Besides, a differential pressure contoller (Kobol KDDCM/4-25 mbar) secures the preheater against too weak air flow. The air handling system consists of Bronkhorst HI-TEC EL-FLOW mass flow meter controllers. The LPP injector is supplied with atomized liquid fuel. The atomization is achieved by an injector fed with pressurized fuel (1-10 bar). The combustible pressurization is realized by using an argon pressurized tank. The fuel flow is adjusted through the pressure along with an electrovalve and a liquid flowmeter. A particle filter (Sagana - 15  $\mu$ m) and a flowmeter (Kobold DF-H/0.5 l min<sup>-1</sup>) are also used. The injector (Delavan) produces a spray with a hollow conical shape with a vertex angle of 60°. The droplets present a diameter of 40 to 80  $\mu$ m near the external boundary of the cone and a diameter of 10 to 20  $\mu$ m near the internal boundary (Robart, 2000).

Four kinds of fuels have been considered first; two alcohols – methanol and ethanol – and two hydrocarbons – domestic fuel and heptane. The thermodynamic properties of these fuels in the gaseous and in the liquid phase, pure or mixed with air, can be found in the literature (e.g., Vargaftik et al., 1996). Domestic fuel produces too much soot during combustion, and could then prevent optical diagnostics from being applied. Although alcohols present clean combustion, the necessary flow rate for the same power is twice as high. On the other hand, heptane presents close characteristic to diesel oil, FOD or kerosine, and produces little soot. Chemical kinetics scheme of the linear isomer n-heptane may be easily found in the literature (e.g., Nehse et al., 1996; Curran et al., 1998; Peters et Paczko, 2002) which allows comparisons with numerical simulations. These are the reasons why heptane was chosen as test fuel in our study.

The breakdown is generated by focusing the output of the second harmonic (532 nm) of a Nd :YAG laser (Continuum Surelite) operating at 10 Hz as a Q-switched nanosecond laser (7 ns) using a 75 mm focal length BK7 lens. The laser energy was controlled by using a pair of glan calcite polarizers which present an extinction ratio of 200000 :1. While maintaining a fixed polarization state, the incident energy was systematically varied by adjusting the relative angle between the two polarizers.

Before starting any set of measurements, the fuel tank was purged and then pressurized with argon. Afterwards, the system was working only by injecting heated air at 473 K during 10 to 15 minutes, with a flow rate of about 20 to 27 g s<sup>-1</sup> in order to preheat the burner. The n-heptane circuit was then purged to avoid creation of bubbles. After a few seconds, the flow rate of the air was set back to 15 g s<sup>-1</sup>, and the temperature was gradually set back to 353 K.

## 7.5 Results

Laser-induced breakdown and ignition are stochastic processes. As shown in figures 7.1 and 7.9, breakdown is not a sufficient condition leading to ignition.



FIG. 7.9: Ignition probability

The probability of obtaining breakdown depends on several parameters, such as the composition and the state of the gas sample, the optical converging system, the wavelength and the power of the laser beam. Too low incident energy will not induced breakdown, while high enough incident energy will produce breakdown with high probability. In real turbulent systems, temperature and composition fluctuation may cause variations in local refractive index. This may be responsible of perturbations in laser beam focusing and thus in ignition conditions itself.

Given the stochastic behavior of breakdown or ignition, some researchers have reported probabilities (Ronney, 1994) for a given measured spark energy, and defined a successful ignition event if the probability to ignite is equal to 50%. We also used this definition in our study. The energy threshold measurements have been achieved as follow. First, according to the cylindrical symmetry of the experiment, only measurements on a quarter of the exit injector were necessary. For fixed coordinates (r, z), the incident laser beam energy was set at its highest energy value (i.e.,  $\sim 90 \text{ mJ}$ ). Ten shots were performed for this energy level. The incident energy was then decreased by a few millijoules and ten new shots were done and so on.

Results of these measurements are shown in figure 7.9 for four axial and four radial coordinates. For all cases a sufficient level of energy could be found to reach ignition. These figures show the ignition probability versus the laser energy for a n-heptane/air mixture ( $\Phi = 1.43$ ) at atmospheric pressure and for air preheated at 353 K. The ignition probability is the number of successful shots leading to ignition divided by the total number of shots. For instance, figure 7.9(a) shows the results for a position of the spark at z = 7 mm for four different radial distances. For a spark located on the axis (r = 0 mm) of the injector, ignition is not possible for energies lower than 55 mJ and unit probability is obtained for energies higher than 70 mJ per pulse. Moreover, the minimum incident ignition energy is approximately 64 mJ.

As expected, ignition probability decreases when approaching the center of the combustion chamber. The probability increases with increasing axial distance from the injector until a nearly constant level between z = 27 and z = 37 mm is reached.



Minimum incident energy vs r

FIG. 7.10: Incident energy threshold

Figure 7.10 gives the energy threshold versus the position of the spark, according to the definition given above. It can be observed, that when the position of the spark moves along the z axis away from the injector exit, the minimum ignition energy decreases. The same can be deduced for the radial direction. In the estimations of minimum ignition energy loss mechanisms such as light emission and acoustic waves have not been taken into account. The (r, z) variations of the minimum ignition energy may be explained by the structure of the flow at the outlet of the lean premixed prevaporized injector. The fuel spray concentration is higher at the injection plane and near the axis, *i.e.*, for small values of r and z. In this area, a larger amount of energy is needed to vaporize the liquid before ignition. For intermediate values of r and z the spray

concentration is optimum, leading to a minimum of energy. Further downstream (*i.e.*, for large values of z and r) the spray concentration decreases and the mixture becomes lean, leading to more difficult ignition and higher energy need. This makes it possible to determine an optimal ignition area in our system, corresponding to approximately z > 25 mm and 10 < r < 20 mm.

For sparks located at a distance of 7 mm from the injector, successful ignitions have been achieved for air temperatures varying from the ambient temperature (303 K) to 395 K. Incident beam energies of about 60-70 mJ were necessary. However, on the lean side ( $\Phi = 0,6-0,72$ ) at 353 K, numerous tests were conducted and no successful ignition was obtained even with laser energies up to 90 mJ, although traditional electric spark ignition was possible. It has to be noted that direct comparison is not relevant. It has to be noted that direct comparisons, for our experimental configuration, are not relevant for the following reasons.



FIG. 7.11: LPP injector + combustion chamber

First, because of optical access difficulty, the laser sparks and the electrical discharge were not located exactly at the same place, and we have shown that minimum ignition energies are sensitive to the spark location. The electrical discharges were generated between the injector and an electrode installed 3 mm away from its outlet, while the nearest location for laser sparks was 7 mm away. The electrical discharges were also very close to the recirculation zone (see figure 7.11) in the shear layer, where the flow velocity is negligible. Then the energy from electrical discharge remains in a region close to the injector and is more favorable to ignition and stabilization of the flame.

Second, the power supply of the electrical spark plug was not designed to provide different tension to the electrodes. It delivered an alternative tension with an effective tension of 7 kV at 50 Hz for a maximum current of 6.3 mA. Since the critical breakdown potential for dry air is 1 kV mm<sup>-1</sup>, an energy of 220 mJ is released in 10 ms, which is much higher than minimum ignition energy. In the present work, the sources of errors can be resolved into three components. The first one is due to fluctuations in the experimental conditions. Second, there is a purely statistical component owing to the limited number of data composing each set of measurements. And third, errors owing to the use of the energy meter. This last component includes errors

related to the frequency (1%), the calibration accuracy (3%), with an additional error due to the working wavelength (4%), and to the uncertainty related to the measurement of the reflexion coefficient of the beamsplitter used. Cautions have been taken to reduce the contribution from systematic errors. As pointed out by Chen et al. (2000), systematic errors can be induced by the pressure perturbation following the breakdown and the presence of residual species within the focal volume of preceding pulses. To prevent pressure perturbation created by the breakdown, all tests were conducted in single shot mode. Moreover, a time of a few minutes between two successive shots was necessary to avoid the presence of remnant species in the focal volume and enable thermal equilibrium recovery in the combustion chamber.



FIG. 7.12: Ignition sequence

The evolution of the ignition process has been visualized by shadowgraphy. For this purpose a sodium vapor lamp has been used for the backlightening of the combustion chamber. The images have been taken with a Kodak high speed CCD camera (600 Hz) on the opposite side of the chamber. In figure 7.12 an example of such an image sequence is shown. In this case, the laser was focussed at r = 0mm and z = 7mm. Laser energy was of 60 mJ, while air preheating temperature was  $T_{air} = 353$  K. At t = 1.6 ms after ignition, a flame kernel has already developed (first image). The flame kernel is then convected downstream while developing, corresponding to a time of t = 3.3 ms and t = 5 ms. At t = 6.66 ms the flame is well developed and fills almost all the combustion chamber, the flame begins to be convected upstream into the recirculation zone surrounding the injector. In the next images, one can see that the combustion zone becomes more homogeneous and fills the complete combustion chamber. Steady combustion is achieved. It has to be noted that this process (flame kernel formation, upstream and downstream convection and final stabilization) is the same in the case of classical electrical spark ignition.

# 7.6 Conclusion

In the present study, it was first demonstrated the possibility to initiate combustion in a realistic lean premixed prevaporized combustor (LPP) using laser spark ignition. The experimental configuration used represents the situation of real systems : air preheating, liquid fuel spray, high level of turbulence and heterogeneous mixture. A sufficient level of laser energy (30-60 mJ/pulse) was available to promote ignition, except in very lean cases. No strong influence of turbulence effects was observed.

Measurements of the absorption coefficients from the laser spark have been achieved. Values within the range of 4 to  $10 \text{ cm}^{-1}$ , depending on the laser energy, have been obtained. In order to estimate these values a new approach has been used to obtain the dimensions of the laser plasma. These values correspond to electronic temperatures of few thousands of kelvin.

Concerning quantitative data, we have found that the typical minimum incident ignition energy level is lying between 30 and 60 mJ per pulse. This minimum energy level strongly depends on the flow structure and fuel mixture. The energy level decreases at places the liquid spray is prevaporized and the mixture conditions are optimum. In our specific configuration, this optimum ignition zone corresponds to z > 25 mm and 10 < r < 20 mm. Flame visualizations show how the flame kernel develops. It is convected downstream and then upstream in a recirculation zone. This behavior is very similar to the one observed in classical spark ignition.

Further studies are required to characterize the influence of the combustion regime. This point is important for practical applications where re-ignition at operating conditions is required. Finally, the effect of pressure should be investigated as long as it plays an important role in ignition kinetics. This last point seems to be very difficult in laboratory scale burners.

## CHAPITRE 8

#### CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Au cours de notre étude, nous avons caractérisé l'allumage par claquage laser de divers types de combustibles. Cette caractérisation a été menée du point de vue paramétrique, tenant compte des différents phénomènes physiques et chimiques intervenant dans le processus d'allumage. L'analyse physique des phénomènes observés, et qui ont été présentés au cours de ce travail, donne une description depuis les premiers instants du dépôt d'énergie (quelques nanosecondes) jusqu'aux premiers instants de la stabilisation d'une flamme (quelques millisecondes).

Nous avons observé l'évolution d'un plasma initialement très chaud, vers des états de composition et de température nécessaires à l'enclenchement des réactions de combustion. Nous avons basé notre étude sur l'utilisation de nombreuses techniques optiques d'observation qualitatives et sur des mesures quantitatives.

Nous avons utilisé la spectroscopie d'émission résolue en temps pour étudier l'évolution temporelle de la densité et de la température électronique d'un plasma d'air créé par la focalisation d'un rayonnement laser à 355 nm. Nous avons montré que, pendant les premières ns qui suivent la création de l'étincelle, le spectre consiste essentiellement en un contiuum d'émission dû aux recombinaisons électron-ion et au bremsstrahlung et que l'apparition des premières raies atomiques se faisait assez rapidement (12 ns).

La détermination de la température électronique du plasma a été réalisée à partir des mesures d'intensités de raies intégrées de l'oxygène (715.7 et 777.4 nm). Nous avons montré qu'aux premiers instants, la température électronique avoisine les 30000 K avant de décroître exponentiellement vers les 12000 K, 2.5 µs plus tard. L'ordre de grandeur des températures et l'évolution temporelle sont en bon accord avec ceux que l'on peut trouver dans la littérature.

La caractérisation en densité électronique a été réalisée à partir des raies d'hydrogène. Nous avons montré que la densité électronique décroît également exponentiellement à partir d'une valeur de  $1.2 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> pour finir à  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> après 3 µs. D'autre part, nous avons montré que la densité électronique est liée à la température électronique par une loi du type  $n_e \propto T^{1/(\gamma-1)}$ . Cette relation nous indique que l'expansion du plasma, suite au claquage, se déroule globalement à chimie figée et de façon isentropique, avec un rapport des chaleurs spécifiques égal à  $1.2\pm 0.1$ .

Nous avons montré que l'absorption de l'énergie laser commence immédiatement après le claquage et que plus de 15 à 20% de l'énergie incidente est directement absorbé. Cette absorption relativement importante de l'énergie, pour des valeurs légèrement supérieures au seuil de claquage, nous indique que le chauffage des électrons par le bremsstrahlung inverse est un processus important pour le chauffage et l'ionisation du plasma. Nous avons également montré que l'énergie transmise augmente lorsque l'énergie incidente augmente. Cela peut s'expliquer par une saturation du plasma dans le volume de focalisation. Nous avons observé trois régions caractéristiques, très différentes, sur les courbes d'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente. La première région correspond au cas où toute l'énergie incidente est transmise; aucune absorption n'a lieu. Dans le cas d'un rayonnement de 355 nm focalisé à l'aide d'une lentille plano-convexe de 50 mm, nous avons montré que cette région se situe entre 0 mJ et 25 mJ. Pour des énergies incidentes supérieures à 34 mJ, toutes les impulsions rendent le milieu conducteur et subissent une très forte absorption ( $\geq 50\%$ ). Le claquage se produit de façon aléatoire dans la région intermédiaire.

Concernant l'allumage de mélanges méthane/air, nous avons montré la possibilité d'initier les réactions de combustion dans le cas d'un écoulement laminaire. Les énergies minimums obtenues sont d'un ordre de grandeur supérieure à celles trouvées dans le cas de l'allumage traditionnel. Aucune différence notable des énergies minimums n'a été observée aux différentes longueurs d'ondes (355, 532 et 1064 nm) et avec les différentes lentilles utilisées (50, 100 et 150 mm). Bien que ces propriétés influencent le seuil de claquage, une fois que celui-ci est atteint, l'allumage ne dépend plus que de la quantité d'énergie déposée dans le milieu. Les courbes d'énergie minimum en fonction de la richesse sont relativement similaires à celles obtenues avec un système d'électrodes. Du côté des mélanges riches, nous disposions toujours d'une énergie suffisante pour provoquer l'allumage du mélange. Pour les mélanges pauvres, en-deçà d'une richesse de 0.7, il nous a été impossible d'allumer. Nous avons là une grande différence avec l'allumage classique pour lequel la limite d'inflammabilité basse correspond à une richesse de 0.5. Nous avons également démontré, par une telle étude paramètrique, qu'une densité de puissance optimale existe ; au-delà de cette valeur l'onde de choc émise et la turbulence induite par le dépôt d'énergie, peuvent perturber la naissance et la propagation de la flamme.

Dans le cas de l'allumage d'un nuage de gouttelettes, nous avons également démontré la possibilité d'allumer. Ces expériences ont ete faites à l'aide d'un laser impulsionnel dont le rayonnement se situe dans l'infrarouge. Nous avons montré que le seuil de claquage en présence de gouttes se voyait réduit considérablement. Deux combustibles liquides ont été étudiés, le n-heptane et le JP4. Dans les deux cas, l'énergie minimum incidente produisant l'allumage des mélanges varie de 16 à 30 mJ. Nous avons également montré que la méthode généralement utilisé pour mesurer les énergies minimums d'allumage pouvait conduire à des incertitudes très importantes.

Les isophotes que nous avons présentées aux figures 4.6 et 4.7 démontrent le rôle important joué par les aberrations sphériques primaires sur la détermination de la distribution d'intensité au point focal. Ces courbes permettent de connaître la valeur absolue de l'irradiance en n'importe quel point. Elles montrent que lorsque l'intensité nécessaire est très importante, l'utilisation de lentilles ayant une faible fonction d'aberration se révèle être nécessaire. Dans ce cas, la région focale est bien localisée et la distribution d'intensité est symétrique par rapport au plan focal. Les maxima secondaires sur et en dehors de l'axe sont soit inexistants, soit possèdent des intensités complètement négligeables.

À côté de cela, les lentilles possèdant des aberrations plus importantes, présentent une distribution d'intensité complètement asymétrique. La structure est rendue plus compliquée par l'ampleur de la région dans laquelle les maxima secondaires deviennent importants.

Cette étude montre également que toute tentative pour augmenter l'intensité du faisceau laser focalisé en augmentant le diamètre du faisceau incident se révèle infructueuse au-delà de la limite définie par  $\Phi_{max} \sim \lambda$ . Lorsque les aberrations sont plus importantes, l'énergie se distribue dans un volume focal plus grand. Dans le cas des lasers monomodes, on aboutit à une distribution d'intensité axiale presque constante.

L'expression communément utilisée pour calculer la longueur de la région focale,  $l = 2(\sqrt{2} - 1)f^2\theta/D$ , n'est applicable que lorsque  $\Phi_{\max}$  est très petit. Lorsque  $\Phi_{\max}$  est plus grand d'environ une fois la longueur d'onde, la longueur l augmente avec le diamètre du faisceau incident, D, au lieu de diminuer en 1/D. On aboutit à des comportements identiques lorsqu'on étudie le comportement du rayon de focalisation. Une conséquence très importante de cette dernière remarque est que, lorsque  $\Phi_{\max} \ge \lambda$ , l'expression usuellement utilisée conduit à une surestimation de l'irradiance au point focal en sous- estimant la section du faisceau focalisé. Il est donc nécéssaire non seulement de préciser le type de rayonnement et sa durée, mais également de bien caractériser les aberrations du système optique utilisé.

Un modèle a été développé pour calculer l'évolution de la densité électronique durant l'impulsion. Nous avons tenu compte simultanément de l'ionisation multiphotonique et de l'ionisation par collision électronique. Les transitions multiphotoniques ont été incorporées dans ce formalisme en utilisant la théorie de l'ionisation multiphotonique développé par Keldysh (1965).

Nous avons montré que, dans le cas des impulsions nanosecondes, la génération d'électrons libres est initiée par des transitions multiphotoniques. Pour une lentille de 50 mm de focale, nous avons démontré que l'ionisation multiphotonique pilote, à elle seule, l'évolution de la concentration électronique lorsque la longueur d'onde du rayonnement laser est inférieure à une certaine valeur. Dans notre cas, nous avons montré que cette longueur d'onde se situe aux environs de 700 nm. Au-delà de 700 nm, l'évolution de la densité électronique est dominée par le phénomène de cascade dès l'apparition du premier électron libre.

Le seuil de claquage se détermine en requérant qu'un certain degré d'ionisation soit atteint avant la fin de l'impulsion. Nous avons adopté, dans notre approche, le critère proposé par Phelps (1966) et qui consiste à considérer que le claquage correspond à l'ionisation de 0.1% des particules du gaz. Nous avons trouvé un accord qualitatif et quantitatif relativement bon entre les valeurs prédites et celles mesurées. Cette remarque est toutefois à prendre avec beaucoup de précaution vu l'incertitude liée à la connaissance des sections efficaces de collisions utilisées.

Notre modèle prédit également une dépendance entre le seuil de claquage et la distance focale beaucoup plus forte lorsque le rayonnement se situe dans l'infrarouge. Nous avons vu qu'il peut exister un facteur 4 entre les seuils de claquage obtenus à 1064 nm et ceux déterminés à 355 ou 532 nm. Une confirmation expérimentale de ce résultat reste encore à apporter. À côté de cela, nous avons déterminé l'évolution de l'énergie absorbée en fonction de l'énergie incidente. Bien que cette évolution nous permette de justifier la cohérence du critère de Phelps (1966), nous avons obtenu un comportement s'écartant largement de celui obtenu expérimentalement. Les incertitudes entachant les valeurs des constantes utilisées ainsi que l'usage d'une énergie électronique moyenne constante sont à l'origine de cet écart.

Nous avons présenté des images résolues temporellement de l'évolution du noyau d'allumage initié par une étincelle laser pour des mélanges de méthane/air. La fluorescence induite par laser nous a permis de suivre spatialement et temporellement la production du radical OH dans le cas d'un allumage réussi ou avorté. Nous avons montré que la zone de réaction croît rapidement aux premiers instants. La propagation du noyau est ensuite ralentie à mesure que la densité d'énergie comprise dans le noyau de flamme diminue. Contrairement à l'évolution du noyau dans le cas d'un allumage par électrodes, on a pu observer une expansion anisotropique de l'étincelle et ensuite de la flamme. Cette dernière a tendance à évoluer dans la direction opposée à la direction de propagation du rayonnement laser. Les essais d'allumage fructueux et infructueux ne présentent pas de différences pour les temps inférieurs à 100  $\mu$ s. Ces différences apparaissent 100 à 500  $\mu$ s après la création de l'étincelle.

Enfin, dans la dernière partie, nous avons démontré la faisabilité d'initier les réactions de combustion dans une configuration plus réaliste, c'est-à-dire à la sortie d'un injecteur prémélangé, prévaporisé pauvre, à l'aide d'une étincelle laser. La configuration expérimentale utilisée a été choisie pour représenter la situation existant dans les systèmes réels, c'est-à-dire que l'air était préchauffé, le combustible (n-heptane) était injecté sous la forme d'un nuage de gouttes, le mélange se faisait de manière hétérogène, et l'écoulement était fortement turbulent. Nous avons pu montrer que l'allumage pouvait être réalisé dans toutes les conditions à l'aide d'impulsions dont l'énergie était comprise entre 30 et 60 mJ. D'un autre côté, l'allumage s'est révélé impossible pour des richesses faibles. Nous n'avons pas observé de conséquence importante due à la turbulence de l'écoulement. En revanche, nous avons montré que l'énergie minimum d'allumage dépend fortement de la structure de l'écoulement.

Les phénomènes physiques impliqués dans l'allumage laser sont très complexes et font appel, comme nous l'avons vu, à l'interaction rayonnement-matière, à la physique des plasmas, et à la physique des transferts qui couvrent ces deux grands domaines de la physique des milieux réactifs. S'agissant de l'allumage des écoulements réactifs, on peut encore distinguer le domaine des écoulements laminaires et turbulents.

Traiter des phénomènes couplés, tel que nous venons de citer, est très complexe et il serait utopique d'imaginer pouvoir répondre à toutes les questions au cours du déroulement d'une thèse. De nombreuses questions restent à explorer, et d'autres demandent une attention toute particulière.

À ce titre, et comme nous l'avons déjà souligné dans l'introduction, une meilleure maîtrise du dépôt de l'énergie, au sein du milieu réactif, nous permettrait de diminuer le rapport de la surface au volume du noyau d'allumage, et ainsi optimiser l'allumage dans les régimes pauvres.

Nous avons, au cours de notre travail, commencé à mettre en place les outils nécessaires à l'exploration de cette piste. Néanmoins, une modélisation beaucoup plus fine de la création et du développement de l'étincelle laser demande une prise en compte, à côté de l'hydrodynamique de l'écoulement, du rayonnement du plasma.

De même, nous avons montré que lors de l'allumage, après la création de l'étincelle laser, le noyau d'allumage se développe rapidement anisotropiquement. Cette expansion s'accompagne de la propagation d'une onde de Taylor. Suite au passage de cette onde de choc, le gaz s'échauffe et les réactions de combustion peuvent démarrer lorsque la température du gaz atteint la température d'allumage. En se basant sur ce mécanisme, certains chercheurs mettent en avant le fait que l'apparition du troisième lobe, lors de la phase d'expansion, s'accompagne d'une génération rapide de l'aire de la surface de flamme. Cet accroissement de surface est associé à un taux d'étirement pouvant être très élevé, et qui freinerait la propagation de la flamme. Ce processus rend l'allumage moins efficace pour des mélanges proches de la limite d'inflammabilté pauvre. D'un autre côté, d'autres chercheurs pensent que, comme l'allumage est dû au gaz chaud persistant après l'expansion de l'étincelle, sous certaines conditions, tel qu'un très fort taux de turbulence ou dans des écoulements rapides, le gaz chaud peut se dissiper avant de chauffer suffisamment le mélange pour l'allumer. Une avancée importante dans la compréhension de l'allumage laser par claquage non-résonant se réaliserait si nous pouvions apporter des arguments pour étayer l'un de ces scénarii.

# ANNEXE A

# ÉNERGIES D'ALLUMAGE POUR DES MÉLANGES DE MÉTHANE/AIR

		A	llumage				Ac	crochage		
Φ	Einc	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	Einc	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs
0.8	6.337	6.690	0.165	0.218	0	6.337	6.690	0.165	0.218	0
	7.465	6.587	_	_	1	7.465	6.587	_	_	1
	7.471	6.630	0.053	0.339	3	7.471	6.630	0.053	0.339	3
	8.424	7.394	0.116	0.493	16	8.443	7.750	_	_	1
	9.771	7.879	0.130	0.502	18	9.744	7.805	0.083	0.502	7
	11.434	8.416	0.176	0.450	19	11.404	8.352	0.098	0.604	6
	12.783	8.925	0.192	0.471	20	12.794	8.734	0.166	0.487	8
	14.233	9.261	0.218	0.466	20	14.168	9.076	0.234	0.401	11
	15.531	10.074	0.216	0.324	20	15.617	10.058	0.190	0.332	8
	16.882	10.501	0.325	0.569	20	16.970	10.482	0.356	0.538	13
	19.295	11.101	0.405	0.573	20	19.378	11.022	0.338	0.600	15
	20.734	11.469	0.424	0.748	20	20.703	11.545	0.365	0.754	13
	22.869	11.849	0.237	0.927	19	22.848	11.810	0.240	0.936	16
	25.327	12.606	0.370	1.185	20	25.245	12.421	0.285	1.055	18
	26.961	13.801	0.484	1.146	20	26.976	13.655	0.507	1.096	18
	28.796	13.187	0.451	1.172	20	28.796	13.187	0.451	1.172	20
	30.478	13.697	0.459	1.847	20	30.478	13.697	0.459	1.847	20
0.9	3.781	3.972	0.080	0.158	0	3.781	3.972	0.080	0.158	0
	4.812	5.128	0.079	0.224	0	4.812	5.128	0.079	0.224	0
	6.069	6.432	0.080	0.120	0	6.069	6.432	0.080	0.120	0
	7.531	6.566	0.178	0.216	6	7.531	6.566	0.178	0.216	6
	8.418	7.198	0.142	0.361	15	8.418	7.198	0.142	0.361	15
	9.112	7.556	0.171	0.353	20	9.112	7.556	0.171	0.353	20
	10.193	7.769	0.148	0.409	20	10.193	7.769	0.148	0.409	20
1.0	4.497	4.740	0.083	0.148	0	4.497	4.740	0.083	0.148	0
	4.856	5.128	0.073	0.101	0	4.856	5.128	0.073	0.101	0
	5.483	5.825	0.119	0.129	0	5.483	5.825	0.119	0.129	0
	6.195	6.439	0.087	0.246	0	6.195	6.439	0.087	0.246	0
	6.831	7.233	0.000	0.000	0	6.831	7.233	0.000	0.000	0
	7.483	6.329	0.024	0.183	3	7.483	6.329	0.024	0.183	3
	8.226	7.071	0.086	0.254	12	8.226	7.071	0.086	0.254	12
	8.817	7.431	0.156	0.266	15	8.817	7.431	0.156	0.266	15
	9.562	7.663	0.176	0.352	18	9.562	7.663	0.176	0.352	18
	10.687	8.182	0.200	0.284	20	10.687	8.182	0.200	0.284	20

TAB. A.1 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 355$ nm, f = 50mm).

		Ai	lumage				Ac	crochage		
Φ	Einc	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	11.440	8.473	0.255	0.459	20	11.440	8.473	0.255	0.459	20
1.1	4.322	4.579	0.084	0.155	0	4.322	4.579	0.084	0.155	0
	5.117	5.386	0.096	0.153	0	5.117	5.386	0.096	0.153	0
	6.011	6.303	0.120	0.181	0	6.011	6.303	0.120	0.181	0
	6.945	6.994	0.177	0.399	0	6.945	6.994	0.177	0.399	0
	7.740	6.587	0.000	0.000	1	7.740	6.587	0.000	0.000	1
	8.666	6.975	0.000	0.000	1	8.666	6.975	0.000	0.000	1
	9.376	7.319	0.203	0.265	12	9.376	7.319	0.203	0.265	12
	9.828	7.571	0.141	0.460	13	9.828	7.571	0.141	0.460	13
	10.247	7.856	0.183	0.314	17	10.247	7.856	0.183	0.314	17
	11.294	8.337	0.172	0.474	20	11.294	8.337	0.172	0.474	20
	12.303	8.673	0.171	0.340	20	12.303	8.673	0.171	0.340	20
1.2	5.104	4.105	0.100	0.102	0	5.104	4.105	0.100	0.102	0
	5.889	4.730	0.070	0.095	0	5.889	4.730	0.070	0.095	0
	6.698	5.200	0.121	0.281	0	6.698	5.200	0.121	0.281	0
	7.529	5.345	0.115	0.338	0	7.529	5.345	0.115	0.338	0
	8.454	5.485	0.151	0.334	0	8.454	5.485	0.151	0.334	0
	9.658	5.805	0.230	0.225	0	9.658	5.805	0.230	0.225	0
	10.776	5.955	0.142	0.256	0	10.776	5.955	0.142	0.256	0
	11.840	6.550	0.026	0.150	2	11.840	6.550	0.026	0.150	2
	13.617	6.886	0.207	0.366	14	13.617	6.886	0.207	0.366	14
	15.192	7.495	0.185	0.286	19	15.192	7.495	0.185	0.286	19
	16.614	7.750	0.275	0.466	20	16.614	7.750	0.275	0.466	20
	18.752	8.305	0.345	0.563	20	18.752	8.305	0.345	0.563	20
1.3	5.502	4.450	0.097	0.102	0	5.502	4.450	0.097	0.102	0
	6.723	5.130	0.112	0.348	0	6.723	5.130	0.112	0.348	0
	7.579	5.190	0.122	0.291	0	7.579	5.190	0.122	0.291	0
	8.633	5.455	0.142	0.315	0	8.633	5.455	0.142	0.315	0
	10.268	5.850	0.137	0.299	0	10.268	5.850	0.137	0.299	0
	11.646	6.265	0.276	0.213	0	11.646	6.265	0.276	0.213	0
	13.989	6.815	0.222	0.259	0	13.989	6.815	0.222	0.259	0
	15.671	7.555	0.258	0.406	0	15.671	7.555	0.258	0.406	0
	17.332	8.160	0.196	0.479	0	17.332	8.160	0.196	0.479	0
	19.237	8.195	0.316	0.451	0	19.237	8.195	0.316	0.451	0
	21.256	8.633	0.091	0.330	3	21.256	8.633	0.091	0.330	3
	23.640	9.180	0.529	0.613	10	23.640	9.180	0.529	0.613	10
	25.223	9.154	0.339	1.043	13	25.223	9.154	0.339	1.043	13
	26.500	10.061	0.441	1.018	18	26.500	10.061	0.441	1.018	18
	27.880	9.921	0.535	1.027	19	27.880	9.921	0.535	1.027	19
	29.606	10.400	0.379	1.188	19	29.606	10.400	0.379	1.188	19
	32.070	9.950	0.459	1.321	20	32.070	9.950	0.459	1.321	20
	35.622	11.420	0.624	1.409	20	35.622	11.420	0.624	1.409	20
1.4	8.415	5.315	0.153	0.280	0	8.415	5.315	0.153	0.280	0

		Ai	llumage				Ace	crochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	9.622	5.640	0.179	0.254	0	9.622	5.640	0.179	0.254	0
	10.456	5.915	0.190	0.360	0	10.456	5.915	0.190	0.360	0
	12.559	6.530	0.237	0.329	0	12.559	6.530	0.237	0.329	0
	14.132	6.810	0.236	0.373	0	14.132	6.810	0.236	0.373	0
	16.254	7.520	0.295	0.354	0	16.254	7.520	0.295	0.354	0
	18.251	8.385	0.226	0.567	0	18.251	8.385	0.226	0.567	0
	20.946	8.880	0.339	0.617	0	20.946	8.880	0.339	0.617	0
	24.404	9.420	0.396	0.796	0	24.404	9.420	0.396	0.796	0
	27.182	9.615	0.503	0.958	0	27.182	9.615	0.503	0.958	0
	31.345	10.770	0.554	1.395	0	31.345	10.770	0.554	1.395	0
	34.825	11.015	0.581	1.507	0	34.825	11.015	0.581	1.507	0
	39.189	11.515	0.652	1.945	0	39.189	11.515	0.652	1.945	0
	44.470	12.155	0.624	2.332	0	44.470	12.155	0.624	2.332	0
	52.126	12.850	0.343	1.550	2	52.126	12.850	0.343	1.550	2
	58.162	12.040	0.617	2.706	5	58.162	12.040	0.617	2.706	5
	65.501	12.250	1.012	2.569	10	65.501	12.250	1.012	2.569	10
	70.768	13.643	0.866	2.836	14	70.768	13.643	0.866	2.836	14
	74.951	13.789	0.975	3.216	18	74.951	13.789	0.975	3.216	18
	80.389	14.194	1.163	3.918	17	80.389	14.194	1.163	3.918	17
	85.770	14.500	1.970	2.886	19	85.770	14.500	1.970	2.886	19
	91.779	14.555	1.260	3.561	20	91.779	14.555	1.260	3.561	20
	94.256	14.245	1.381	3.043	20	94.256	14.245	1.381	3.043	20

		A	llumage				Ace	crochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	10.970	8.812	0.218	0.188	0	10.970	8.812	0.218	0.188	0
	12.335	9.927	0.456	0.390	0	12.335	9.927	0.456	0.390	0
	14.124	11.376	0.393	0.329	0	14.124	11.376	0.393	0.329	0
	17.500	14.126	0.358	0.303	0	17.500	14.126	0.358	0.303	0
	20.560	16.604	0.486	0.407	0	20.560	16.604	0.486	0.407	0
	23.723	18.992	0.587	0.653	0	23.723	18.992	0.587	0.653	0
	28.991	21.100	0.483	1.191	8	28.982	21.300	0.533	1.095	5
	32.549	22.829	0.671	1.237	17	33.059	22.060	0.747	1.348	5
	36.081	23.163	1.026	1.626	19	36.317	22.740	1.200	1.430	10
	40.732	$22 \cdot 800$	0.998	2.301	20	40.595	22.600	1.182	2.449	12
	44.676	24.225	1.137	2.289	20	44.799	24.087	1.133	2.308	15
	48.491	23.200	1.403	2.316	20	48.795	22.843	1.485	2.462	14
	52.912	21.958	0.859	1.888	19	52.905	21.515	0.640	1.875	13
	56.379	23.330	1.136	2.257	20	56.404	23.650	1.152	2.091	18
	61.463	22.585	1.167	2.661	20	61.407	22.131	1.183	2.507	16
	65.546	23.511	1.713	2.186	19	65.663	23.367	1.684	2.157	18
	68.416	23.885	1.670	1.808	20	68.416	23.885	1.670	1.808	20
	71.340	24.120	1.609	1.644	20	71.236	24.239	1.652	1.685	18
	17.747	14.610	0.370	0.324	0	17.747	14.610	0.370	0.324	0
	20.405	16.000	0.000	0.000	1	20.405	16.000	0.000	0.000	1
	24.031	19.820	0.556	0.630	0	24.031	19.820	0.556	0.630	0
	27.533	20.300	0.549	1.234	7	27.533	20.300	0.549	1.234	7
	30.552	21.182	0.592	1.801	17	30.552	21.182	0.592	1.801	17
	33.653	22.053	0.515	1.760	19	33.653	22.053	0.515	1.760	19
	35.691	21.405	0.626	1.358	20	35.691	21.405	0.626	1.358	20
	17.927	13.980	5.499	1.235	0	17.927	13.980	5.499	1.235	0
	20.216	15.870	4.971	0.798	0	20.216	15.870	4.971	0.798	0
	22.805	16.400	0.000	0.000	1	22.805	16.400	0.000	0.000	1
	23.834	17.075	0.437	0.512	4	23.834	17.075	0.437	0.512	4
	26.235	19.200	0.343	0.900	2	26.235	19.200	0.343	0.900	2
	29.739	19.287	0.562	1.043	16	29.739	19.287	0.562	1.043	16
	32.596	20.675	0.630	1.764	20	32.596	20.675	0.630	1.764	20
	35.237	20.345	0.746	1.604	20	35.237	20.345	0.746	1.604	20
	19.616	16.110	0.353	0.296	0	19.616	16.110	0.353	0.296	0
	22.077	18.055	0.453	0.771	0	22.077	18.055	0.453	0.771	0
	25.034	16.100	0.171	0.700	2	25.034	16.100	0.171	0.700	2
	27.521	17.367	0.353	1.103	6	27.521	17.367	0.353	1.103	6
	30.007	18.329	0.608	0.944	7	30.007	18.329	0.608	0.944	7
	33.044	19.243	0.363	1.479	14	33.044	19.243	0.363	1.479	14
	36.027	19.894	0.700	1.727	18	36.027	19.894	0.700	1.727	18
	39.592	19.060	0.926	2.522	20	39.592	19.060	0.926	2.522	20
	44.565	19.665	1.058	1.312	20	44.565	19.665	1.058	1.312	20

TAB. A.2 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 355$ nm, f = 100mm).

		A	llumage				Ace	crochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\mathrm{tr}}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	18.930	14.835	5.699	1.528	0	18.930	14.835	5.699	1.528	0
	19.925	16.370	0.280	0.298	0	19.925	16.370	0.280	0.298	0
	21.828	17.510	0.589	0.803	0	21.828	17.510	0.589	0.803	0
	23.766	18.855	0.340	1.118	0	23.766	18.855	0.340	1.118	0
	26.801	19.125	0.509	1.394	0	26.801	19.125	0.509	1.394	0
	28.927	19.305	0.604	1.455	0	28.927	19.305	0.604	1.455	0
	34.980	22.000	0.514	1.300	2	34.980	22.000	0.514	1.300	2
	32.931	18.775	0.504	1.839	0	32.931	18.775	0.504	1.839	0
	32.751	19.800	0.000	0.000	1	32.751	19.800	0.000	0.000	1
	39.344	18.091	0.587	1.773	11	39.344	18.091	0.587	1.773	11
	42.696	18.420	0.804	2.153	15	42.696	18.420	0.804	2.153	15
	45.001	19.578	1.253	1.580	18	45.001	19.578	1.253	1.580	18
	47.771	19.870	0.875	2.003	20	47.771	19.870	0.875	2.003	20
	50.223	19.945	0.840	1.367	20	50.223	19.945	0.840	1.367	20
	32.605	19.345	0.524	1.462	0	32.605	19.345	0.524	1.462	0
	36.077	19.525	0.605	2.250	0	36.077	19.525	0.605	2.250	0
	39.146	19.185	0.711	2.347	0	39.146	19.185	0.711	2.347	0
	41.041	19.330	0.595	2.002	0	41.041	19.330	0.595	2.002	0
	44.196	20.445	0.620	1.313	0	44.196	20.445	0.620	1.313	0
	48.183	19.305	0.837	2.230	0	48.183	19.305	0.837	2.230	0
	52.084	19.455	1.114	2.419	0	52.084	19.455	1.114	2.419	0
	58.471	19.150	0.514	1.750	2	58.471	19.150	0.514	1.750	2
	61.129	19.100	0.086	1.005	4	61.129	19.100	0.086	1.005	4
	64.515	21.150	1.690	0.753	4	64.515	21.150	1.690	0.753	4
	68.073	19.850	0.659	1.982	8	68.073	19.850	0.659	1.982	8
	72.500	20.809	1.197	1.654	11	72.500	20.809	1.197	1.654	11
	76.210	21.045	1.159	2.512	11	76.210	21.045	1.159	2.512	11
	76.475	21.062	0.995	2.696	13	76.475	21.062	0.995	2.696	13
	84.946	21.607	1.019	1.450	15	84.946	21.607	1.019	1.450	15
	88.384	21.230	1.484	1.930	20	88.384	21.230	1.484	1.930	20
	92.224	21.070	1.407	2.125	20	92.224	21.070	1.407	2.125	20

		Al	lumage				Acc	rochage		
Φ	Einc	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	25.092	20.253	0.363	0.287	0	25.092	20.253	0.363	0.287	0
	30.064	24.300	0.583	0.467	0	30.064	24.300	0.583	0.467	0
	34.877	28.340	0.633	0.479	0	34.877	28.340	0.633	0.479	0
	39.043	31.735	0.420	0.393	0	39.043	31.735	0.420	0.393	0
	45.079	36.550	0.934	0.834	0	45.079	36.550	0.934	0.834	0
	50.069	38.000	0.000	0.000	1	50.832	40.880	0.839	1.138	0
	57.031	43.620	0.771	0.768	5	58.814	44.600	0.000	0.000	1
	61.323	44.627	1.256	2.743	11	60.614	41.825	1.468	2.747	4
	65.362	47.944	1.035	1.580	16	64.815	48.250	0.171	1.250	2
	70.917	48.912	0.706	3.539	17	70.798	48.300	0.822	3.125	9
	74.846	49.450	1.392	4.025	18	75.465	48.322	1.253	4.607	9
	79.013	50.385	1.040	3.617	20	78.933	50.683	1.044	3.884	12
	85.148	51.479	1.249	5.220	19	85.236	50.964	1.339	6.046	11
	88.984	51.295	1.410	3.578	20	88.907	50.514	1.364	3.702	14
	93.162	50.437	1.474	2.908	19	93.588	50.547	1.321	3.121	15
	95.877	51.975	1.639	5.253	20	95.627	52.062	1.726	5.434	13
	99.169	52.280	1.594	4.185	20	99·212	52.273	1.714	4.419	15
	101.878	52.775	1.561	4.218	20	101.943	52.353	1.641	4.214	17
	104.553	52.535	1.854	4.268	20	104.585	52.131	1.789	4.159	16
	106.371	54.660	1.378	3.532	20	106.320	54.232	1.396	3.076	19
	107.554	52.765	1.557	5.697	20	107.368	52.022	1.307	5.526	18
	107.134	53.500	1.891	3.495	20	107.179	53.506	1.791	3.589	16
	31.199	25.970	0.474	0.406	0	31.199	25.970	0.474	0.406	0
	34.868	29.145	0.403	0.315	0	34.868	29.145	0.403	0.315	0
	39.995	33.460	0.646	0.537	0	39.995	33.460	0.646	0.537	0
	45.576	38.065	0.465	0.403	0	45.576	38.065	0.465	0.403	0
	51.469	40.033	0.589	1.552	6	51.469	40.033	0.589	1.552	6
	55.446	42.264	0.556	1.487	14	55.446	42.264	0.556	1.487	14
	58.653	44.488	0.852	1.426	16	58.653	44.488	0.852	1.426	16
	62.300	44.672	1.121	3.183	18	62.300	44.672	1.121	3.183	18
	66.882	45.779	0.815	3.475	19	66.882	45.779	0.815	3.475	19
	71.264	48.044	1.160	3.329	18	71.264	48.044	1.160	3.329	18
	76.492	48.880	1.248	4.177	20	76.492	48.880	1.248	4.177	20
	82.331	48.775	1.314	5.766	20	82.331	48.775	1.314	5.766	20
	38.855	32.345	0.597	0.531	0	38.855	32.345	0.597	0.531	0
	42.327	35.250	0.748	0.682	0	42.327	35.250	0.748	0.682	0
	47.325	31.400	0.000	0.000	1	47.325	31.400	0.000	0.000	1
	52.727	39.875	0.670	0.855	4	52.727	39.875	0.670	0.855	4
	56.913	42.675	0.821	1.719	12	56.913	42.675	0.821	1.719	12
	58.874	42.882	1.131	2.803	17	58.874	42.882	1.131	2.803	17
	61.752	45.993	1.011	2.381	15	61.752	45.993	1.011	2.381	15
	67.559	45.970	1.074	3.314	20	67.559	45.970	1.074	3.314	20

TAB. A.3 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 355$ nm, f = 150mm).

		A	llumage				Ace	crochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs
	73.363	46.000	1.347	4.089	20	73.363	46.000	1.347	4.089	20
	32.373	26.630	0.471	0.435	0	32.373	26.630	0.471	0.435	0
	36.283	29.915	0.744	0.695	0	36.283	29.915	0.744	0.695	0
	40.758	33.680	0.667	0.579	0	40.758	33.680	0.667	0.579	0
	45.508	37.590	0.738	0.599	0	45.508	37.590	0.738	0.599	0
	52.641	40.400	0.000	0.000	1	52.641	40.400	0.000	0.000	1
	53.498	39.550	0.581	1.152	4	53.498	39.550	0.581	1.152	4
	58.704	41.971	1.056	3.199	14	58.704	41.971	1.056	3.199	14
	62.380	44.667	0.901	1.553	15	62.380	44.667	0.901	1.553	15
	65.471	43.271	1.509	3.641	17	65.471	43.271	1.509	3.641	17
	69.462	46.595	1.241	2.512	20	69.462	46.595	1.241	2.512	20
	73.492	47.335	1.214	4.117	20	73.492	47.335	1.214	4.117	20
	37.260	30.505	0.651	0.585	0	37.260	30.505	0.651	0.585	0
	40.432	33.075	0.839	0.758	0	40.432	33.075	0.839	0.758	0
	43.562	35.705	0.785	0.664	0	43.562	35.705	0.785	0.664	0
	47.908	39.065	0.736	0.664	0	47.908	39.065	0.736	0.664	0
	51.826	41.590	1.001	1.198	0	51.826	41.590	1.001	1.198	0
	55.813	39.450	0.257	0.750	2	55.813	39.450	0.257	0.750	2
	59.980	40.860	1.059	0.946	5	59.980	40.860	1.059	0.946	5
	64.987	43.585	0.824	3.409	13	64.987	43.585	0.824	3.409	13
	68.633	44.567	1.250	2.911	15	68.633	44.567	1.250	2.911	15
	72.884	46.341	1.405	3.207	17	72.884	46.341	1.405	3.207	17
	79.009	47.122	1.648	5.280	18	79.009	47.122	1.648	5.280	18
	83.198	46.532	1.853	3.764	19	83.198	46.532	1.853	3.764	19
	88.152	46.345	1.585	3.170	20	88.152	46.345	1.585	3.170	20
	39.884	32.680	0.691	0.502	0	39.884	32.680	0.691	0.502	0
	43.947	35.835	0.981	0.920	0	43.947	35.835	0.981	0.920	0
	48.380	39.405	1.255	1.010	0	48.380	39.405	1.255	1.010	0
	52.812	41.635	1.058	1.465	0	52.812	41.635	1.058	1.465	0
	57.271	41.800	0.000	0.000	1	57.271	41.800	0.000	0.000	1
	59.903	42.765	1.525	3.226	0	59.903	42.765	1.525	3.226	0
	63.958	43.050	0.000	0.150	2	63.958	43.050	0.000	0.150	2
	70.102	40.950	1.563	3.416	6	70.102	40.950	1.563	3.416	6
	72.703	42.343	1.372	4.788	7	72.703	42.343	1.372	4.788	7
	75.275	40.143	1.335	2.978	7	75.275	40.143	1.335	2.978	7
	80.837	43.500	1.799	2.399	16	80.837	43.500	1.799	2.399	16
	83.795	47.325	1.359	3.778	16	83.795	47.325	1.359	3.778	16
	88.155	45.147	1.333	4.261	17	88.155	45.147	1.333	4.261	17
	92.139	47.310	1.975	4.378	20	92.139	47.310	1.975	4.378	20
	95.980	46.920	1.932	5.649	20	95.980	46.920	1.932	5.649	20
	38.769	31.780	0.765	0.668	0	38.769	31.780	0.765	0.668	0
	42.378	34.710	0.812	0.731	0	42.378	34.710	0.812	0.731	0
	46.048	37.490	1.080	1.129	0	46.048	37.490	1.080	1.129	0

		Al	lumage				Acc	rochage		
Φ	$E_{inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\mathrm{tr}}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	50.858	40.465	1.049	1.711	0	50.858	40.465	1.049	1.711	0
	54.939	42.130	0.930	2.353	0	54.939	42.130	0.930	2.353	0
	56.928	40.900	0.000	0.000	1	56.928	40.900	0.000	0.000	1
	62.115	41.965	1.371	3.348	0	62.115	41.965	1.371	3.348	0
	65.844	41.600	0.000	0.000	1	65.844	41.600	0.000	0.000	1
	69.788	48.100	0.000	0.000	1	69.788	48.100	0.000	0.000	1
	72.360	44.300	0.000	0.000	1	72.360	44.300	0.000	0.000	1
	77.752	43.460	1.477	3.822	0	77.752	43.460	1.477	3.822	0
	80.076	$48 \cdot 800$	0.000	0.000	1	80.076	48.800	0.000	0.000	1
	83.848	49.300	0.000	0.000	1	83.848	49.300	0.000	0.000	1
	89.935	37.600	3.344	0.300	2	89.935	37.600	3.344	0.300	2
	92.936	54.100	0.000	0.000	1	92.936	54.100	0.000	0.000	1
	96.580	47.350	2.389	4.531	4	96.580	47.350	2.389	4.531	4
	101.803	44.271	1.565	2.171	7	101.803	44.271	1.565	2.171	7
	104.539	45.400	0.647	4.102	3	104.539	45.400	0.647	4.102	3
	109.826	49.620	2.143	5.318	10	109.826	49.620	2.143	5.318	10
	112.312	47.180	1.986	3.522	10	112.312	47.180	1.986	3.522	10
	115.278	46.640	1.973	2.678	10	115.278	46.640	1.973	2.678	10
	117.799	47.020	0.997	4.876	10	117.799	47.020	0.997	4.876	10
	116.907	50.230	2.103	5.849	10	116.907	50.230	2.103	5.849	10

		Al	lumage				Acc	rochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	7.474	5.295	0.072	0.042	0	7.474	5.295	0.072	0.042	0
	8.430	6.005	0.108	0.066	0	8.430	6.005	0.108	0.066	0
	9.566	6.858	0.125	0.077	0	9.566	6.858	0.125	0.077	0
	11.444	8.249	0.188	0.117	0	11.444	8.249	0.188	0.117	0
	13.411	7.770	0.168	0.858	8	13.421	7.878	0.161	0.865	9
	14.503	7.992	0.193	0.865	17	14.498	8.403	0.060	0.634	4
	16.425	8.134	0.185	0.844	19	16.415	8.276	0.237	0.836	9
	19.049	7.998	0.269	0.918	19	19.043	8.056	0.293	0.729	8
	20.830	8.046	0.290	0.771	20	20.915	8.197	0.296	1.011	9
	22.983	8.937	0.346	0.961	20	22.949	8.889	0.379	0.829	12
	26.440	8.505	0.412	0.842	20	26.366	8.796	0.449	0.901	8
	30.029	8.724	0.573	0.839	19	30.066	8.532	0.679	1.041	6
	34.564	9.325	0.494	0.799	20	34.715	9.449	0.378	0.784	15
	40.537	9.929	0.717	1.120	20	40.702	9.713	0.477	0.854	11
	46.486	10.104	0.689	0.910	20	46.616	10.033	0.709	0.817	13
	59.301	10.619	0.902	1.228	19	59.154	10.745	0.894	0.928	11
	63.987	10.786	1.165	1.594	19	64.138	10.969	1.129	1.544	17
	71.504	11.009	0.856	1.458	20	71.632	11.058	0.856	1.569	17
	74.534	10.940	1.410	1.334	20	74.749	10.894	1.335	1.442	16
	84.250	11.463	0.850	1.441	20	84.287	11.509	0.800	1.498	17
	91.234	11.769	1.555	1.501	20	91.356	11.534	1.474	1.393	18
	97.598	11.534	1.260	1.517	20	97.665	11.586	1.330	1.589	17
	104.161	12.234	1.316	1.555	20	104.091	12.134	1.220	1.698	16
	110.409	12.162	1.703	1.365	20	110.814	12.481	1.684	1.277	14
	119.931	12.447	1.960	1.018	20	119.846	12.479	1.974	1.035	19
	135.900	13.280	1.650	1.527	20	135.954	13.242	1.676	1.557	19
	142.992	13.046	2.349	1.497	19	143.167	13.320	2.424	1.294	17
	11.660	8.295	0.197	0.118	0	11.660	8.295	0.197	0.118	0
	13.987	7.778	0.151	1.095	9	13.987	7.778	0.151	1.095	9
	16.135	8.353	0.196	0.606	19	16.135	8.353	0.196	0.606	19
	18.087	8.464	0.172	0.901	18	18.087	8.464	0.172	0.901	18
	19.930	8.363	0.234	0.918	20	19.930	8.363	0.234	0.918	20
	22.795	8.748	0.267	0.946	20	22.795	8.748	0.267	0.946	20
	9.239	6.519	0.119	0.074	0	9.239	6.519	0.119	0.074	0
	9.994	7.087	0.125	0.082	0	9.994	7.087	0.125	0.082	0
	10.010	7.091	0.118	0.080	0	10.010	7.091	0.118	0.080	0
	11.909	6.910	0.000	0.000	1	11.909	6.910	0.000	0.000	1
	13.657	8.261	0.126	0.691	9	13.657	8.261	0.126	0.691	9
	14.526	7.847	0.223	0.846	13	14.526	7.847	0.223	0.846	13
	16.229	8.548	0.241	0.719	16	16.229	8.548	0.241	0.719	16
	17.371	8.181	0.274	0.683	20	17.371	8.181	0.274	0.683	20
	19.153	8.633	0.255	1.199	20	19.153	8.633	0.255	1.199	20

TAB. A.4 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 532$ nm, f = 50mm).

		A	llumage				Ac	crochage		
Φ	Einc	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\mathrm{tr}})$	Tirs
	20.783	8.512	0.402	0.666	20	20.783	8.512	0.402	0.666	20
	9.335	6.582	0.117	0.078	0	9.335	6.582	0.117	0.078	0
	10.796	7.662	0.106	0.068	0	10.796	7.662	0.106	0.068	0
	13.047	7.835	0.066	0.518	4	13.047	7.835	0.066	0.518	4
	14.232	8.242	0.316	0.468	10	14.232	8.242	0.316	0.468	10
	15.488	8.138	0.234	0.509	18	15.488	8.138	0.234	0.509	18
	17.092	8.628	0.241	0.820	19	17.092	8.628	0.241	0.820	19
	19.294	8.310	0.264	0.787	19	19.294	8.310	0.264	0.787	19
	20.687	8.577	0.216	0.895	19	20.687	8.577	0.216	0.895	19
	22.678	9.378	0.288	1.292	20	22.678	9.378	0.288	1.292	20
	24.837	8.921	0.318	0.766	20	24.837	8.921	0.318	0.766	20
	8.988	6.330	0.144	0.092	0	8.988	6.330	0.144	0.092	0
	9.939	7.022	0.124	0.079	0	9.939	7.022	0.124	0.079	0
	10.782	7.560	0.163	0.371	0	10.782	7.560	0.163	0.371	0
	12.201	8.378	0.127	0.656	0	12.201	8.378	0.127	0.656	0
	13.764	8.884	0.185	0.894	0	13.764	8.884	0.185	0.894	0
	14.776	6.897	0.110	0.517	3	14.776	6.897	0.110	0.517	3
	15.918	7.217	0.163	0.417	6	15.918	7.217	0.163	0.417	6
	17.713	8.025	0.283	0.725	11	17.713	8.025	0.283	0.725	11
	18.536	8.401	0.251	0.790	20	18.536	8.401	0.251	0.790	20
	20.236	8.323	0.199	0.712	20	20.236	8.323	0.199	0.712	20
	21.841	8.499	0.242	0.692	20	21.841	8.499	0.242	0.692	20
	9.652	6.824	0.104	0.072	0	9.652	6.824	0.104	0.072	0
	10.665	7.568	0.156	0.088	0	10.665	7.568	0.156	0.088	0
	11.761	8.048	0.131	0.757	0	11.761	8.048	0.131	0.757	0
	13.227	9.003	0.170	0.731	0	13.227	9.003	0.170	0.731	0
	14.625	8.367	0.190	1.341	0	14.625	8.367	0.190	1.341	0
	16.133	7.040	0.000	0.000	1	16.133	7.040	0.000	0.000	1
	16.899	8.441	0.297	0.862	0	16.899	8.441	0.297	0.862	0
	18.424	8.372	0.296	0.841	0	18.424	8.372	0.296	0.841	0
	20.157	9.260	0.000	0.000	1	20.157	9.260	0.000	0.000	1
	23.619	8.674	0.376	0.699	9	23.619	8.674	0.376	0.699	9
	26.026	8.458	0.448	0.865	15	26.026	8.458	0.448	0.865	15
	27.949	9.032	0.488	0.721	20	27.949	9.032	0.488	0.721	20
	30.569	9.236	0.419	0.848	20	30.569	9.236	0.419	0.848	20
	9.396	6.642	0.181	0.111	0	9.396	6.642	0.181	0.111	0
	10.166	7.202	0.105	0.063	0	10.166	7.202	0.105	0.063	0
	11.515	8.115	0.183	0.220	0	11.515	8.115	0.183	0.220	0
	11.515	8.115	0.183	0.220	0	11.515	8.115	0.183	0.220	0
	15.027	8.656	0.210	1.426	0	15.027	8.656	0.210	1.426	0
	15.641	9.220	0.000	0.000	1	15.641	9.220	0.000	0.000	1
	17.293	7.832	0.206	0.866	0	17.293	7.832	0.206	0.866	0
	19.081	7.740	0.000	0.000	1	19.081	7.740	0.000	0.000	1

		A	llumage				Ace	crochage		
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	21.883	7.695	0.228	1.165	2	21.883	7.695	0.228	1.165	2
	27.024	8.507	0.219	1.027	4	27.024	8.507	0.219	1.027	4
	30.144	8.777	0.292	0.944	3	30.144	8.777	0.292	0.944	3
	33.389	9.108	0.660	1.048	5	33.389	9.108	0.660	1.048	5
	37.370	9.416	0.732	0.923	7	37.370	9.416	0.732	0.923	7
	43.286	9.623	0.344	0.746	6	43.286	9.623	0.344	0.746	6
	53.105	10.115	0.665	1.401	15	53.105	10.115	0.665	1.401	15
	52.964	10.183	0.723	1.286	18	52.964	10.183	0.723	1.286	18
	70.164	11.384	1.176	1.119	20	70.164	11.384	1.176	1.119	20
	82.583	11.250	1.487	1.728	20	82.583	11.250	1.487	1.728	20

		Al	lumage				Acc	rochage		
Φ	$E_{inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	45.041	28.300	0.000	0.000	1	44.415	31.800	0.911	0.941	0
	47.954	34.460	0.898	1.222	0	47.954	34.460	0.898	1.222	0
	53.074	33.967	0.551	0.330	3	52.405	37.225	0.871	1.665	0
	62.251	36.500	0.791	4.368	18	62.940	32.667	0.382	0.818	3
	67.398	37.095	1.001	4.030	19	66.450	40.250	1.170	1.150	2
	79.383	37.875	0.733	4.346	20	79.348	38.500	0.760	2.111	4
	79.383	37.875	0.733	4.346	20	79.108	37.300	0.530	4.263	5
	94.053	37.683	1.212	3.862	18	94.357	37.982	0.918	4.126	11
	98.991	39.547	1.450	3.968	19	99.059	38.913	1.525	4.146	15
	107.343	39.400	1.648	4.021	20	107.299	39.528	1.686	4.218	18
	112.069	38.832	2.088	5.193	19	111.725	38.281	1.925	5.311	16
	121.619	38.216	2.148	4.386	19	121.800	38.856	2.198	4.165	16
	129.058	39.147	1.913	2.688	19	129.023	39.220	1.071	2.933	15
	129.103	39.305	1.875	2.709	20	129.405	39.106	1.655	2.859	16
	141.686	40.280	2.078	3.885	20	141.484	40.206	2.133	4.072	16
	146.839	40.330	2.816	4.248	20	147.148	40.021	2.538	4.133	19
	152.184	42.068	2.413	4.625	19	152.274	41.639	2.448	4.368	18
	155.596	40.926	2.621	5.953	19	155.687	41.167	2.664	6.026	18
	158.631	41.730	2.892	5.043	20	159.001	41.595	2.465	5.139	19
	39.145	26.890	1.067	0.680	0	39.145	26.890	1.067	0.680	0
	42.426	29.240	0.737	0.490	0	42.426	29.240	0.737	0.490	0
	47.732	28.400	0.000	0.000	1	47.732	28.400	0.000	0.000	1
	53.094	31.750	0.991	2.282	6	53.094	31.750	0.991	2.282	6
	61.426	33.472	1.185	3.073	18	61.426	33.472	1.185	3.073	18
	66.610	34.442	1.092	3.488	19	66.610	34.442	1.092	3.488	19
	72.761	32.783	1.555	4.022	18	72.761	32.783	1.555	4.022	18
	78.747	35.288	1.397	3.725	17	78.747	35.288	1.397	3.725	17
	86.916	34.661	1.905	2.701	18	86.916	34.661	1.905	2.701	18
	97.865	35.373	1.679	3.553	15	97.865	35.373	1.679	3.553	15
	111.068	35.800	1.407	4.345	18	111.068	35.800	1.407	4.345	18
	120.791	36.520	2.265	4.012	20	120.791	36.520	2.265	4.012	20
	125.856	38.005	2.566	4.867	19	125.856	38.005	2.566	4.867	19
	136.556	36.705	2.935	3.437	20	136.556	36.705	2.935	3.437	20
	45.480	32.570	0.535	0.315	0	45.480	32.570	0.535	0.315	0
	49.282	35.045	0.573	1.825	0	49.282	35.045	0.573	1.825	0
	55.135	34.657	0.576	2.551	7	55.135	34.657	0.576	2.551	7
	57.377	34.811	0.521	3.091	9	57.377	34.811	0.521	3.091	9
	62.304	35.500	0.852	3.317	16	62.304	35.500	0.852	3.317	16
	68.133	36.844	1.024	3.211	18	68.133	36.844	1.024	3.211	18
	71.081	36.659	1.011	3.227	17	71.081	36.659	1.011	3.227	17
	73.098	36.388	0.995	5.133	17	73.098	36.388	0.995	5.133	17
	76.400	37.339	1.040	4.544	18	76.400	37.339	1.040	4.544	18

TAB. A.5 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 532$ nm, f = 100mm).

	Allumage					Accrochage				
Φ	Einc	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\mathrm{tr}}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	83.007	39.271	0.984	3.563	17	83.007	39.271	0.984	3.563	17
	88.789	37.789	0.846	3.378	19	88.789	37.789	0.846	3.378	19
	95.346	38.380	1.498	4.536	20	95.346	38.380	1.498	4.536	20
	109.765	38.780	1.743	4.958	20	109.765	38.780	1.743	4.958	20
	37.653	26.695	0.449	0.301	0	37.653	26.695	0.449	0.301	0
	42.882	30.745	0.577	0.458	0	42.882	30.745	0.577	0.458	0
	46.076	33.040	0.778	0.420	0	46.076	33.040	0.778	0.420	0
	51.826	30.980	0.662	4.169	5	51.826	30.980	0.662	4.169	5
	55.353	34.157	0.482	2.323	7	55.353	34.157	0.482	2.323	7
	56.907	34.843	0.583	2.847	7	56.907	34.843	0.583	2.847	7
	60.301	37.325	0.757	2.120	16	60.301	37.325	0.757	2.120	16
	63.608	36.029	0.819	3.419	17	63.608	36.029	0.819	3.419	17
	66.718	35.018	0.859	3.641	17	66.718	35.018	0.859	3.641	17
	69.076	37.630	1.110	3.503	20	69.076	37.630	1.110	3.503	20
	73.690	36.906	0.794	3.426	18	73.690	36.906	0.794	3.426	18
	82.208	36.680	1.434	4.513	20	82.208	36.680	1.434	4.513	20
	39.355	28.080	0.608	0.368	0	39.355	28.080	0.608	0.368	0
	43.374	31.120	0.523	0.350	0	43.374	31.120	0.523	0.350	0
	48.931	35.330	0.632	0.336	0	48.931	35.330	0.632	0.336	0
	53.259	33.500	0.545	3.049	4	53.259	33.500	0.545	3.049	4
	56.610	33.467	0.550	2.925	9	56.610	33.467	0.550	2.925	9
	60.062	35.067	0.736	2.885	15	60.062	35.067	0.736	2.885	15
	62.392	36.388	0.866	2.897	16	62.392	36.388	0.866	2.897	16
	68.685	37.684	0.973	3.906	19	68.685	37.684	0.973	3.906	19
	75.905	36.318	0.900	4.279	17	75.905	36.318	0.900	4.279	17
	82.841	37.894	1.158	3.917	18	82.841	37.894	1.158	3.917	18
	90.101	35.161	1.012	6.180	18	90.101	35.161	1.012	6.180	18
	95.586	37.380	1.148	4.318	20	95.586	37.380	1.148	4.318	20
	101.599	36.905	1.181	6.385	20	101.599	36.905	1.181	6.385	20
	42.426	30.365	0.450	0.285	0	42.426	30.365	0.450	0.285	0
	47.498	27.500	0.000	0.000	1	47.498	27.500	0.000	0.000	1
	53.464	30.000	0.000	0.000	1	53.464	30.000	0.000	0.000	1
	56.477	31.300	0.417	2.748	4	56.477	31.300	0.417	2.748	4
	60.158	35.144	0.929	2.604	9	60.158	35.144	0.929	2.604	9
	66.316	34.650	0.808	3.645	14	66.316	34.650	0.808	3.645	14
	72.776	34.877	0.880	2.298	13	72.776	34.877	0.880	2.298	13
	79.631	35.728	1.150	4.209	18	79.631	35.728	1.150	4.209	18
	87.638	36.567	1.412	4.003	18	87.638	36.567	1.412	4.003	18
	97.504	37.878	1.462	4.050	18	97.504	37.878	1.462	4.050	18
	116.445	37.490	1.614	5.148	20	116.445	37.490	1.614	5.148	20
	107.004	37.815	1.216	3.785	20	107.004	37.815	1.216	3.785	20
	39.583	28.200	0.573	0.303	0	39.583	28.200	0.573	0.303	0
	41.806	29.955	0.545	0.350	0	41.806	29.955	0.545	0.350	0

	Allumage					Accrochage					
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	
	46.041	33.165	0.749	0.450	0	46.041	33.165	0.749	0.450	0	
	50.106	35.285	0.697	1.822	0	50.106	35.285	0.697	1.822	0	
	56.044	36.675	0.750	3.545	0	56.044	36.675	0.750	3.545	0	
	58.641	32.625	0.526	3.924	4	58.641	32.625	0.526	3.924	4	
	64.052	33.825	0.175	3.819	4	64.052	33.825	0.175	3.819	4	
	72.501	35.255	1.000	5.196	11	72.501	35.255	1.000	5.196	11	
	77.582	36.392	0.796	5.053	13	77.582	36.392	0.796	5.053	13	
	86.359	36.136	0.906	3.399	11	86.359	36.136	0.906	3.399	11	
	91.154	36.875	1.382	3.148	12	91.154	36.875	1.382	3.148	12	
	99.766	37.000	1.621	5.326	18	99.766	37.000	1.621	5.326	18	
	106.571	38.716	1.954	3.821	19	106.571	38.716	1.954	3.821	19	
	115.928	39.247	2.142	4.277	15	115.928	39.247	2.142	4.277	15	
	121.827	37.620	1.866	3.997	20	121.827	37.620	1.866	3.997	20	
	130.542	41.740	1.561	4.545	20	130.542	41.740	1.561	4.545	20	
		All	lumage			Accrochage					
---	---------	--------------	------------------	-----------------	------	---------------	--------------	-----------------	----------------	------	--
Φ	Einc	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	
	79.120	55.720	1.915	6.096	0	79.120	55.720	1.915230996	6.096	0	
	83.419	60.610	1.860	1.678	0	83.419	60.610	1.860265187	1.678	0	
	93.176	68.795	1.354	1.040	0	93.176	68.795	1.353983987	1.040	0	
	101.161	75.575	1.367	1.167	0	101.161	75.575	1.367370973	1.167	0	
	107.993	81.645	1.880	1.584	0	107.993	81.645	1.879815722	1.584	0	
	129.215	93.850	2.281	2.550	2	125.465	95.950	2.681444226	2.062	0	
	128.181	94.367	0.928	1.292	3	128.202	98.253	2.153920529	2.447	0	
	133.938	99.088	2.801	3.367	8	132.724	96.950	2.749237	2.450	2	
	140.718	102.283	1.663	4.343	12	139.685	100.700	1.852720504	3.170	5	
	143.653	106.892	1.825	2.231	12	143.819	106.567	0.526086803	2.175	3	
	146.555	108.239	2.010	4.458	18	146.197	109.700	1.107118209	1.472	3	
	148.763	110.547	2.941	4.088	15	148.196	108.625	3.576668866	4.615	4	
	113.351	89.265	1.322	1.057	0	113.351	89.265	1.321976338	1.057	0	
	134.237	96.743	2.319	4.595	7	134.237	96.743	2.318681818	4.595	7	
	137.743	100.080	2.275	3.832	10	137.743	100.080	2.274647101	3.832	10	
	144.293	107.162	2.596	3.571	13	144.293	107.162	2.595977624	3.571	13	
	147.433	107.000	2.659	5.575	13	147.433	107.000	2.65912779	5.575	13	
	149.757	110.445	2.525	4.946	11	149.757	110.445	2.524682417	4.946	11	
	150.346	109.550	1.628	4.003	16	150.346	109.550	1.628355687	4.003	16	
	148.659	108.635	2.464	5.587	17	148.659	108.635	2.464383836	5.587	17	
	84.349	65.850	0.585	0.450	2	84.261	63.980	1.018460788	6.802	0	
	96.750	72.500	0.000	0.000	1	96.750	72.500	0	0.000	1	
	116.779	83.160	2.009	5.123	5	116.779	83.160	2.009219176	5.123	5	
	120.119	91.250	1.925	2.277	4	120.119	91.250	1.924773431	2.277	4	
	128.703	97.738	1.082	2.399	8	128.703	97.738	1.082448258	2.399	8	
	135.811	99.856	0.907	3.021	9	135.811	99.856	0.906941626	3.021	9	
	141.957	104.992	2.585	4.530	12	141.957	104.992	2.585019932	4.530	12	
	147.902	108.759	2.646	5.458	17	147.902	108.759	2.645801653	5.458	17	
	149.688	110.700	2.435	3.904	18	149.688	110.700	2.435089788	3.904	18	
	83.197	64.930	0.963	0.722	0	83.197	64.930	0.963492688	0.722	0	
	89.731	68.110	0.982	8.864	0	89.731	68.110	0.981593865	8.864	0	
	94.984	74.250	1.607	1.132	0	94.984	74.250	1.607443212	1.132	0	
	102.126	79.970	1.857	1.342	0	102.126	79.970	1.856581389	1.342	0	
	106.712	83.535	1.814	1.839	0	106.712	83.535	1.813624294	1.839	0	
	119.387	68.650	0.605	29.303	4	119.387	68.650	0.605070363	29.303	4	
	127.479	93.683	1.642	4.367	6	127.479	93.683	1.64155606	4.367	6	
	131.004	85.980	2.131	8.335	5	131.004	85.980	2.130877219	8.335	5	
	136.895	99.877	1.203	6.096	13	136.895	99.877	1.203469029	6.096	13	
	139.369	102.910	1.726	3.282	10	139.369	102.910	1.725778429	3.282	10	
	144.053	105.267	2.409	5.710	12	144.053	105.267	2.409114149	5.710	12	
	145.223	102.287	2.213	15.851	15	145.223	102.287	2.213398188	15.851	15	
	147.048	108.288	2.118	4.370	16	147.048	108.288	2.118144248	4.370	16	

TAB. A.6 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda=532\mathrm{nm},\,f=150\mathrm{mm})$ 

		All	lumage			Accrochage					
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{ m inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	
	107.098	83.995	1.791	1.377	0	107.098	83.995	1.79053506	1.377	0	
	112.959	88.935	1.568	1.059	0	112.959	88.935	1.567599373	1.059	0	
	122.020	78.367	1.624	15.008	3	122.020	78.367	1.623860648	15.008	3	
	128.127	91.200	1.351	3.545	5	128.127	91.200	1.351005795	3.545	5	
	135.912	94.375	0.538	12.489	4	135.912	94.375	0.538496904	12.489	4	
	139.931	98.430	1.872	8.519	10	139.931	98.430	1.872159167	8.519	10	
	142.844	104.900	2.042	3.521	10	142.844	104.900	2.042455005	3.521	10	
	144.961	103.530	1.963	6.694	10	144.961	103.530	1.962804173	6.694	10	
	147.484	105.233	1.658	7.316	12	147.484	105.233	1.65815025	7.316	12	
	148.576	107.333	1.742	4.667	15	148.576	107.333	1.741528548	4.667	15	
	110.596	82.835	1.682	1.484	0	110.596	82.835	1.682072419	1.484	0	
	116.170	52.700	0.000	0.000	1	116.170	52.700	0	0.000	1	
	120.897	91.455	2.703	2.305	0	120.897	91.455	2.703031465	2.305	0	
	128.688	96.735	1.820	3.000	0	128.688	96.735	1.820298581	3.000	0	
	140.270	102.700	0.000	0.000	1	140.270	102.700	0	0.000	1	
	143.312	94.900	0.000	0.000	1	143.312	94.900	0	0.000	1	
	146.119	101.550	3.008	4.657	4	146.119	101.550	3.007773885	4.657	4	
	144.755	102.833	2.920	4.208	3	144.755	102.833	2.919790845	4.208	3	
	116.276	90.985	2.419	1.410	0	116.276	90.985	2.41913189	1.410	0	
	126.418	98.105	1.828	3.125	0	126.418	98.105	1.827951317	3.125	0	
	132.549	81.100	1.521	15.000	2	132.549	81.100	1.5208585	15.000	2	
	135.006	99.900	0.000	0.000	1	135.006	99.900	0	0.000	1	
	143.312	104.450	0.702	3.750	2	143.312	104.450	0.701935	3.750	2	
	145.769	106.700	0.351	1.000	2	145.769	106.700	0.3509595	1.000	2	
	148.518	85.675	0.582	34.596	4	148.518	85.675	0.582013756	34.596	4	

		Al	lumage	Accrochage						
Φ	Einc	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs
	21.883	16.385	0.103	0.131	0	21.883	16.385	0.103	0.131	0
	24.969	18.935	0.134	0.162	0	24.969	18.935	0.134	0.162	0
	29.809	22.925	0.163	0.170	0	29.809	22.925	0.163	0.170	0
	29.930	23.000	0.000	0.000	1	29.809	22.925	0.163	0.170	0
	34.701	22.871	0.124	1.802	7	34.665	25.450	0.175	2.178	0
	37.522	22.950	0.192	3.397	20	37.740	22.200	0.235	3.080	3
	39.055	21.184	0.194	1.466	19	39.073	21.880	0.136	1.987	5
	42.403	22.432	0.176	1.905	19	42.445	23.425	0.141	1.889	8
	44.533	20.511	0.244	1.936	19	44.522	20.564	0.240	2.163	11
	48.806	19.900	0.265	1.746	18	48.782	19.875	0.261	0.618	4
	53.087	20.184	0.245	0.822	19	53.096	20.250	0.232	0.870	16
	55.453	20.211	0.259	1.763	19	55.517	19.869	0.214	1.624	13
	60.207	20.363	0.416	1.907	19	60.285	20.336	0.454	1.459	11
	66.822	20.747	0.325	1.790	19	66.858	20.621	0.340	1.863	14
	74.355	20.845	0.515	1.383	20	74.329	21.264	0.486	1.229	14
	80.650	20.435	0.401	1.511	20	80.670	20.292	0.413	1.576	13
	88.124	20.542	0.474	1.867	19	88.145	20.850	0.450	2.052	14
	96.062	21.655	0.493	1.826	20	96.048	21.753	0.521	1.860	17
	103.870	23.215	0.444	2.101	20	103.827	22.947	0.387	2.021	15
	109.696	24.375	0.573	1.945	20	109.694	24.253	0.563	2.083	17
	114.696	24.989	0.692	2.063	19	114.634	24.453	0.372	1.764	15
	121.156	24.895	0.753	1.571	20	121.170	25.012	0.822	1.598	16
	131.413	26.275	1.039	1.638	20	131.322	26.274	0.986	1.680	19
	31.719	24.220	0.127	0.098	0	31.719	24.220	0.127	0.098	0
	33.388	21.933	0.133	1.438	3	33.388	21.933	0.133	1.438	3
	37.089	23.640	0.228	2.124	15	37.089	23.640	0.228	2.124	15
	38.656	23.371	0.192	1.553	17	38.656	23.371	0.192	1.553	17
	40.324	22.922	0.176	2.361	18	40.324	22.922	0.176	2.361	18
	45.764	21.489	0.204	1.639	18	45.764	21.489	0.204	1.639	18
	48.872	21.447	0.261	1.850	19	48.872	21.447	0.261	1.850	19
	54.797	21.288	0.279	1.714	17	54.797	21.288	0.279	1.714	17
	59.736	21.568	0.460	1.243	19	59.736	21.568	0.460	1.243	19
	64.533	21.335	0.225	1.042	17	64.533	21.335	0.225	1.042	17
	74.696	21.655	0.383	1.481	20	74.696	21.655	0.383	1.481	20
	13.566	9.890	0.104	0.130	0	13.566	9.890	0.104	0.130	0
	14.699	10.790	0.066	0.070	0	14.699	10.790	0.066	0.070	0
	17.198	12.745	0.075	0.080	0	17.198	12.745	0.075	0.080	0
	33.278	20.960	0.163	1.555	5	33.278	20.960	0.163	1.555	5
	36.028	22.120	0.145	1.872	15	36.028	22.120	0.145	1.872	15
	38.098	21.537	0.145	1.881	19	38.098	21.537	0.145	1.881	19
	40.107	21.605	0.171	2.575	20	40.107	21.605	0.171	2.575	20
	45.171	20.770	0.207	2.221	20	45.171	20.770	0.207	2.221	20

TAB. A.7 – Données sur l'allumage et l'accrochage ( $\lambda = 1064$ nm, f = 50mm)

	Allumage					Accrochage					
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{\rm tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	
	17.300	12.850	0.155	0.166	0	17.300	12.850	0.155	0.166	0	
	18.339	13.610	0.102	0.114	0	18.339	13.610	0.102	0.114	0	
	20.273	15.170	0.076	0.152	0	20.273	15.170	0.076	0.152	0	
	21.404	16.070	0.096	0.152	0	21.404	16.070	0.096	0.152	0	
	22.638	17.005	0.073	0.128	0	22.638	17.005	0.073	0.128	0	
	24.830	18.775	0.067	0.144	0	24.830	18.775	0.067	0.144	0	
	27.013	20.480	0.119	0.169	0	27.013	20.480	0.119	0.169	0	
	29.342	22.140	0.101	1.096	0	29.342	22.140	0.101	1.096	0	
	30.088	22.955	0.154	0.136	0	30.088	22.955	0.154	0.136	0	
	32.173	19.567	0.164	2.130	3	32.173	19.567	0.164	2.130	3	
	33.246	22.383	0.078	1.139	6	33.246	22.383	0.078	1.139	6	
	35.244	21.808	0.184	1.370	12	35.244	21.808	0.184	1.370	12	
	36.602	21.650	0.159	1.780	18	36.602	21.650	0.159	1.780	18	
	37.233	22.047	0.211	2.130	19	37.233	22.047	0.211	2.130	19	
	38.217	22.828	0.232	2.166	18	38.217	22.828	0.232	2.166	18	
	39.679	21.555	0.172	2.219	20	39.679	21.555	0.172	2.219	20	
	41.289	21.155	0.174	1.632	20	41.289	21.155	0.174	1.632	20	
	18.373	13.815	0.113	0.159	0	18.373	13.815	0.113	0.159	0	
	19.919	15.025	0.078	0.122	0	19.919	15.025	0.078	0.122	0	
	21.108	15.940	0.066	0.139	0	21.108	15.940	0.066	0.139	0	
	24.260	18.465	0.145	0.162	0	24.260	18.465	0.145	0.162	0	
	25.515	19.425	0.085	0.137	0	25.515	19.425	0.085	0.137	0	
	27.019	20.620	0.100	0.125	0	27.019	20.620	0.100	0.125	0	
	29.593	22.730	0.154	0.217	0	29.593	22.730	0.154	0.217	0	
	30.661	23.535	0.115	0.149	0	30.661	23.535	0.115	0.149	0	
	30.611	23.400	0.064	0.000	2	30.611	23.400	0.064	0.000	2	
	33.331	20.800	0.231	0.648	3	33.331	20.800	0.231	0.648	3	
	34.436	20.792	0.128	1.389	13	34.436	20.792	0.128	1.389	13	
	36.034	20.742	0.188	2.088	19	36.034	20.742	0.188	2.088	19	
	37.259	21.500	0.162	1.908	18	37.259	21.500	0.162	1.908	18	
	38.706	20.975	1.036	2.429	20	38.706	20.975	1.036	2.429	20	
	41.386	19.475	0.201	1.349	20	41.386	19.475	0.201	1.349	20	
	20.205	15.285	0.166	0.188	0	20.205	15.285	0.166	0.188	0	
	21.563	16.340	0.098	0.136	0	21.563	16.340	0.098	0.136	0	
	22.334	16.930	0.071	0.100	0	22.334	16.930	0.071	0.100	0	
	23.421	17.800	0.083	0.138	0	23.421	17.800	0.083	0.138	0	
	25.367	19.355	0.134	0.140	0	25.367	19.355	0.134	0.140	0	
	27.656	21.170	0.142	0.187	0	27.656	21.170	0.142	0.187	0	
	29.575	22.705	0.102	0.172	0	29.575	22.705	0.102	0.172	0	
	34.687	19.467	0.027	1.621	3	34.687	19.467	0.027	1.621	3	
	36.089	19.463	0.156	0.857	8	36.089	19.463	0.156	0.857	8	
	37.774	19.092	0.100	2.608	12	37.774	19.092	0.100	2.608	12	
	40.128	19.106	0.190	1.212	16	40.128	19.106	0.190	1.212	16	

		Ai	llumage		Accrochage					
Φ	$E_{\rm inc}$	$E_{ m tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs	$E_{\rm inc}$	$E_{\rm tr}$	$s(E_{\rm inc})$	$s(E_{ m tr})$	Tirs
	42.594	19.970	0.265	1.574	20	42.594	19.970	0.265	1.574	20
	46.311	20.595	0.217	1.596	20	46.311	20.595	0.217	1.596	20
	17.848	13.430	0.186	0.173	0	17.848	13.430	0.186	0.173	0
	18.766	14.160	0.063	0.111	0	18.766	14.160	0.063	0.111	0
	21.019	15.915	0.102	0.091	0	21.019	15.915	0.102	0.091	0
	25.790	19.690	0.088	0.141	0	25.790	19.690	0.088	0.141	0
	30.079	19.800	0.000	0.000	1	30.079	19.800	0.000	0.000	1
	33.418	22.300	0.153	3.236	0	33.418	22.300	0.153	3.236	0
	35.447	19.200	0.000	0.000	1	35.447	19.200	0.000	0.000	1
	37.777	20.220	0.110	1.393	5	37.777	20.220	0.110	1.393	5
	39.808	20.175	0.219	1.434	4	39.808	20.175	0.219	1.434	4
	41.092	19.133	0.104	0.403	3	41.092	19.133	0.104	0.403	3
	46.723	19.533	0.100	0.624	3	46.723	19.533	0.100	0.624	3
	49.421	19.350	0.000	0.867	4	49.421	19.350	0.000	0.867	4
	53.398	19.689	0.284	1.433	9	53.398	19.689	0.284	1.433	9
	58.368	19.933	0.000	2.164	3	58.368	19.933	0.000	2.164	3
	67.661	19.637	0.318	0.914	8	67.661	19.637	0.318	0.914	8
	74.089	19.570	0.327	0.843	10	74.089	19.570	0.327	0.843	10
	82.972	21.272	0.357	2.059	18	82.972	21.272	0.357	2.059	18
	93.144	22.630	0.575	1.528	20	93.144	22.630	0.575	1.528	20

## BIBLIOGRAPHIE

- Aaron, J. M., Ireland, C. L. M., and Morgan, C. G. (1974). Aberration effects in the interaction of focused laser beams with matter. *J. Phys. D*, 7 :1907–1917.
- Abramowitz, M. and Stegun, I. A. (1972). *Handbook of Mathematical Functions with Formulas*, *Graphs, and Mathematical Tables*. Dover Publications.
- Alcock, A. J., De Michelis, C., and Richardson, M. C. (1969). Wavelentgth dependence of laser-induced gas breakdown using dye laser. *Appl. Phys. Lett.*, 15(2):72–3.
- Alcock, A. J. and Richardson, M. C. (1968). Creation of a spark by a single subnanosecond laser pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 21:667–70.
- Amstrong, B. H. (1967). Spectrum line profiles : The voigt function. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 7:61–88.
- Andersen, T. B. (1982). Optical aberration function : derivatives with respect to axial distances for symmetrical system. *Appl. Opt.*, 21(10) :1817–1823.
- Arimoto, A. (1974). Aberration expansion and evaluation of the quasi-gaussian beam by a set of orthogonal functions. *J. Opt. Soc. Am.*, 64 :850–856.
- Armstrong, R. A., Lucht, R. A., and Rawlins, W. T. (1983). Spectroscopic investigation of laser-initiated low-pressure plasmas in atmospheric gases. *Appl. Opt.*, 22(10) :1573–1577.
- Bebb, H. and Gold, A. (1965). Multiphoton ionization of hydrogen and rare gas atoms. *Phys. Rev.*, 143 :1–24.
- Beduneau, J.-L., Kim, B., Zimmer, L., and Ikeda, Y. (2003). Measurements of minimum ignition energy in premixed laminar methane/air flow by using laser induced spark. *Combust. Flame*, 132:653–665.
- Bergel'son, V., Loseva, T., Nemchinov, I., and Orlova, T. (1976). Propagation of plane supersonic radiation waves. Sov. J. Plasma Phys., 1(6):498–503.
- Bernier, D., Ducruix, S., Lacas, F., Candel, S., Robart, N., and Poinsot, T. (2003). Transfer function measurement in a model combustor : application to adaptative instability control. *Combust. Sci. and Tech.*, 175 :1–21.
- Böddeker, S., Günter, S., Könies, A., Hitzschke, L., and Kunze, H. J. (1993). Shift and width of the  $h_{\alpha}$  line of hydrogen in dense plasmas. *Phys. Rev. E*, 47 :2785–91.
- Born, M. and Wolf, E. (1980). Principles of optics. Pergamon press.
- Bradley, D. and Lung, F. (1987). Spark ignition and the early stages of turbulent flame propagation. *Combust. Flame*, 69 :71–93.

- Brissaud, A. and Frisch, U. (1971). Theory of stark broadening ii : Exact line profile with model microfield. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 11(12) :1767–1783.
- Brown, R. T. and Smith, D. C. (1972). Laser induced gas breakdown in the presence of preionization. *Appl. Phys. Lett.*, 22 :245–247.
- Büchl, K., Hohla, K., Wienecke, R., and Witkowski, S. (1968). Investigation of the blast wave from a laser produced gas breakdown. *Phys. Rev.*, 26A(6) :248–249.
- Buck, A. (1967). The radiation pattern of a truncated gaussian aperture distribution. *Proc. IEEE*, 55 :448–450.
- Busher, H. T., Tomlinson, R. G., and Damon, E. K. (1965). Frequency dependence of optically induced gas breakdown. *Phys. Rev. Lett.*, 15:847–9.
- Campbell, J. and DeShazer, L. (1969). Near fields of truncated gaussian apertures. J. Opt. Soc. Am., 59 :1427–1429.
- Canavan, G., Proctor, W., Nielson, P., and S., R. (1972). CO<sub>2</sub> laser air breakdown calculations. *IEEE J. Quant. Electron.*, 8 :564–565.
- Canavan, G. H. and Nielsen, R. E. (1973). Focal spot dependence of gas breakdown induced by particulate ionization. *Appl. Phys. Lett.*, 22 :409–410.
- Chalmeton, V. (1969). étude de la phase initiale du claquage d'un gaz par un laser. J. de *Physique*, 30:687–699.
- Champetier, J., de Metz, J., Marioge, J., Millet, F., and Terneaud, A. (1968). Concentration of a laser beam with aspheric lenses. *IEEE J. Quantum Electron.*, 4(5):379–80.
- Champetier, L. (1965). Interprétation théorique de l'évolution du plasma créé par focalisation d'un faisceau laser dans l'air. *C. R. Acad. Sc. Paris*, 261 :3954–3957.
- Chan, C. H., Moody, C. D., and McNight, W. (1973). Significant loss mechanism in gas breakdown at 10.6 μm. *J. Appl. Phys.*, 44 :1179–1188.
- Chen, Y.-L., Lewis, J., and Parigger, C. (2000). Probability distribution of laser-induced breakdown and ignition of ammonia. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 66:41–53.
- Chen, Y.-L., Lewis, J., and Parigger, C. (2001). Visualization of laser-induced breakdown and ignition. *Optics express*, 9(7):360–371.
- Chin, S. and Lambropoulos, P. (1984). Multiphoton Ionization of Atoms. Academic Press.
- Chou, M. and Zukowski, T. (1991). Ignition of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>/Air/NH<sub>3</sub>, and CH<sub>4</sub>/O<sub>2</sub>/NH<sub>3</sub> mixtures by excimer-laser photolysis of NH<sub>3</sub>. *Combust. Flame*, 87 :191.
- Curran, H., Gaffuri, P., Pitz, W., and Westbrook, C. (1998). A comprehensive modeling study of n-hepthane oxidation. *Combust. Flame*, 114 :149–177.

- Daiber, J. W. and Winans, J. G. (1968). Radiation from laser-heated plasmas in nitrogen and argon. J. Opt. Soc. Am., 58:76.
- Davis, P. J., Smith, L. A., Giranda, C., and Squicclarini, M. (1991). Laser-induced plasma formation in Xe, Ar, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub> at the first four Nd :YAG harmonics. *Appl. Opt.*, 30 :4358–64.
- Delcroix, J. L. (1968). Décharges dans les gaz produites par laser. *Journal de Physique*, 29(C3-3-C3-14) :1068.
- Deron, C. (2003). *Transfert radiatif dans des plasmas thermiques*. PhD thesis, École Centrale de Paris.
- Dewhurst, R. J., Pert, G. J., Ramsden, S. A., and Dube, G. (1971). In Oxford, editor, *Proc. 10th Int. Conf. on Ionized Gases*.
- Dickson, L. (1970). Characteristics of a propagating gaussian beam. Appl. Opt., 9:1854–1861.
- Docchio, F., Regondi, P., Capon, M. R. C., and Mellerio, J. (1988a). Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond nd :yag laser pulses. 1. analysis of the plasma starting times. *Appl. Opt.*, 27(17) :3661–3668.
- Docchio, F., Regondi, P., Capon, M. R. C., and Mellerio, J. (1988b). Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond nd :yag laser pulses. 2. plasma luminescence and shielding. *Appl. Opt.*, 27(17) :3669–3674.
- Drayson, S. R. (1975). Rapid computation of the voigt profile. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 16:611–614.
- Ehler, W. (1973). Measurement of debye length in laser-produced plasma. *Phys. Fluids*, 16(2):339–340.
- El-Rabii, H., Thévenin, D., and Rolon, J.-C. (2003). Time-resolved planar laser induced fluorescence of laser ignition of a methane/air mixture. In *AIAA 2003-3476, 34th AIAA Plasmadynamics and Lasers*, pages 1–7, Orlando, Florida.
- Evans, C. J. and Gamal, Y. E.-D. (1980). Laser-induced breakdown of helium. J. Phys. D : Appl. Phys., 13:1447–58.
- Evans, L. R. and Morgan, C. G. (1969). Intensity distribution of focused laser beams in biomedical studies. *Phys. Med. Biol.*, 14(2):205–212.
- Farrell, P. G. and Newton, J. (1965). Ionization potentials of aromatic amines. J. Phys. Chem., 69:3506.
- Few, J. and Lewis, J. (1990). Gas turbine engine photon ignition system. US Patent number 4,947,640, Aug. 14, 1990.
- Few, J. D. and Lewis, J. W. L. (1993). Laser-initiated non-linear fuel droplet ignition. US Patent number 5,485,720, Jan. 23, 1993, Patent number 5,404,712, April 11, 1995, Patent number 5,497,612, March 12, 1996, Patent number, 5,524,429, June 11, 1996.

- Forch, B. E. and Miziolek, A. W. (1978). Ultraviolet laser ignition of premixed gases by efficient and resonant multiphoton photochemical formation of microplasma. *Combust. Sci. Tech.*, 52:151–159.
- Forch, B. E. and Miziolek, A. W. (1987). Laser-based ignition of  $H_2/O_2$  and  $D_2/O_2$  premixed gases through resonant multiphoton excitation of h and d atoms near 243 nm. *combust. Flame*, 85 :254–262.
- Frendi, A. and Sibulkin, M. (1990). Dependence of minimum ignition energy on ignition parameters. *Combust. Sci. Tech.*, 73:395–413.
- Frisch, U. and Brissaud, A. (1971). Theory of stark broadening i : Soluble scalar model as a test. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 11(12):1753–1766.
- Gamal, Y. E.-D. and Abdel Harith, M. (1981). Molecular gas breakdown by short laser pulses. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 14 :2209–14.
- Gamal, Y. E.-D., Shafik, M. S. E.-D., and Daoud, J. M. (1999). A numerical investigation of the dependence of the threshold irradiance on the wavelength in laser-induced breakdown in N<sub>2</sub>. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 32 :423–429.
- Geary, J. and Peterson, P. (1984). Spherical aberration and diffraction derived via fourier optics. *Opt. Eng.*, 23.
- Geary, J. and Peterson, P. (1986). Intermediate spherical aberration. Opt. Eng., 25 :1232–1240.
- Gontier, Y. and Trahin, M. (1968). Multiphoton ionization of atomic hydrogen in ground state. *Phys. Rev.*, 172 :83–87.
- Goodman, J. W. (1968). Introduction to Fourier Optics. McGraw-Hill.
- Gordon, S. and McBride, B. (1994). Computer program for the calculation of complex chemical equilibrium compositions with applications ; i. analysis. Technical Report 1311, NASA.
- Gradshteyn, I. S. and Ryzhik, I. M. (2000). *Table of Integrals, Series, and Products*. Academic Press.
- Griem, H. R. (1997). Principles of Plasma Spectroscopy. Cambridge University Press.
- Hasted, J. B. (1964). Physics of Atomics Collisions. Butterworths.
- Haught, A., Meyerand, R., and Smith, D. (1966). Electrical breakdown of gases by optical frequency radiation. In *Physics of Quantum Electronics*, pages 509–519. McGraw-Hill.
- Haught, T. P. (1975). Plasmas and Laser Light. Adam Hilger.
- Helbig, V. (1991). Contrib. Plasma Phys., 31:183.
- Herman, R., Pardo, J., and Wiggins, T. (1985). Diffraction and focusing of gaussian beams. *Appl. Opt.*, 24 :1346–1354.

- Hill, G. A., James, D. J., and Ramsden, S. A. (1971). Breakdown thresholds in rare and molecular gases using pulsed 10,6 micron radiation. *J. Phys. D Appl. Phys.*, 5 :L97–99.
- Hill, R. A. (1981). Ignition-delay times in laser-initiated combustion. *Appl. Opt.*, 20 :2239–2242.
- Holmes, D., Korka, J., and Avizonis, P. (1972). Parametric study of apertured focused gaussian beam. Appl. Opt., 64 :565–574.
- Homan, H. S. and Sirignano, W. A. (1981). Minimum mass of burning aluminum particles for ignition of methane/air and propane/air mixtures. In 18th Symposium (International) on Combustion, pages 1709–1717. Combustion Institute, Pittsburgh.
- Hornkohl, J. O., Parigger, C., and Lewis, J. W. L. (1991). Temperature measurements from CN spectra in a laser-induced plasma. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 46(5):405–411.
- Huber, K. P. and Herzberg, G. (1979). *Molecular Spectra and Molecular Structure IV, Constants of Diatomic Molecules*. Van Nostrand Reinhold, New York.
- Ireland, C. L. M. and Morgan, C. G. (1973). Gas breakdown by a short laser pulse. J. Phys. D : Appl. Phys., 6 :720–729.
- Karzas, W. and Latter, R. (1961). Electron radiative transitions in a coulomb field. *Astrophysical J.*, Supplement Series VI :167.
- Keldysh, L. V. (1965). Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20(5):1307–1314.
- Kelleher, D. E., Wiese, W. L., Helbig, V., Greene, R. L., and Oza, D. H. (1993). Advances in plasma broadening of atomic hydrogen. *Physica Scripta T*, T47 :75–9.
- Kingdon, R. and Weinberg, F. (1976). Effect of plasma constitution on laser ignition energies. In *16th Symposium (International) on Combustion*, pages 747–756. The Combustion Institute.
- Kingslake, R. (1948). Proc. Phys. Soc., 61 :147.
- Kogelnik, H. and Li, T. (1966). Laser beams and resonators. *Proceedings of the IEEE*, 54(10):1312–1329.
- Kono, M., Niu, K., Tsukamoto, T., and Ujiie, Y. (1988). Mechanism of flame kernel formation produced by short duration sparks. In *Twenty-second Symposium (International) on Combustion. The Combustion Institute.*
- Kozlov, G. (1997). Some laws governing laser beam ignition of an ethylene stream in air. *Tech. Phys. Lett.*, 23(12) :964–965.
- Krasyuk, P. N., Pashinin, P. P., and Prokhorov, A. M. (1969). JETP Lett., 9(10):354-6.
- Kravchik, T. and Sher, E. (1994). Numerical modeling of spark ignition and flame initiation in a quiescent methane-air mixture. *Combust. Flame*, 99 :635–643.

- Kroll, N. and Watson, K. (1972). Theoritical study of ionization of air by intense laser pulses. *Phys. Rev. A*, 5 :1883–1905.
- Kuo, K. (1986). Principles of combustion. Wiley & sons.
- Lacas, F., Versaevel, P., Scouflaire, P., and Coeur-Joly, G. (1994). Design and performance of an ultrasonic atomization system for experimental combustion applications. *Part. Part. Syst. Char.*, 11:166–171.
- Lang, R. (1962). Ultrasonic atomization of liquids. J. Acoust. Soc. Am., 34:6.
- Larrabee, R. D. (1959). Spectral emissivity of tungsten. J. Opt. Soc. Am., 49:619-625.
- Lee, T.-W., Jain, V., and Kozola, S. (2001). Measurements of minimum ignition energy by using laser sparks of hydrocarbon fuel in air : propane, dodecane, and jet-A fuel. *Combust. Flame*, 125 :1320–1328.
- Lefebvre, A. H. (1982). Gas Turbine Combustion. Hemisphere publishing Corp.
- Lemaire, A. (2003). Étude de l'Interaction Flamme/Tourbillon en Milieu Gazeux et Diphasique. Caractérisation de l'Extinction sous l'Influence d'un Écoulement Tourbillonnaire. PhD thesis, École Centrale Paris.
- Lencioni, D. E. (1973). The effect of dust on 10.6 µm laser induced air breakdown. *Appl. Phys. Lett.*, 23 :12–14.
- Levenberg, K. (1944). A method for the solution of certain problems in least squares. *Quart. Appl. Math.*, 2 :164–168.
- Lewis, B. and von Elbe, G. (1987). *Combustion, Flames and Explosions of gases*. Academic Press, third edition.
- Li, Y. (1987). Three-dimensional intensity distribution in low-fresnel-number focusing systems. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4(8) :1349–1353.
- Li, Y. and Wolf, E. (1981). Focal shifts in diffracted converging spherical waves. *Opt. Commun.*, 39 :211–215.
- Li, Y. and Wolf, E. (1982a). Dependence of the focal shift on fresnel number and *f* number. *J. Opt. Soc. Am.*, 72 :770–774.
- Li, Y. and Wolf, E. (1982b). Focal shift in focused truncated gaussian beams. *Opt. Commun.*, 42:151–156.
- Li, Y. and Wolf, E. (1984). Three-dimensional intensity distribution near the focus in systems of different fresnel numbers. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1(8):801–808.
- Lifshitz, C. and Bauer, S. H. (1963). J. Phys. Chem., 67 :1629.
- Lim, E. (1997). *Effects of spark kernel dynamics on laser-induced minimum ignition energies of combustible gases.* M.s. thesis, University of Southern California.

- Lim, E., McIlroy, A., Ronney, P., and Syage, J. (1996). Detailed characterization of minimum ignition energies of combustible gases using laser ignition sources. In *Transport Phenomena in Combustion*, pages 176–184. Taylor and Francis, s.h. chan edition.
- Linan, A. and Crespo, A. (1976). An asymptotic analysis of unsteady diffusion flames for large activation energies. *Combust. Sci. Tech.*, 14:95–117.
- Linfoot, E. (1955). Recent advances in optics. Oxford university press.
- Linfoot, E. H. and Wolf, E. (1956). Phase distribution near focus in an aberration-free diffraction image. *Proc. Phys. Soc.*, B69 :823–32.
- Litvak, M. and Edwards, D. (1966). Electron recombinaison in laser-produced hydrogen plasma. J. Appl. Phys., 37 :4462–4474.
- Lowenthal, D. (1974). Maréchal intensity criteria modified for gaussians beams. *Appl. Opt.*, 13:2126–2133.
- Lowenthal, D. (1975). Far-field diffraction patterns for gaussian beams in the presence of small spherical aberrations. *J. Opt. Soc. Am.*, 65 :853–855.
- Ma, J., Alexander, D., and Poulain, D. (1998). Laser spark ignition and combustion characteristics of methane-air mixtures. *Combust. Flame*, 112 :492–506.
- MacDonald, A. (1966). Microwave Breakdown in Gases. Academic Press.
- Mahajan, V. N. (1983a). Aberrated point-spread function for rotationally symmetric aberrations. *Appl. Opt.*, 22:3035–3041.
- Mahajan, V. N. (1983b). Axial irradiance and optimum focusing of laser beams. *Appl. Opt.*, 22:3042–3053.
- Mahajan, V. N. (1986). Uniform versus gaussians beams : a comparison of the effects of diffraction, obscuration, and aberrations. J. Opt. Soc. Am. A, 3(4) :470–485.
- Mahajan, V. N. (1991). Aberration Theory Made Simple. SPIE Optical Engineering Press.
- Malacara, D. (1992). Optical Shop Testing. John Wiley & Sons, Inc.
- Malitson, I. H. (1965). Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica. J. Opt. Soc. Am., 55(10) :1205–9.
- Mandel'shtam (1966). Investigation of the spark discharge produced in air by focusing laser radiation. *Sov. Phys. JETP*, 22(1):91–96.
- Mandelshtam, S. L., Pashinin, P. P., Prokhindeev, A. V., Prokhorov, A. M., and Sukhodrev, N. K. (1964). *Sov. Phys. JETP*, 20:1344.

- Marquardt, D. (1963). An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *SIAM J. Appl. Math.*, 11:431–441.
- Martinez-Corral, M., Munoz-Escriva, L., Pons, A., and Caballero, M. T. (2001). An experiment to study the structure of the focal volume in apertured focusing systems. *Eur. J. Phys.*, 22:361–369.
- Meyerand, R. and Haught, A. (1963). Gas breakdown at optical frequencies. *Phys. Rev. Letters*, 11:401–403.
- Meyerand, R. and Haught, A. (1964). Optical-energy absorption and high-density plasma production. *Phys. Rev. Letters*, 13(1):7–9.
- Momigny, J., Brakier, L., and D Or, L. (1962). Bull. Classe Sci. Acad. Roy. Belg., 48:1002.
- Morgan, C. (1975). Laser-induced breakdown of gases. Rep. Prog. Phys., 38:621-665.
- Morgan, F., Evans, L. R., and Morgan, C. G. (1971). Laser beam induced breakdown in helium and argon. J. Phys. D; Appl. Phys., 4 :225–35.
- Morsy, M., Ko, Y., and Chung, S. (1999). Laser-induced ignition using a conical cavity in CH<sub>4</sub>-air mixtures. *Combust. Flame*, 119(4):473–482.
- Morsy, M., Ko, Y., and Chung, S. (2001). Laser-induced two-point ignition of premixture with a single-shot laser. *Combust. Flame*, 124(4) :724–727.
- Morton, V. (1967). Multiphoton absorption in monatomic gases. Proc. Phys. Soc., 92:301–309.
- Nayyar, V. and Verma, N. (1978). Diffraction by truncated-gaussian annular apertures. J. Opt. (Paris), 9:307–310.
- Nehse, M., Chevalier, C., and Warnatz (1996). Kinetic modeling of the oxidation of large aliphatic hydrocarbons. *Twenty-sixth Symposium (International) on Combustion. The Combustion Institute*, 1 :773–780.
- Nienhuis, K. and Nijboer, B. (1948). Physica, 14:590.
- Niioka, T. (1981). Ignition time in the stretched-flow field. *Eighteenth Symposium (Internatio*nal) on Combustion, The Combustion Institute, pages 1807–1813.
- NIST (1999). Atomic spectra database : physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main\_asd.
- Olaofe, G. (1970). Diffraction by gaussian apertures. J. Opt. Soc. Am., 60:1654–1657.
- Panarela, E. and Savic, P. (1968). Blast waves from a laser-induced spark in air. *Can. J. Physics*, 46:183–192.
- Parigger, C., Lewis, J. W. L., and Plemmons, D. (1995). Electron number density and temperature measurement in a laser-induced hydrogen plasma. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 53(3):249–255.

- Parigger, C., Tang, Y., Plemmons, D. H., and Lewis, J. W. L. (1997). Spherical aberration effects in lens-axicon doublets : theoretical study. *Appl. Opt.*, 36(31) :8214–8221.
- Peters, N. and Paczko, G. (2002). Temperature cross-over and non-thermal runaway at twostage ignition of n-heptane. *Combust. Flame*, 128:38–59.
- Peyraud, J. (1968). Théorie cinétique des plasmas, interaction matière-rayonnement : I action d'un rayonnement donné sur la fonction de distribution électronique par l'intermédiaire des chocs compton. *J. Physique*, 29(1):88–96.
- Phelps, A. V. (1966). *Physics of Quantum Electronics*, chapter Theory of Growth of Ionization During Laser Breakdown, pages 538–547. McGraw-Hill.
- Phuoc, T. (2000). Laser spark ignition : experimental determination of laser-induced breakdown thresholds of combustion gases. *Optics Communication*, 175 :419–423.
- Phuoc, T., White, C., and McNeil, D. (2001). Laser spark ignition of a jet diffusion flame. *Optics and Lasers in Engineering*, 38:217–232.
- Phuoc, T. and White, F. (1999). Laser-induced spark ignition of methane/air mixtures. *Combust. Flame*, 119 :203–216.
- Phuoc, T. and White, P. (2002). An optical and spectroscopic study of laser-induced sparks to determine available ignition energy. In *Twenty-eighth Symposium (International) on Combustion. The Combustion Institute*, pages 1621–1628.
- Pierluissi, J. H., Vanderwood, P. C., and Gomez, R. B. (1977). Fast calculational algorithm for the voigt profile. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 18:555–558.
- Press, W., Flannery, B., Teukolsky, S., and Vetterling, W. (1986). *Numerical recipes in fortran* 77 : the art of scientific computing. Cambridge University Press.
- Quabis, S., Dorn, R., M., E., O., G., and Leuchs, G. (2000). Focusing light to a tighter spot. *Opt. Commun.*, 179 :1–7.
- Rabinovich, S. G. (1999). *Measurement Errors and Uncertainties, Theory and Practice*. Springer-Verlag.
- Raizer, Y. P. (1966). Breakdown and heating of gases under the influence of a laser beam. *Sov. Phys. Usp.*, 8(5):650–673.
- Raizer, Y. P. (1997). Gas Discharge Physics. Springer.
- Ramsden, S. A. and Savic, P. (1964). A radiative detonation model for the development of a laser-induced spark in air. *Nature*, 203 :1217–1219.
- Rayleigh, L. (1879). Phil. Mag., 8:403.
- Rimmer, M. P., King, C. M., and Fox, D. G. (1972). Computer program for the analysis of interferometric test data. *Appl. Opt.*, 11(12):2790–2796.

- Robart, N. (2000). *Contrôle actif des instabilités de combustion dans les turbines à gaz*. PhD thesis, Université de Toulouse.
- Ronney, P. (1985). Effect of gravity on laminar gas combustion ii : ignition and extinction phenomena. *Combust. Flame*, 62 :121–133.
- Ronney, P. (1994). Laser versus conventional ignition of flames. Opt. Eng., 33(2):510–521.
- Root, R. (1989). Modeling of post-breakdown phenomena. In Radziemski, L. and Cremers, D., editors, *Laser-Induced Plasmas and Applications*, pages 69–103. Marcel Dekker. New York and Basel.
- Rosen, D. I. and Weyl, G. (1987). Laser-induced breakdown in nitrogen and rare gases at 0.53 and 0.35 μm. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 20 :1264–76.
- Sakurai, A. (1953). On the propagation and structure of the blast wave, i. J. Phys. Soc. Japan, 8(5):662–669.
- Sakurai, A. (1954). On the propagation and structure of the blast wave, ii. J. Phys. Soc. Japan, 9(2):256–266.
- Samson, J. A. R. (1967). Techniques of Vacuum Ultraviolet Spectroscopy. Wiley, New York.
- Saunders, J. B. (1965). Precision method for evaluating primary aberrations of lenses with a twyman interferometer. *Journal of research of the National Bureau of Standards*, 69C(4):251–255.
- Schell, R. and Tyra, G. (1971). Irradiance from an aperture with truncated-gaussian field distribution. J. Opt. Soc. Am., 61:31–35.
- Schmeider, R. (1981). Laser spark ignition and extinction of a methane-air diffusion flame. *J. Appl. Phys.*, 52(2) :3000–3003.
- Seitzmann, J. and Hanson, R. (1993). Comparison of excitation techniques for quantitative fluorescence imaging of reacting flows. *AIAA J.*, 31(3):513–519.
- Siegman, A. (1990). New developments in laser resonators. Proc. SPIE, 1224 :2-14.
- Siegman, A. E. and Ruff, J. (1992). Effects of spherical aberration on laser beam quality. *Proc. SPIE, Laser Energy Distribution Profiles*, 1834 :130–139.
- Simeonsson, J. B. and Miziolek (1994). Spectroscopic studies of laser-produced plasmas formed in CO and CO<sub>2</sub> using 193, 266, 355, 532 and 1064 nm laser radiation. *Appl. Phys. B*, 59(1):1–9.
- Sircar, A., Dwivedi, R. K., and Thareja, R. K. (1996). Laser induced breakdown of Ar,  $N_2$  and  $O_2$  gases using 1.064, 0.532, 0.355 and 0.266  $\mu$ m radiation. *Appl. Phys. B*, 63(6) :623–627.
- Sklar, E. (1975). Effects of small rotationally symmetrical aberrations on the irradiance spread function of a system with gaussian apodization over the pupil. *J. Opt. Soc. Am.*, 65 :1520–1521.

- Sloane, T. (1990). Numerical simulation of electric spark ignition in atmospheric pressure methane-air mixtures. *Combust. Sci. and Tech.*, 73 :367–381.
- Sloane, T. and Ronney, P. (1992). A comparison of ignition phenomena modeled using detailed simplified kinetics. *Comb. Sci. Tech.*, 88 :1–13.
- Smith, D. (2000). Laser induced gas breakdown and plasma interaction. In *AIAA* 38<sup>th</sup> *aerospace sciences meeting* & *exhibit*.
- Smith, D. and Meyerand, R. (1976). Principles of laser plasmas.
- Smith, D. C. (1970). Gas breakdown with 10.6  $\mu$ m wavelength CO<sub>2</sub> laser radiation. J. Appl. *Phys.*, 41:4501–4505.
- Smith, L. M. (1989). Experimentally acquired meridional-plane intensity distributions of focused light beams in the presence of aberrations. *J. Opt. Soc. Am. A*, 6(7) :1049–1051.
- Spliganin, T., McIlroy, A., Fournier, E., Cohen, R., and Syage, J. (1995). Time-resolved imaging of flame kernels : laser spark ignition of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/Ar mixtures. *Combust. Flame*, 102 :310–328.
- Stelhé, C. and Hutcheon, R. (1999). Extensive tabulations of stark broadened hydrogen line profiles. Astron. Astrophys., Suppl. Ser., 140 :93–97.
- Stricker, J. and Parker, J. G. (1982). Experimental investigation of electrical breakdown in nitrogen and oxygen induced by focused laser radiation at 1.064 μm. *J. Appl. Phys.*, 53(2):851– 855.
- Sun, C.-C. and Liu, C.-K. (2003). Ultrasmall focusing spot with a long depth of focus based on polarization and phase modulation. *Opt. Lett.*, 28(2):99–101.
- Sun, H. (1998). Thin lens equation for a real laser beam with weak lens aperture truncation. *Opt. Eng.*, 37(11):2906–2913.
- Syage, J., Fournier, E., Rianda, R., and Cohen, R. (1988). Dynamics of flame propagating using laser-induced spark initiation : ignition energy measurements. J. Appl. Phys., 64(3) :1499– 1507.
- Tambay, R. and Thareja, R. K. (1991). Laser-induced breakdown studies of laboratory air at 0.266, 0.355, 0.532 and 1.06 µm. *J. Appl. Phys.*, 70(5) :2890–92.
- Tanaka, Y., Saga, N., and Hauchi, K. (1985). Focusing of a gaussian beam through a finite aperture lens. *Appl. Opt.*, 24:1098–1101.
- Tanaka, Y. and Sakuta, T. (1999). Modelling of a pulse discharge in N<sub>2</sub> gas at atmospheric pressure. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 32 :3199–3207.
- Taubert, R. and Lossing, F. P. (1962). J. Am. Chem. Soc., 84 :1523.
- Taylor, G. (1950a). The formation of a blast wave by a very intense explosion i. the atomic explosion of 1945. *Proc. Roy. Soc. London*, A201 :175–186.

- Taylor, G. (1950b). The formation of a blast wave by a very intense explosion i. theoretical discussion. *Proc. Roy. Soc. London*, A201 :159–167.
- Thévenin, D. and Candel, S. (1992). Ignition dynamics of a diffusion flame rolled-up in a vortex. *Physics of Fluids*, 7:434–445.
- Thomsen, C. and Helbig, V. (1991). Determination of the electron density from the stark broadening of Balmer Beta-comparison between experiment and theory. *Spectrochim. Acta B*, 46(8):1215–25.
- Tomlinson, R. G., Damon, E. K., and Buscher, H. T. (1966). *Physics of Quantum Electronics*, page 520. McGraw-hill.
- Townes, C. H. and Schawlow, A. L. (1975). Microwave Spectroscopy. Dover.
- Trott, W. M. (1983). CO<sub>2</sub>-laser-induced deflagration of fuel/oxygen mixtures. J. Appl. Phys., 54 :118–130.
- Vanyukov, M., Venchikov, V.A., Isaenko, V., Pashinin, P., and Prokhorov, A. (1968). Production of a high temperature dense plasma by gas breakdown with the aid of a laser. *JETP Lett.*, 7 :251–253.
- Vargaftik, N., Vinogradov, Y., and Yargin, V. (1996). *Handbook of physical properties of liquids and gases*. Begell House.
- Vidal, C. R., Cooper, J., and Smith, E. W. (1973). Hydrogen Stark broadening tables. *Astrophys. J. Suppl.*, 25 :37–135.
- Voronov, G. (1967). Dependence of the probability of multiphotoionization of atoms on the photon flux intensity. *Sov. Phys. JETP*, 24 :1009–1011.
- Watanabe, K., Nakayama, T., and Mottl, J. (1962). Ionization potentials of some molecules. J. *Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2(4) :369–82.
- Weinberg, F. J. and Wilson, J. R. (1971). Preliminary investigation of the use of focused laser beams for minimum ignition energy studies. *Proc. Roy. Soc. London*, A 321 :41–52.
- White, A. R., Palm, P., Plönjes, E., Subramaniam, V. V., and Adamovich, I. V. (2002). Effect of electron density on shock wave propagation in optically pumped plasmas. J. Appl. Phys., 91(5):2604–2610.
- Williams, A. (1990). Combustion of Liquid Fuel Spray. Butterworth & Co. Ltd.
- Williams, C. (1973). Gaussian beam formulas from diffraction theory. Appl. Opt., 12:871–876.
- Williams, F. (1985). Combustion theory. Benjamin-Cummins, Menlo Park, CA, 2nd edition.
- Witriol, N., Forch, B., and Miziolek, A. (1990). Modeling laser-ignition of combustible gases. In *Proc. 27th JANNAF Combustion Meeting, The Chemical Propulsion Information Agency.*

- Woltz, L. A., Iglesias, C. A., and Hooper, Jr., C. F. (1982). Stark broadening in hot, dense, laser-produced plasmas : a review. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 27(3) :233–242.
- Yablonovich, E. (1974). Self phase modulation of light in a laser breakdown plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 32 :1101–1104.
- Yablonovich, E. (1975). Self phase modulation and short pulse generation from laser breakdown plasma. *Phys. Rev.*, A10 :1888–1895.
- Yalçin, c., Crosley, D., Smith, G., and Faris, G. (1999). Influence of ambient conditions on the laser air spark. *Appl. Phys. B*, 68 :121–130.
- Yoshida, A. (1982). Spherical aberration in beam optical systems. *Appl. Opt.*, 21(10) :1812–1816.
- Young, M. and Hercher, M. (1967). Dynamics of laser-induced breakdown in gases. J. Appl. Phys., 38(11):4393–4400.
- Zernike, F. (1942). Phase-contrast, a new method for microscopic observation of transparent objects. Part ii. *Physica*, 9:974–86.
- Zernike, F. and Nijboer, B. (1949). La théorie des images optique. Revue d'optique.