



HAL
open science

Etude de la transition choc-détonation du nitrométhane par spectrométrie d'émission

Viviane Bouyer

► **To cite this version:**

Viviane Bouyer. Etude de la transition choc-détonation du nitrométhane par spectrométrie d'émission. Optique / photonique. Université Paris X, Nanterre, 2002. Français. NNT : . tel-00849680

HAL Id: tel-00849680

<https://theses.hal.science/tel-00849680>

Submitted on 31 Jul 2013

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.

THÈSE DE DOCTORAT
UNIVERSITÉ PARIS X - NANTERRE

Spécialité : Energétique

Présentée par

Viviane BOUYER

**ETUDE DE LA TRANSITION
CHOC-DÉTONATION DU NITROMÉTHANE
PAR SPECTROMÉTRIE D'ÉMISSION**

Soutenue le 13 Septembre 2002 devant le jury composé de :

J. P. PETITET	Rapporteur	Directeur de Recherches CNRS-Université Paris XIII
J. P. PRENEL	Rapporteur	Professeur, Université de Franche Comté
P. HERVE	Directeur scientifique	Professeur, Université Paris X
H. N. PRESLES	Examineur	Directeur de Recherches CNRS-ENSMA
J. B. SAULNIER	Examineur	Professeur, Université de Poitiers-ENSMA
L. SOULARD	Examineur	Chef de Laboratoire, CEA/DAM/Ile de France

La théorie, c'est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c'est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi!

Albert Einstein

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire d'énergétique et d'économie d'énergie (LEEE) de l'Université Paris X et au Centre d'études de Gramat (DGA/DCE/CEG). La recherche est un travail d'équipe et je tiens à remercier toutes les personnes qui ont contribué à la réussite de ce travail par leurs compétences et leur confiance.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude aux membres du jury : au Professeur Jean-Bernard Saulnier pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse, au Professeur Jean-Pierre Prenel et à Jean-Pierre Petitet pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail et apporté les remarques nécessaires à la mise en valeur du manuscrit et enfin à Henri-Noël Presles et Laurent Soulard qui ont consenti à juger cette thèse.

Je tiens à remercier le Professeur Philippe Hervé pour avoir dirigé ce doctorat, pour les enseignements dont j'ai pu bénéficier durant ces trois années.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Michel Perez, garant technique des activités thermomécaniques au CEG pour m'avoir accueillie au sein du service Physique de la détonation et des chocs.

Je remercie tout spécialement Gérard Baudin et Christian Le Gallic pour les connaissances qu'ils m'ont apportées, leur disponibilité, leurs encouragements et les agréables moments passés au CEG. Je remercie également Isabelle Darbord au LEEE pour ses nombreux conseils et son soutien.

J'adresse mes remerciements les plus sincères à Pascal Bouinot, Régis Duconget et Patrice Brunet sans lesquels la réalisation des essais n'aurait été possible. J'associe aussi Jean-Yves Grouffal qui a répondu à mes nombreuses questions avec un intérêt constant.

J'ai été très sensible aux récompenses qui m'ont été accordées lors des symposiums de l'American Physical Society et de l'Aeroballistic Range Association.

Enfin, je tiens à remercier tous les membres et ex-membres du CEG (couloir du MEB3) ainsi que tous les thésards, ex-thésards du LEEE, pour leur soutien, leurs conseils et la chaleureuse ambiance qui ont contribué au bon déroulement de cette thèse.

RESUME

Ce travail de thèse porte sur l'étude des mécanismes d'amorçage par choc du nitrométhane (NM), explosif liquide, transparent dans le domaine visible et dans le proche infrarouge. Afin de réaliser l'analyse spectrale des produits de réaction du NM en vue de déterminer les profils de température, un banc de spectrométrie d'émission a été mis au point dans le domaine UV-Visible 0,3-0,85 μm . Des essais d'impacts plans à 8,6 *GPa* ont été réalisés.

L'étude temporelle et spectrale de la luminance émise durant la TCD montre que les milieux en présence présentent différentes caractéristiques optiques. Le NM sous choc est transparent alors que la température de luminance mesurée est de 2500 *K*, du fait de la présence de réactions chimiques localisées. Les espèces chimiques produites lors de la formation de l'onde de superdétonation constituent un milieu semi-transparent, milieu optiquement mince aux courtes longueurs d'onde, inférieures à 0,6 μm et optiquement épais pour les longueurs d'onde comprises entre 0,6 et 0,85 μm . En détonation quasi-stationnaire, l'étude spectrale dans le domaine visible montre que les produits de détonation n'ont pas le comportement d'un corps noir, mais celui d'un milieu semi-transparent et optiquement épais.

Un modèle d'absorption est proposé sur la base d'un milieu constitué de vapeur d'eau et de particules de carbone qui suivent le régime de diffusion Rayleigh.

A partir des mesures de luminance, l'inversion mathématique de l'équation de transfert radiatif d'un milieu semi-transparent homogène et non diffusant permet de retrouver les profils de température dans l'épaisseur d'explosif. Elle est validée sur des cas synthétiques de détonation.

ABSTRACT

This study is part of a research program on the detonation of high explosives. The objective of this work is to clarify the mechanism of shock initiation of nitromethane (NM), by spectral analysis in the range 0.3-0.85 μm . NM is a liquid explosive, transparent in the visible and near-infrared range. The experiments consist in plane shock impact on explosive targets at 8.6 *GPa*.

Time-resolved radiance profiles and intensity spectra show that chemical species have several optical characteristics depending on the phases of the shock to detonation transition. Shocked NM remains transparent and its temperature is higher than 2500 *K* because of local chemical reactions. The reactions products produced during the superdetonation formation are semi-transparent : they are optically thick for wavelengths higher than 0.6 μm . The study shows that detonation products behind the detonation wave do not behave like a blackbody in the visible range. Detonation products are semi-transparent and optically thick.

A model for the absorption coefficient is proposed for a water vapour and carbon clusters mixture. It is based on a Rayleigh scattering regime and equation of radiative transfer (ERT) for an emitting and absorbing medium. The resolution of the ERT for semi-transparent gases by an inversion method enables to determine the temperature profiles in the explosive. The method is tested on simple cases of detonation.

MOTS CLES

Nitrométhane	Transition choc-détonation	Détonation
Spectroscopie	Emission	Rayonnement
Semi-transparent	Modèle d'absorption	Température
Equation de transfert radiatif	Inversion	Produits de réaction

Table des matières

Introduction	1
1 Rappels de rayonnement	5
1.1 Introduction	5
1.2 Lois de base du rayonnement thermique	6
1.2.1 Définition de la luminance	6
1.2.2 Luminance d'un corps noir	7
1.2.3 Propriétés radiatives des corps réels	9
1.2.3.1 Emissivité	9
1.2.3.2 Loi fondamentale du rayonnement thermique	9
1.2.3.3 Indice complexe	10
1.2.3.4 Loi de Beer	10
1.3 Introduction au transfert radiatif pour un milieu semi-transparent	11
1.4 Rayonnement des gaz et des particules solides	12
1.4.1 Rayonnement des gaz	12
1.4.2 Rayonnement des particules	14
I Transition choc-détonation d'un explosif liquide, le nitrométhane	17
2 Théorie de la détonation	21
2.1 Explosif étudié : le nitrométhane	21
2.2 Les modèles de détonation	21
2.2.1 Définition de la détonation	21
2.2.2 Théorie de Chapman-Jouguet	23
2.2.3 Théorie de Zeldovitch, Neumann et Doering	25
2.2.3.1 Modèle	25
3 Transition choc-détonation dans un explosif homogène	29
3.1 Amorçage par choc de la détonation	29

3.2	Dispositif expérimental pour l'amorçage de la détonation par impact plan	29
3.3	Description de la transition choc-détonation	30
3.4	Connaissances actuelles de la TCD d'un explosif liquide homogène . .	33
3.5	Importance de la température	34

II Application de la spectroscopie d'émission à l'étude des mécanismes de transition choc-détonation du nitrométhane 37

4	Choix de la méthode de spectroscopie d'émission	41
4.1	Techniques d'analyse optique pour l'étude des matériaux condensés .	41
4.1.1	La pyrométrie optique	41
4.1.2	Autres techniques d'analyse	42
4.2	Discussion	43
5	Dispositif expérimental de détonation	47
5.1	Description	47
6	Dispositif de spectroscopie d'émission	51
6.1	Caractéristiques optiques du nitrométhane	51
6.2	Cahier des charges : contraintes et domaine spectral	52
6.3	Discussion sur le choix du matériel de spectroscopie d'émission	54
6.3.1	Barrette de détecteurs	54
6.3.2	Caméra à balayage de fente et matrice CCD	55
6.3.3	Conclusion	55
6.4	Spectroscopie d'émission dans le domaine visible 0,3 - 0,85 μm	56
6.4.1	Système de collecte du flux	57
6.4.2	Monochromateur	59
6.4.3	Détecteur	60
6.4.4	Acquisition	61
6.4.5	Calibration	61
6.4.6	Calcul d'erreur	62
6.4.6.1	Sources d'erreurs	62
6.4.6.2	Erreur sur la luminance mesurée et sur la température de luminance calculée	63
6.5	Spectroscopie d'émission dans le domaine infrarouge	65
6.5.1	Spectroscopie d'émission avec une barrette de détecteurs HgCdZnTe	65

6.5.2	Spectroscopie d'émission avec des détecteurs InGaAs	67
6.5.3	Conclusion et perspectives de la spectroscopie d'émission dans l'infrarouge proche	69
III Mesures de spectroscopie d'émission dans le domaine visible 0,3 - 0,85 μm		71
7	Etude temporelle	75
7.1	Mesures de luminance	75
7.1.1	Rappel sur les propriétés du NM dans le domaine visible	75
7.1.2	Résultats sur les signaux de luminance obtenus	75
7.2	Températures de luminance	79
7.3	Comparaison avec les essais de pyrométrie	81
7.3.1	Reproductibilité des essais d'impact plan	81
7.3.2	Luminances et températures de luminance obtenues par pyro- métrie	82
8	Etude spectrale	85
8.1	Résultats	85
8.1.1	Principaux résultats	85
8.1.2	Comparaisons des profils à l'entrée du choc, à la formation de la superdétonation, avant et après sa formation et en détona- tion établie	89
8.2	Comparaison avec la pyrométrie, lors de la détonation établie	91
8.3	Interprétation des résultats	92
8.3.1	Résultats dans la littérature	92
8.3.2	Espèces en présence	94
8.3.3	Recherche des caractéristiques optiques des milieux	96
8.3.3.1	Détonation établie	96
8.3.3.2	Propagation de l'onde de superdétonation	102
8.3.3.3	Etape entre l'entrée du choc et la formation de l'onde de superdétonation	105
8.3.4	Modélisation du coefficient d'absorption	107
8.3.4.1	Modélisation du coefficient d'absorption des parti- cules de carbone	107
8.3.4.2	Modélisation du coefficient d'absorption de la vapeur d'eau	113
8.3.4.3	Synthèse	118
8.3.4.4	Essai d'impact plan sur un mélange tétranitromé- thane - nitrobenzène	124

8.4	Conclusion	127
IV	Détermination des profils de température	129
9	Méthode inverse pour la résolution de l'équation de transfert radiatif	133
9.1	Transfert radiatif appliqué à la TCD du NM	133
9.2	Résolution du problème inverse	135
9.2.1	Mise en équation du transfert radiatif	136
9.2.2	Analyse de sensibilité	136
9.2.3	Optimisation-Inversion	137
9.3	Présentation des cas simples à résoudre	139
9.3.1	Détonation autonome stationnaire soutenue	139
9.3.2	Détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation	140
9.3.3	Cas simplifié d'une superdétonation	140
10	Analyse de sensibilité	143
10.1	Paramétrisation	143
10.1.1	Représentations fines des grandeurs T et K normalisées	143
10.1.2	Paramétrisations réduites du coefficient d'absorption	143
10.1.3	Paramétrisations réduites de la température	147
10.2	Résultats de l'analyse de sensibilité pour les différents cas	148
11	Optimisation	151
11.1	Tracés du critère des moindres carrés	151
11.2	Résultats de l'inversion de l'ETR	152
11.2.1	Stratégies d'optimisation de la fonction coût	152
11.2.2	Résultats d'inversion pour le cas 1	154
11.2.3	Résultats d'inversion pour le cas 2	159
11.2.4	Résultats d'inversion pour le cas 3	163
11.3	Conclusion	167
	Conclusions et Perspectives	169
	Bibliographie	174
	Liste des figures	182
	Liste des tableaux	189

Glossaire

BMI	B. M. Industry
CEG	Centre d'Etudes de Gramat
ETR	Equation de transfert radiatif
IDL	Interferométrie Doppler Laser
INRIA	Institut National de Recherche en Informatique et en Automatique
LEEE	Laboratoire d'énergétique et d'économie d'énergie
NM	Nitrométhane
TCD	Transition choc-détonation
VISAR	Velocity Interferometer System for Any Reflectors

Nomenclature

Symboles

a	rayon d'une particule
A	facteur préexponentiel dans la loi d'Arrhénius
c	vitesse de la lumière dans le vide, $2,9979.10^8 \text{ m.s}^{-1}$
C_1	constante de la loi de Planck, $1,191.10^8 \text{ Wm}^{-2}\mu\text{m}^4\text{sr}^{-1}$
C_2	constante de la loi de Planck, $1,4388.10^4 \mu\text{mK}$
C_{abs}	surface efficace d'absorption
C_{ext}	surface efficace d'extinction
C_{sca}	surface efficace de diffusion
C_v	chaleur spécifique à volume constant
$dL_\lambda^e(x)$	flux émis par une tranche élémentaire
$dL_\lambda^a(x)$	flux absorbé par une tranche élémentaire
D	vitesse de l'onde de détonation
e	énergie interne spécifique
E_a	énergie d'activation
f_v	fraction volumique
h	constante de Planck, $6,6262.10^{34} \text{ Js}$
k	constante de Boltzmann, $1,3806.10^{-23} \text{ JK}^{-1}$
K_λ	coefficient d'absorption monochromatique
k	coefficient d'absorption monochromatique normalisé
\hat{k}	coefficient d'absorption monochromatique normalisé fourni pour l'inversion
i	angle d'incidence
J	critère des moindres carrés
j	critère des moindres carrés normalisé
l	épaisseur
$L_\lambda(T)$	luminance monochromatique
$L_\lambda^0(T)$	luminance spectrale du corps noir
L^{cal}	luminance calculée avec l'équation de transfert radiatif
l^{cal}	luminance calculée normalisée
L_{mes}	luminance mesurée
m_t	paramètres de la température

\tilde{n}	indice de réfraction complexe
n	indice réel
P	pression
$P(L^{cal})$	pourcentage de mesures expliquées
Q	chaleur de décomposition
Q_{abs}	facteur efficace d'absorption
Q_{ext}	facteur efficace d'extinction
Q_{sca}	facteur efficace de diffusion
R	constante des gaz parfaits
T	température
t	température normalisée
u	vitesse matérielle
v	volume massique
V_p	vitesse de l'interface plaque de transfert / explosif
W	poids
x	paramètre de taille
x	distance
x_D	position de l'onde de détonation
α_λ	facteur d'absorption monochromatique
γ	Constante adiabatique
Δx	pas d'espace
ε_λ	facteur d'émission monochromatique
ϵ^{mes}	erreur relative
Θ^{fin}	vecteur des paramètres
Θ^{fin}	vecteur des paramètres d'optimisation
λ	longueur d'onde
λ	paramètre d'avancement de la réaction
λ_p	libre parcours moyen des photons
ν	fréquence
ρ	masse volumique
σ	sensibilité
σ^{bruit}	niveau de bruit
σ_λ	coefficient de diffusion monochromatique
τ	temps d'induction
τ_λ	facteur de transmission monochromatique
ϕ	flux
φ'	matrice jacobienne
χ	indice d'extinction
Ω	angle solide

Indices

0	valeur initiale, au repos
CJ	valeur à l'état de Chapman-Jouguet
i	indice d'espace
j	indice de longueur d'onde
k	indice de temps
l	indice de noeud d'interpolation

Introduction

Le sujet de la thèse s'inscrit dans un programme d'amélioration et de validation des modèles d'amorçage de la détonation. Ce programme repose sur une approche à la fois moléculaire et macroscopique comportant trois actions : 1-le comportement sous choc de l'explosif, 2-les lois d'états des produits de réaction et de détonation, 3-l'aspect cinétique chimique.

Les travaux présentés dans ce mémoire sont relatifs aux trois actions et portent sur l'étude de l'amorçage par choc du nitrométhane (ou transition choc-détonation), explosif liquide pris comme cas d'école. Depuis une quarantaine d'années, le nitrométhane fait l'objet d'études théoriques et expérimentales [50, 45]. Les mécanismes de détonation ne sont pas encore bien interprétés même pour un explosif relativement simple comme le nitrométhane. Leur compréhension repose uniquement sur des mesures de grandeurs mécaniques telles que la pression et la vitesse matérielle. La température, plus difficile à déterminer expérimentalement, est pourtant un paramètre essentiel à la validation des modèles théoriques, l'élaboration de lois d'état et la connaissance des cinétiques chimiques.

La brièveté et le caractère destructeur des essais de détonation imposent l'utilisation de techniques de mesure non intrusives. Les méthodes optiques sont donc couramment utilisées. Les techniques de vélocimétrie laser (IDL, VISAR) permettent d'obtenir la vitesse matérielle. La spectroscopie est appliquée en tant que spectroscopie d'émission dans le domaine visible, spectroscopie d'absorption dans l'ultraviolet et le visible, spectroscopie infrarouge, spectroscopie Raman, ... La pyrométrie optique a également été utilisée pour l'étude des matériaux condensés depuis 1958 [32] et le CEG a développé récemment un pyromètre multi-longueurs d'onde dans le visible et l'infrarouge [49, 54].

Le développement de la technique pyrométrique est lié à l'intérêt d'accéder à la température des milieux lors de l'amorçage de la détonation. Mais sa détermination repose sur la connaissance préalable de l'émissivité. Or, les produits de réaction et de détonation du nitrométhane sont dans des états denses (environ 2000 kg/m^3), à de très hautes pressions (15-30 *GPa*) et de très hautes températures (3000-4500 *K*). Ces états thermodynamiques, propres à la détonation ne sont pas aisément accessibles et leurs caractéristiques optiques ne sont donc à ce jour pas connues. Si les études

de combustion permettent d'étudier les domaines où les pressions sont de quelques dizaines de bar et les températures de l'ordre de 2000 K [19], on peut difficilement extrapoler leurs propriétés optiques à celles des produits de réaction issus de la détonation d'un explosif. C'est pourquoi la pyrométrie est basée sur le choix d'un modèle du facteur d'émission. L'hypothèse de corps noir ou gris est courante [22, 80, 86]; des hypothèses plus complexes comme la variation linéaire ou polynomiale du facteur d'émission en fonction de la longueur d'onde sont également rencontrées [31, 49]. Mais il est fort probable que les espèces chimiques produites lors de la transition choc-détonation conduisent plutôt à des milieux semi-transparents, dont l'émissivité ne vérifie pas ces hypothèses [79]. L'imprécision sur les mesures de température peut atteindre 1000 K par exemple pour un écart d'émissivité de 0,8.

C'est pourquoi, suite aux travaux de thèse de Léal-Crouzet au CEG sur l'application de la pyrométrie optique à l'étude des explosifs condensés [50], il est apparu qu'une analyse spectrale du nitrométhane était nécessaire afin de vérifier et éventuellement de corriger les hypothèses sur l'émissivité durant la transition choc-détonation. Une analyse de spectroscopie permet d'apporter des informations complémentaires, ne serait-ce que par la résolution spectrale. L'étude bibliographique des différents travaux expérimentaux sur le nitrométhane nous a conduit à choisir la spectroscopie d'émission, technique facilement adaptable au dispositif de détonation existant du CEG. Le domaine spectral envisagé initialement était compris entre 0,3 et 5 μm . Pour des raisons techniques, seule l'exploration du domaine visible 0,3-0,85 μm est présentée ici, la mise au point du domaine 0,85-1,8 μm étant à poursuivre. Les mesures de spectroscopie d'émission fournissent l'intensité émise par le nitrométhane lors de la phase d'amorçage et de la détonation, sous forme de luminance spectrale. L'exploitation des signaux en fonction du temps et de la longueur d'onde permet d'obtenir des informations sur les caractéristiques optiques : le milieu est-il opaque, semi-transparent, ... ?

À partir des luminances, il est possible de déterminer les profils de température et d'accéder à leur répartition spatiale et temporelle. Cette détermination repose sur l'inversion mathématique de l'équation de transfert radiatif d'un milieu semi-transparent. À notre connaissance, cette méthode n'a jamais été appliquée en détonique. La méthode de résolution présentée ici a fait l'objet d'une coopération avec l'équipe Estime de l'INRIA qui a développé un algorithme d'inversion à partir de l'étude de cas simples de détonation. Il permet de déterminer les deux grandeurs physiques que sont la température et le coefficient d'absorption.

Le plan de ce mémoire sera donc articulé de la façon suivante :

- Avant d'aborder la problématique de l'amorçage par choc du nitrométhane, de son analyse spectrale et de la détermination de la température, des rappels sur les notions de rayonnement utilisées dans la thèse seront présentés dans le chapitre 1. Les lois de base du rayonnement thermique sont rappelées et le

transfert radiatif d'un milieu semi-transparent est expliqué. Un paragraphe est consacré au rayonnement des gaz et des particules.

- La première partie concerne la transition choc-détonation du nitrométhane, explosif liquide homogène. Elle est composée de deux chapitres. Le chapitre 2 porte sur la théorie de la détonation à travers les deux modèles de Chapman-Jouguet et de Zeldovitch, Neuman et Doering. La théorie de la transition choc-détonation est présentée dans le chapitre 3. Le modèle de Chaiken est discuté et un paragraphe permet de comprendre la difficulté de déterminer la température.
- La seconde partie traite de l'application de la spectroscopie d'émission à l'étude des mécanismes de transition choc-détonation du nitrométhane. Nous commencerons dans le chapitre 4 par un résumé des techniques pyrométriques et spectroscopiques utilisées pour l'étude du nitrométhane, ce qui nous a permis de choisir la spectroscopie d'émission. Le chapitre 5 décrit le dispositif de détonation du CEG utilisé pour les essais d'impact plan. Le chapitre 6 décrit ensuite le dispositif de spectroscopie. Après avoir présenté les caractéristiques optiques du nitrométhane et établi un cahier des charges, nous discutons du choix du matériel. L'analyse spectrale est scindée en deux études : l'étude du domaine visible 0,3-0,85 μm et l'étude du domaine infrarouge. Pour chacun des cas, l'appareillage est décrit. Le calcul d'erreur des différentes grandeurs est effectué.
- La troisième partie est l'exploitation des mesures de spectroscopie d'émission dans le domaine visible. On distingue l'analyse temporelle des signaux (chapitre 7) de l'analyse spectrale (chapitre 8). Compte-tenu des observations sur les caractéristiques optiques des milieux en détonation, avant, pendant et après la superdétonation, et à l'entrée du choc, un modèle d'absorption est proposé et est comparé à nos résultats.
- Enfin, la dernière partie porte sur la détermination des profils de température. Le chapitre 9 présente le transfert radiatif appliqué à la transition choc détonation avant de décrire la méthode de résolution du problème inverse. Les cas simples qui ont permis d'élaborer le programme d'inversion sont expliqués. Tout d'abord l'analyse de sensibilité de l'équation de transfert radiatif aux grandeurs température et coefficient d'absorption est réalisée (chapitre 10), puis les résultats de l'inversion sont discutés (chapitre 11).
- Les éléments essentiels et les perspectives de ce travail de thèse sont résumés en conclusion.

1 Rappels de rayonnement

Ce chapitre rappelle les notions de rayonnement et de transfert radiatif utilisées dans la thèse. Il est inspiré de plusieurs ouvrages dans les domaines de l'optique, la thermique et le rayonnement, référencés dans la bibliographie [74, 58, 37, 43, 24].

1.1 Introduction

Les trois modes fondamentaux de transfert de chaleur sont la conduction, la convection et le rayonnement. La conduction est un échange thermique entre deux milieux en contact permanent alors que dans le cas de la convection, l'un des milieux se déplace par rapport à l'autre. Par contre, le transfert par rayonnement ne nécessite aucun milieu matériel. Un système isolé dans l'espace peut émettre un rayonnement qui se perdra ou sera capté par un autre système. Le transport du rayonnement se fait par onde électromagnétique ou par les photons. La quantité de chaleur dissipée par rayonnement thermique est proportionnelle à la puissance quatrième de la température. Par conséquent, le rayonnement thermique devient plus important lorsque la température augmente et peut devenir prépondérant pour de très hautes températures.

Deux points de vue existent pour décrire le rayonnement thermique : les ondes électromagnétiques ou les photons. Aucun de ces points de vue n'est capable d'expliquer à lui seul tous les phénomènes radiatifs : en général, les propriétés radiatives des liquides, des solides et des interfaces sont plus facilement prédites par la théorie des ondes électromagnétiques alors que les propriétés des gaz sont déduites de la mécanique quantique.

Tout corps, quelle que soit sa température va donc émettre un rayonnement, qui correspond à la diminution de son agitation thermique électronique atomique ou moléculaire. Lorsqu'un atome ou une molécule saute d'un niveau d'énergie à un autre suite à une désexcitation, apparaît l'émission d'un rayonnement de fréquence ν vérifiant la relation :

$$\Delta E = h\nu \tag{1.1}$$

avec h constante de Planck.

Les ondes électromagnétiques ont été classées suivant leur comportement en différentes catégories, montrées sur la figure 1.1. Le spectre peut s'exprimer en longueur d'onde (μm), en fréquence (Hz) ou en nombre d'onde (cm^{-1}). Le rayonnement électromagnétique ou les photons émis dans la gamme de longueurs d'onde 0,1 - 100 μm est souvent appelé rayonnement thermique.

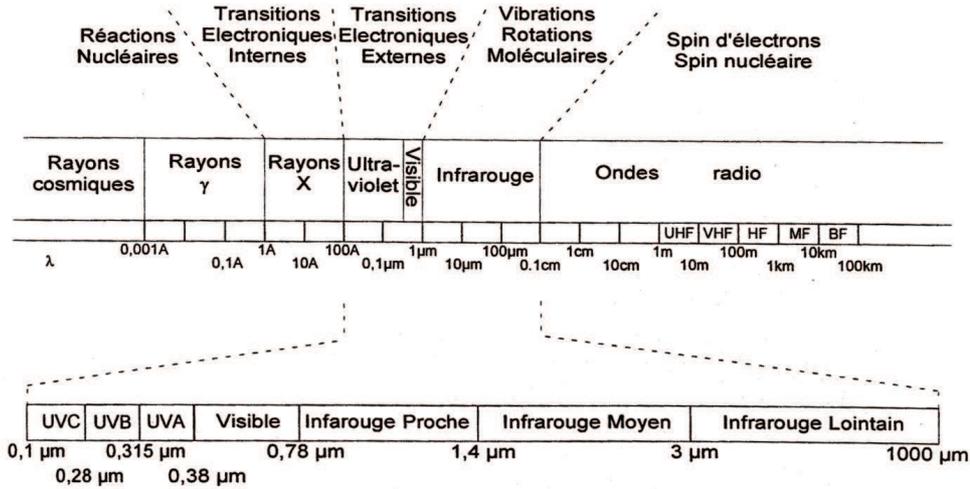


FIG. 1.1 - Domaines du spectre électromagnétique (extrait de [9])

1.2 Lois de base du rayonnement thermique

1.2.1 Définition de la luminance

Considérons un élément de surface dS de normale \vec{n} entourant un point M (Fig. 1.2).

L'énergie $\delta^4\Phi$ contenue dans un angle solide $d\Omega$, rayonnée par unité de temps par la surface dS dans la direction \vec{i} est telle que :

$$L = \frac{\delta^4\phi}{\cos i \cdot d\Omega \cdot dS} \quad (1.2)$$

Par définition, L est la luminance énergétique de la surface dS et s'exprime en $Wm^{-2}sr^{-1}$.

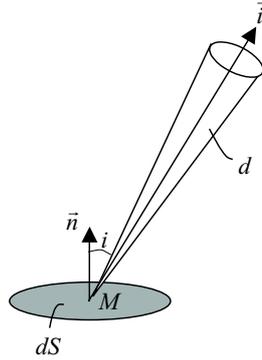


FIG. 1.2 - Intensité d'une source dans une direction donnée

Le flux total $\delta^4\Phi$ est relié au flux spectral ou flux monochromatique $\delta^4\Phi_\lambda$ en intégrant suivant la longueur d'onde λ :

$$\delta^4\Phi = \int_0^\infty \delta^4\Phi_\lambda \cdot d\lambda \quad (1.3)$$

D'où l'expression de la luminance spectrale (densité spectrale) :

$$L_\lambda = \frac{\delta^4\Phi_\lambda}{\cos i \cdot d\Omega \cdot dS} \quad (1.4)$$

L_λ s'exprime en $W m^{-2} \mu m^{-1} sr^{-1}$.

1.2.2 Luminance d'un corps noir

Planck a calculé l'émission d'une cavité homogène en température qui absorbe et réémet tout le rayonnement qu'elle reçoit. Cette surface idéale, appelée corps noir, constitue la surface de référence pour l'étude du rayonnement. C'est un émetteur parfait sur tout le domaine spectral. La formule de Planck relie la luminance spectrale du corps noir à la longueur d'onde λ et à la température T :

$$L_\lambda^0(T) = \frac{2hc^2\lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda T}\right) - 1} \quad (1.5)$$

ou encore

$$L_\lambda^0(T) = \frac{C_1\lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{C_2}{\lambda T}\right) - 1} \quad (1.6)$$

Les unités de la longueur d'onde λ , de la température T , des constantes C_1 et C_2 et de la luminance sont données dans le tableau 1.1, ainsi que les valeurs de C_1 et C_2 .

T	K	K
λ	μm	m
C_1	$1,191.10^8 \text{ Wm}^{-2} \mu\text{m}^4 \text{sr}^{-1}$	$1,191.10^{-16} \text{ Wm}^2 \text{sr}^{-1}$
C_2	$1,4388.10^4 \mu\text{mK}$	$1,4388.10^{-2} \text{ mK}$
$L_\lambda^0(\lambda, T)$	$\text{Wm}^{-2} \mu\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$	$\text{Wm}^{-3} \text{sr}^{-1}$

TAB. 1.1 - Unités usuelles des différents termes de la formule de Planck et valeurs des constantes C_1 et C_2

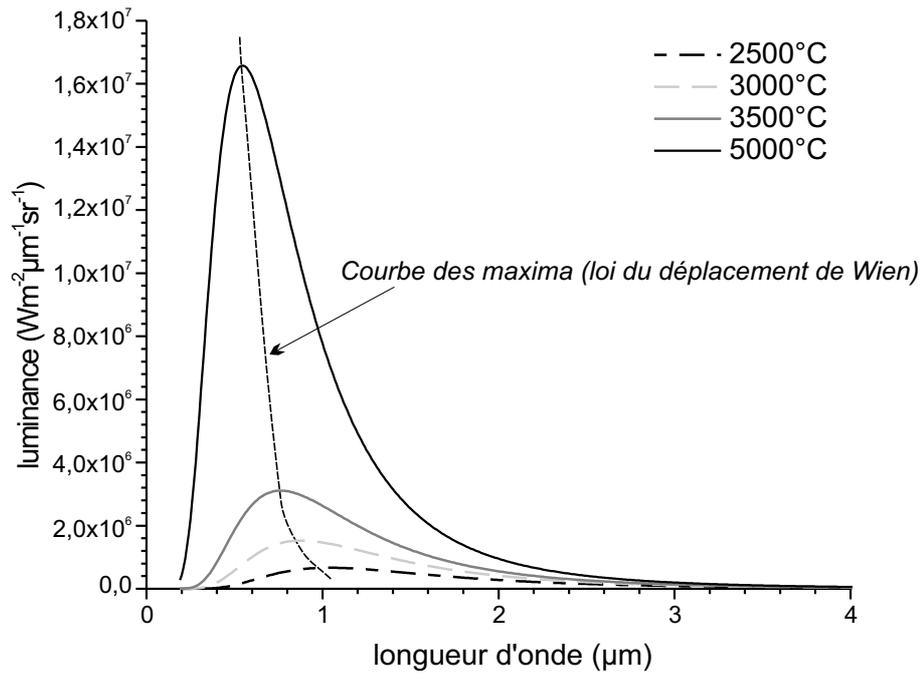


FIG. 1.3 - Courbes de Planck pour différentes températures

La position du maximum de la courbe de luminance varie en fonction de la température suivant la loi du déplacement de Wien (Fig. 1.3) :

$$\lambda_{max}T = 2898 \mu mK \quad (1.7)$$

1.2.3 Propriétés radiatives des corps réels

1.2.3.1 Emissivité

Le corps noir étant le corps dont le rayonnement est maximal, on définit le facteur d'émission spectral ou émissivité monochromatique comme étant le rapport de la luminance spectrale d'une surface réelle à celle du corps noir à la même température et la même longueur d'onde :

$$\varepsilon(\lambda, T) = \frac{L(\lambda, T)}{L_{\lambda}^0(\lambda, T)} \quad (1.8)$$

Le facteur d'émission varie entre 0 et 1. Pour un corps noir, $\varepsilon = 1$. Le terme de *corps gris* caractérise les corps dont le facteur d'émission ne varie pas en fonction de la longueur d'onde. En réalité, il ne peut y avoir de corps gris que sur une plage étroite de longueur d'onde.

Le calcul de la température de luminance T_{lumi} d'un milieu dont l'émissivité est différente de 1, à partir de la luminance du corps noir, correspond au minimum de température de ce milieu.

$$T_{lumi} = \frac{C_2}{\lambda} \frac{1}{\ln\left(\frac{C_1\lambda^{-5}}{L_{\lambda}^0(T)} + 1\right)} \quad (1.9)$$

1.2.3.2 Loi fondamentale du rayonnement thermique

Les corps réels émettent mais absorbent également une portion de l'énergie incidente. La fraction de cette énergie absorbée s'exprime par le facteur d'absorption monochromatique α_{λ} . Une relation importante existe entre le facteur d'absorption et le facteur d'émission, la loi de Kirchhoff. Pour tout système en équilibre thermodynamique, on a :

$$\alpha_{\lambda} = \varepsilon_{\lambda} \quad (1.10)$$

Cette loi est bien vérifiée en pratique, à condition que le rayonnement considéré soit purement thermique (pas de fluorescence).

On définit également le facteur de réflexion ρ_{λ} comme étant le rapport de l'énergie réfléchie par le corps à l'énergie incidente et le facteur de transmission τ_{λ} comme étant le rapport de l'énergie transmise par le corps à l'énergie incidente.

L'équilibre d'un corps se traduit par la conservation de l'énergie. A l'équilibre thermodynamique, on a donc :

$$\alpha_\lambda + \rho_\lambda + \tau_\lambda = 1 \quad (1.11)$$

Un matériau opaque vérifie $\tau_\lambda = 0$: le rayonnement est soit absorbé, soit réfléchi. Un matériau transparent n'interagit pas avec le champ de rayonnement donc tout rayonnement incident est transmis et $\tau_\lambda = 1$.

Mais la plupart des corps (verre, air atmosphérique, eau, ...) sont semi-transparents, c'est-à-dire que τ_λ est compris entre 0 et 1.

1.2.3.3 Indice complexe

La propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu homogène satisfait aux quatre équations de Maxwell. Il est commode pour le calcul de la propagation de l'onde d'utiliser l'indice réel n , rapport de la vitesse de la lumière dans le vide à la vitesse de phase (indice de réfraction) et l'indice imaginaire χ qui traduit l'absorption dans le matériau. On appelle indice complexe du milieu \tilde{n} :

$$\tilde{n} = n - j\chi \quad (1.12)$$

\tilde{n} est lié à la perméabilité diélectrique et à la permittivité magnétique relative du milieu. Les parties réelle et imaginaire de l'indice complexe sont liées par les relations de Kramers-Kronig, chacune des parties s'exprimant comme l'intégrale suivant la longueur d'onde d'une fonction de l'autre. L'étude de ces relations montre que l'hypothèse d'un corps gris, citée plus haut, ne peut être vérifiée que très localement.

1.2.3.4 Loi de Beer

Pour notre étude, nous nous intéresserons particulièrement à l'atténuation d'une onde en fonction de l'épaisseur traversée, l . La loi de Beer exprime le facteur de transmission τ_λ .

$$\tau_\lambda = \exp(-K_\lambda l) = \exp(-4\pi\chi l/\lambda) \quad (1.13)$$

K_λ étant le coefficient d'absorption monochromatique du milieu. Il est égal à :

$$K_\lambda = 4\pi\chi/\lambda \quad (1.14)$$

Il ne faut pas confondre le coefficient d'absorption monochromatique (dont la dimension est $[Longueur]^{-1}$) et le facteur d'absorption monochromatique, sans dimension et inférieur à 1.

Les constantes optiques peuvent être déterminées par l'étude des facteurs de réflexion, de transmission et d'émission. Il y a très peu de résultats sur les constantes optiques à haute température [60].

1.3 Introduction au transfert radiatif pour un milieu semi-transparent

Un milieu semi-transparent est susceptible d'absorber, d'émettre, de transmettre et de diffuser un rayonnement dans chaque élément de volume. L'équation de transfert radiatif est obtenue en effectuant le bilan énergétique de ces effets. Pour écrire cette équation, les hypothèses suivantes sont posées :

- l'équilibre thermodynamique local est supposé atteint,
- l'effet de la diffusion est négligé,
- la propagation du rayonnement peut être considérée comme instantanée dans le cadre de notre étude.

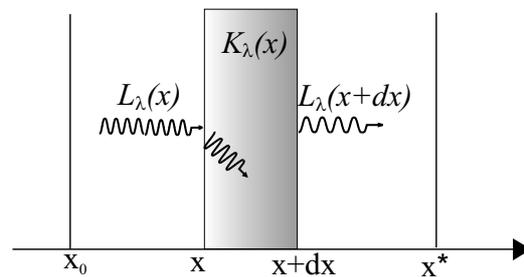


FIG. 1.4 - *Emission/Absorption d'un élément de volume de gaz*

En écrivant le bilan radiatif d'un élément de volume de gaz (Fig. 1.4), on obtient :

- Perte par absorption :

$$dL_{\lambda}^a(x) = -K_{\lambda}(x)L_{\lambda}(x)dx \quad (1.15)$$

- Gain par émission :

$$dL_{\lambda}^e(x) = K_{\lambda}(x)L_{\lambda}^0(T)dx \quad (1.16)$$

$$dL_{\lambda}(x) = dL_{\lambda}^e(x) + dL_{\lambda}^a(x) \quad (1.17)$$

L'équation de transfert radiatif (notée ETR dans la suite) s'écrit alors :

$$\frac{dL_{\lambda}(x)}{dx} + K_{\lambda}(x)L_{\lambda}(x) = K_{\lambda}(x)L_{\lambda}^0(T) \quad (1.18)$$

ou sous forme intégrale

$$L_{\lambda}(x^*) = L_{\lambda}(x_0) \exp\left(-\int_{x_0}^{x^*} K_{\lambda}(x)dx\right) + \int_{x_0}^{x^*} K_{\lambda}(x')L_{\lambda}^0(T) \exp\left(-\int_{x'}^{x^*} K_{\lambda}(x)dx\right) dx' \quad (1.19)$$

Le premier terme de l'ETR représente le rayonnement incident en x_0 transmis jusqu'à x^* et le second terme la somme des contributions des rayonnements émis dans les différentes couches d'épaisseur dx' . Ce dernier terme peut également s'expliquer comme l'émission globale de l'échantillon entre x_0 et x^* compte tenu de l'auto-absorption du milieu.

Le terme exponentiel s'appelle facteur de transmission monochromatique d'une épaisseur x' avec $x' = x - x_0$:

$$\tau_\lambda(x') = \exp\left(-\int_{x_0}^x K_\lambda(x)dx\right) \quad (1.20)$$

Le terme $K_\lambda(x)dx$ est l'épaisseur optique d'une couche d'épaisseur dx . Elle peut également s'exprimer en fonction du libre parcours moyen des photons $\lambda_p = \frac{1}{K_\lambda}$ [73]. Lorsque l'épaisseur optique est largement supérieure à 1 (approximation d'un milieu *optiquement épais*), le libre parcours moyen des photons est négligeable devant l'épaisseur dx . Chaque élément de volume de l'échantillon considéré est directement affecté par son voisin et le transfert radiatif à l'intérieur de l'échantillon devient un processus de diffusion. A l'inverse, lorsque l'épaisseur optique est inférieure à 1 (approximation d'un milieu *optiquement mince*), un photon émis par un élément de l'échantillon ne sera pas absorbé par les éléments. On parle alors d'*auto-absorption* négligeable.

1.4 Rayonnement des gaz et des particules solides

1.4.1 Rayonnement des gaz

Absorption et émission de rayonnement

Les atomes et les molécules de gaz transportent une certaine quantité d'énergie qui consiste en une énergie cinétique et une énergie interne à chaque molécule. L'énergie interne provient de plusieurs contributions, principalement des états énergétiques électroniques, vibrationnels et rotationnels. Ainsi, un photon peut être absorbé par une molécule en élevant le niveau d'énergie d'un électron. D'autre part, une molécule peut émettre spontanément un photon afin de retourner à un niveau d'énergie stable. Cette émission peut également être provoquée par un champ électromagnétique extérieur. C'est le phénomène d'émission stimulée.

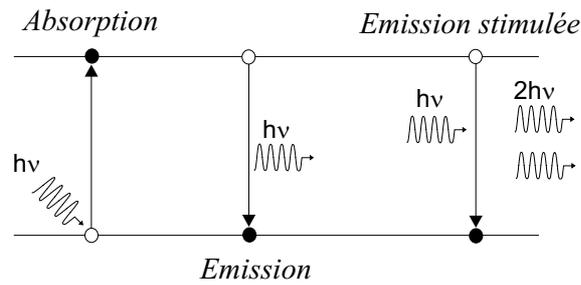


FIG. 1.5 - Processus d'absorption et d'émission entre deux niveaux d'énergie

Largeur de raie

Les phénomènes d'absorption et d'émission sont représentés sous forme d'une courbe donnant la variation de l'intensité absorbée ou émise en fonction de la longueur d'onde (μm), de la fréquence (Hz) ou du nombre d'onde (cm^{-1}); on appelle raies les pics observés sur le spectre. Un exemple de spectre d'absorption est donné figure 1.6 pour le dioxyde de carbone CO_2 à température et pression ambiantes.

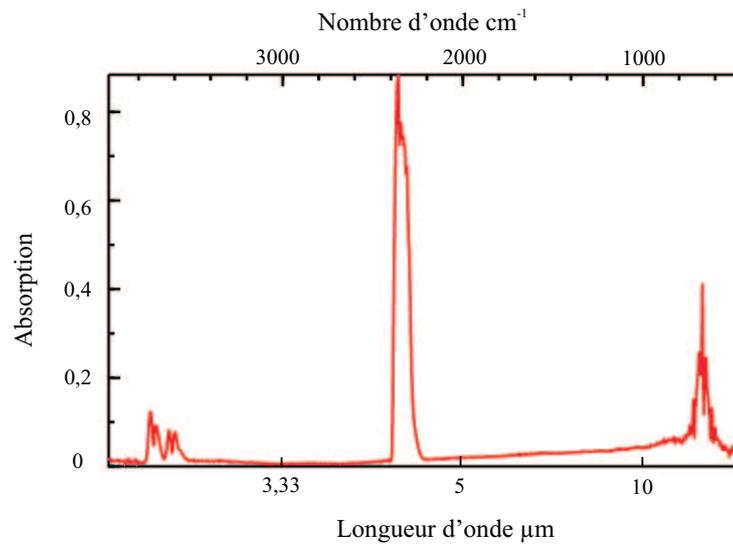


FIG. 1.6 - Spectre du CO_2 à pression et température ambiantes (source NIST Chemistry Webbook)

Les raies ne sont pas strictement monochromatiques mais sont élargies. Cet élargissement est dû à plusieurs facteurs :

- *Élargissement naturel*

La durée de vie τ d'un niveau d'énergie est finie. La radiation émise dans une transition entre deux niveaux d'énergie dure seulement un temps $\tau_1 = \tau$. Le principe d'incertitude temps-fréquence pose que $1/\tau = \Delta\nu$. Cela conduit à un élargissement de raie, homogène et de profil lorentzien.

Cet élargissement est négligeable devant les deux suivants.

- *Élargissement Doppler*

La fréquence à laquelle se produit la transition dépend de la vitesse de l'atome ou de la molécule par rapport au détecteur. Le mouvement des particules étant aléatoire, la fréquence est donc décalée aussi bien vers les hautes que les basses fréquences. Cet élargissement est inhomogène et conduit à un profil de raie gaussien.

- *Élargissement dû à la pression*

Cet élargissement est lié à la fréquence de collision des molécules gazeuses. Plus la pression augmente, plus les collisions sont nombreuses et par conséquent plus la durée de vie moyenne τ est courte, ce qui entraîne un élargissement des raies, élargissement homogène et qui produit des raies lorentziennes, sauf pour les transitions basses fréquences.

Les profils de raie ont une grande importance lorsqu'on étudie quantitativement la transmission du rayonnement dans un milieu gazeux. Les calculs de transfert radiatif dépendent de la bonne connaissance que l'on a du profil de raie.

Le problème de l'élargissement des raies à hautes pressions est important dans le cadre de notre étude car les mécanismes de transition choc-détonation se produisent à des états de pression et température très élevées. Les bases de données actuellement disponibles [66, 44] sont très complètes pour les états à température ambiante ou à basse pression mais elles ne permettent pas d'avoir les spectres d'émission pour les états thermodynamiques rencontrés en détonation (*cf* section 4.2).

1.4.2 Rayonnement des particules

L'interaction entre les photons ou les ondes électromagnétiques avec des particules de petite taille par rapport à la longueur d'onde est différente de celle avec les gaz, liquides ou solides. Aux phénomènes classiques dans ces milieux homogènes (transmission, réflexion, absorption) s'ajoute le phénomène de diffusion. Le parcours d'un photon peut être modifié par diffraction, réflexion et réfraction avec une particule.

La nature de l'interaction entre les photons et les particules dépend de l'indice complexe et de la taille relative des particules comparée à la longueur d'onde de la radiation, appelée paramètre de taille.

On définit le paramètre de taille d'une particule sphérique par :

$$x = \frac{2\pi a}{\lambda} \quad (1.21)$$

a étant le rayon de la particule.

On peut distinguer quatre régimes de diffusion :

- $x \ll 1$ et $x|\tilde{n} - 1| \ll 1$, la taille des particules est petite devant la longueur d'onde et l'indice de réfraction n'est pas très élevé. C'est la diffusion Rayleigh, une des solutions limites de la théorie de Mie. Pour de très petites particules, la diffusion est inversement proportionnelle à λ^4 .
- $x \approx 1$, théorie de Mie. Cette théorie est généralement utilisée lorsque la taille des particules est trop grande pour appliquer Rayleigh mais est trop faible pour appliquer l'optique géométrique.
- $x \gg 1$ et $x|\tilde{n} - 1| \gg 1$, la particule est bien plus grande que la longueur d'onde et l'indice de réfraction n'est pas trop petit. La particule peut être considérée comme une surface et les propriétés de l'optique géométrique s'appliquent.
- $|\tilde{n} - 1| \ll 1$ et $x|\tilde{n} - 1| \ll 1$, n tend vers 1 et $\chi \ll 1$, c'est la solution de Rayleigh-Gans.

La diffusion Rayleigh est un cas particulier de la théorie de Mie pour lequel la forme de la diffusion ne dépend pas de l'indice. Ces différents régimes sont représentés sur la figure 1.7 en fonction du paramètre de taille et de la fraction volumique des particules. On distingue la diffusion indépendante (*independent scattering*) de la diffusion dépendante (*dependent scattering*). Dans le premier cas, la diffusion par une particule n'est pas influencée par la présence des particules voisines. L'étude du rayonnement thermique associé à la diffusion dépendante a été discutée par Baillis *et al.* [2] dans un article présentant de nombreuses applications.

La quantité de diffusion et d'absorption d'une particule s'exprime en terme de section efficace de diffusion C_{sca} et de section efficace d'absorption C_{abs} . La somme de la diffusion et de l'absorption est exprimée par la section efficace d'extinction C_{ext} .

$$C_{ext} = C_{sca} + C_{abs} \quad (1.22)$$

On utilise souvent les facteurs d'efficacité, sans dimension, qui s'expriment par :

$$Q_{sca} = \frac{C_{sca}}{\pi a^2} \quad (1.23)$$

$$Q_{abs} = \frac{C_{abs}}{\pi a^2} \quad (1.24)$$

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{\pi a^2} \quad (1.25)$$

L'ETR peut également s'écrire pour un milieu dispersé. Ce milieu doit être homogène, c'est-à-dire que le diamètre des particules est petit comparé à l'épaisseur

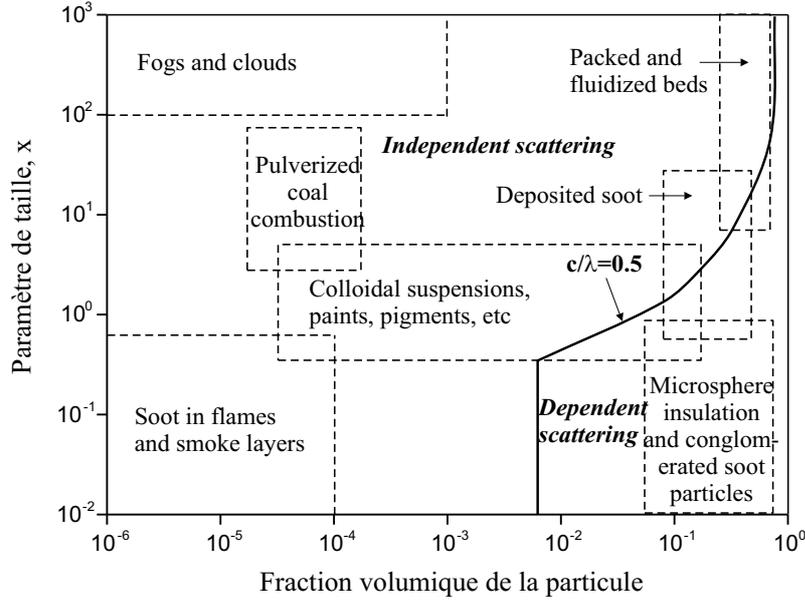


FIG. 1.7 - Régimes de diffusion pour la diffusion indépendante et dépendante [77]

du milieu. Si on ajoute à l'équation 1.18 les termes correspondant à la diffusion, on obtient la luminance émise dans la direction \vec{i} :

$$\frac{dL_\lambda(\vec{i})}{dx} = -(K_\lambda + \sigma_\lambda) L_\lambda(\vec{i}) + K_\lambda L_\lambda^0(T) + \frac{\sigma_\lambda}{4\pi} \int_{4\pi} L_\lambda(\vec{i}') P_\lambda(\vec{i}' \rightarrow \vec{i}) d\vec{i}' \quad (1.26)$$

σ_λ est le coefficient volumétrique de diffusion monochromatique et K_λ est le coefficient volumétrique d'absorption monochromatique.

La fonction de phase $P_\lambda(\vec{i}' \rightarrow \vec{i})$ représente la probabilité que le rayonnement qui se propage dans la direction \vec{i}' soit diffusé dans la direction \vec{i} . Elle est normalisée telle que $\frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} P_\lambda(\vec{i}' \rightarrow \vec{i}) d\vec{i}' = 1$.

Plusieurs modèles sont disponibles dans la littérature pour résoudre l'ETR dans un milieu homogène qui absorbe, émet et diffuse.

La diffusion par des particules sera utilisée dans cette thèse pour l'étude des particules de carbone solide présentes dans les produits de réaction et de détonation.

Première partie

Transition choc-détonation d'un explosif liquide, le nitrométhane

Introduction

Le premier chapitre traite de la théorie de la détonation. Après une présentation de l'explosif liquide étudié, le nitrométhane, les modèles de Chapman-Jouguet et ZND sont décrits. Le premier modèle considère l'onde de détonation comme une onde réactive, le second comme une onde non réactive, suivie d'une zone de réaction d'une certaine épaisseur. Le calcul de la composition chimique des produits de détonation est traité afin d'introduire les espèces chimiques présentes. On ne s'intéresse ici qu'à la détonation plane qui seule sera expérimentée dans cette thèse.

Le second chapitre explique l'amorçage par choc d'un explosif liquide homogène, c'est-à-dire comment s'initie la détonation dans un explosif soumis à un choc. Le modèle de la transition choc-détonation selon Chaiken est expliqué puis discuté à travers les différents travaux présents dans la littérature. Un paragraphe est ensuite consacré à la température, objet de notre étude et à la difficulté de la déterminer. Nous comparons notamment les températures de la détonation déterminées expérimentalement et grâce à différentes modélisations.

2 Théorie de la détonation

2.1 Explosif étudié : le nitrométhane

Le nitrométhane (noté NM dans la suite), CH_3NO_2 , est l'un des rares nitroalcanes pouvant être utilisé comme explosif. Le NM est à l'origine un solvant mais c'est aussi un explosif liquide homogène largement utilisé dans des études de laboratoire du fait de sa transparence et de sa structure chimique relativement simple. Ses principales caractéristiques sont énoncées dans le tableau 2.1.

Masse molaire (g/mol)	61,04
Pureté spectroscopique	> 99%
Masse volumique à 20 °C (kg/m^3)	1134
Viscosité dynamique ($mPa.s$)	0,61

TAB. 2.1 - *Propriétés du nitrométhane utilisé (marque FLUKA)*

La pression critique du choc pour initier la détonation du NM est de l'ordre de 8 GPa , ce qui constitue un seuil d'amorçage élevé. Malgré ce seuil, le NM constitue un explosif prototype pour la compréhension des mécanismes de décomposition induits par un choc, en particulier au niveau moléculaire et atomique [36]. L'étude d'un explosif liquide par rapport à un explosif solide a pour avantage d'éviter la complexité microstructurale de ce dernier.

2.2 Les modèles de détonation

2.2.1 Définition de la détonation

L'onde de détonation est la propagation de réactions chimiques dans une substance explosive à vitesse supersonique [76] (plusieurs milliers de m/s). Elle est constituée d'une onde de choc suivie de réactions chimiques exothermiques qui entretiennent la propagation de l'onde. La détonation est autonome et se propage à une vitesse constante [89] en régime stationnaire.

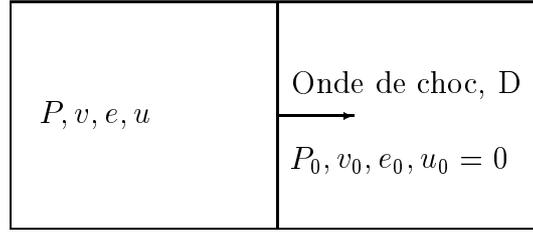


FIG. 2.1 - Propagation de l'onde de détonation dans un explosif au repos

Les lois de conservation de masse, de moment et d'énergie (relations de Rankine-Hugoniot) appliquées de part et d'autre de la discontinuité induite par l'onde de choc (Fig. 2.1) s'écrivent de la façon suivante :

– Conservation de la masse

$$v(D - u_0) = v_0(D - u) \quad (2.1)$$

– Conservation de la quantité de mouvement

$$v_0(P - P_0) = (D - u_0)(u - u_0) \quad (2.2)$$

– Conservation de l'énergie

$$e(P, v, \lambda^*) + Pv + \frac{(D - u)^2}{2} = e(P_0, v_0, \lambda = 0) + P_0v_0 + \frac{(D - u_0)^2}{2} \quad (2.3)$$

λ représente le paramètre d'avancement de la réaction, compris entre 0 et 1.

Des équations 2.1 et 2.2, on obtient :

$$P - P_0 = -(v - v_0) \frac{D^2}{v_0^2} \quad (2.4)$$

De 2.1, 2.2 et 2.3, on a :

$$e - e_0 = 1/2(P + P_0)(v_0 - v) \quad (2.5)$$

Ce système d'équations, fermé par l'équation d'état thermodynamique $e(P, v, \lambda)$ du milieu réactif, permet le calcul des états sous choc, réactif ou non.

Les équations 2.4 et 2.5 seront expliquées dans le paragraphe suivant.

Les deux principaux modèles qui décrivent la détonation plane stationnaire sont le modèle de Chapman-Jouguet et le modèle de Zeldovitch, Neumann et Doering [89, 29].

2.2.2 Théorie de Chapman-Jouguet

La théorie de Chapman-Jouguet ou théorie CJ, développée au début du XX^e siècle, considère la détonation comme une discontinuité plane qui se propage à vitesse constante dans un milieu homogène (fluide parfait) et qui induit instantanément une réaction chimique lors de son passage. Toute l'énergie chimique étant libérée au niveau du front de l'onde de choc, on peut faire l'hypothèse que la zone de réaction a une épaisseur nulle. Jouguet parle d'une *onde explosive*. Ainsi, l'onde de détonation est vue comme une discontinuité plane, réactive. Le paramètre d'avancement de la réaction λ des équations de Rankine-Hugoniot est égal à 0 dans l'explosif encore au repos et égal à 1 derrière le front de détonation.

L'équation 2.4 représente les droites de Rayleigh dans le plan (P, ν) et l'équation 2.5 la courbe d'Hugoniot ou courbe adiabatique dynamique des produits de détonation (souvent appelée courbe de Crussard) qui décrivent en leur intersection tous les états pouvant être atteints par l'explosif au passage d'une onde de choc réactive, pour un matériau et un état initial donnés. La figure 2.2 représente la courbe de Crussard et les droites de Rayleigh pour un état initial ambiant.

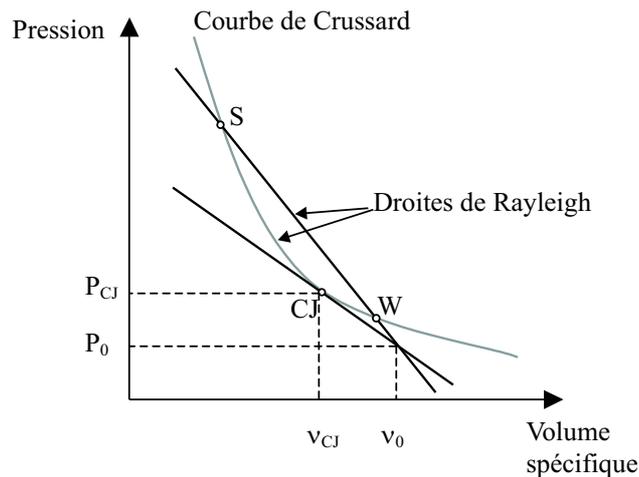


FIG. 2.2 - Courbe de Crussard et droites de Rayleigh dans le modèle CJ

On distingue plusieurs cas :

- $P > P_{CJ}$: la pente de la courbe de Crussard est supérieure en valeur absolue à la pente de la droite de Rayleigh. L'écoulement est subsonique : les détonations fortes sont sensibles à l'action des détenteurs extérieures qui peuvent rattraper le front de détonation et l'affaiblir [76]. Cet état n'est pas stable.
- $P < P_{CJ}$: c'est le domaine de la détonation faible : l'écoulement se propage de manière supersonique. C'est un état thermodynamiquement instable mais

déjà observé dans les détonations dans les gaz [28].

- $P = P_{CJ}$: la seule solution stable est lorsque la droite de Rayleigh est tangente à la courbe de Crussard au point dit de Chapman-Jouguet noté CJ. La détonation est alors stable et sonique. L'état CJ désigne l'état de détonation idéale.

On peut représenter l'onde de détonation dans les plans (P, x) et (T, x) , x représentant la distance de propagation de l'onde (Fig. 2.3).

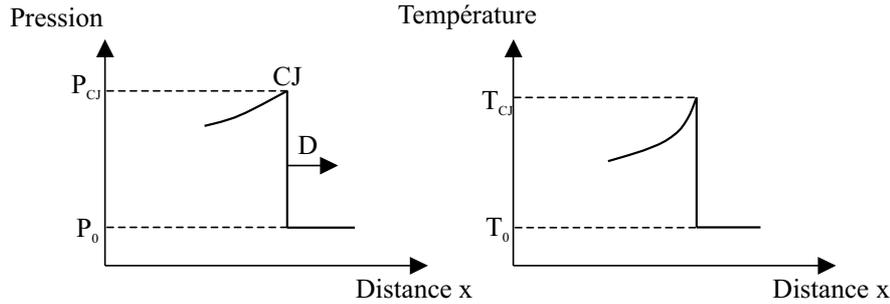


FIG. 2.3 - Profil de l'onde idéale selon le modèle CJ

À l'avant du front de détonation, l'explosif se trouve dans son état initial (T_0, P_0) . L'état de détonation est l'état CJ, (T_{CJ}, P_{CJ}) . Au-delà du point CJ, les produits de détonation subissent une détente isentropique. Dans le cas d'une détonation autonome stationnaire et soutenue, il n'y a pas de détente et la pression et la température restent constantes à l'arrière du front de détonation.

Le modèle CJ est utilisé dans les logiciels de calcul thermo-chimique permettant de déterminer la composition chimique des produits de détonation, leur état thermodynamique dans l'état de détonation, l'isentropique de détente issue de cet état thermodynamique et la courbe de Crussard, pour des explosifs proches de l'idéalité. Le calcul est réalisé à l'équilibre thermo-chimique par minimisation de l'enthalpie libre du mélange des espèces chimiques gazeuses et condensées. La difficulté de ces calculs est due au choix des lois d'état des espèces condensées et du mélange des espèces gazeuses dans les états denses à pression et température élevées. Il existe dans ces codes un grand choix de lois d'état pour la phase gazeuse sous une forme empirique de l'écart au gaz parfait ou sous une autre forme. Dans les codes les plus récents, le mélange des produits gazeux est décrit par une loi d'état théorique déduite de la théorie thermodynamique statistique avec un potentiel intermoléculaire et le carbone est décrit par des lois d'état à plusieurs phases. Ces lois d'états sont cependant des prototypes, encore peu courantes [6]. Le code le plus utilisé est le code CHEETAH [30] développé par le Lawrence Livermore National Laboratory aux USA. L'état de détonation et l'isentropie de détente calculés au moyen de ce code sont uti-

lisés pour identifier des lois d'état empiriques de forme mathématique simple utilisée dans les codes de calcul d'hydrodynamique rapide pour les produits de détonation.

La composition chimique des produits de réaction du NM lors d'une détonation de type Chapman-Jouguet autonome et stationnaire, calculée avec CHEETAH à l'aide de l'équation d'état BKWC ¹ pour le mélange des espèces gazeuses, est donnée dans le tableau 2.2. Cette composition chimique évolue le long de l'isentrope de détente des produits de réaction.

Etat (P, T, v)			Composition en moles/kg d'explosif					
P	T	v	H_2O	N_2	CO	CO_2	CH_4	C
11,3	3665	0,641	22,83	8,176	5,944	1,954	0,545	7,527
5	2880	0,882	19,28	8,143	9,054	2,174	1,894	2,816
1,6	2145	1,413	16,01	8,113	10,41	3,117	2,748	0
0,7	1856	1,94	16,08	8,113	10,41	3,117	2,748	0

TAB. 2.2 - Composition chimique des produits de réaction issus d'une détonation autonome stationnaire du NM calculée avec CHEETAH et l'équation BKWC. P en GPa, T en K et v en cm^3/g .

Le tableau 2.2 montre que les espèces gazeuses majoritaires en présence dans les produits de détonation du NM sont H_2O, N_2, CO, CO_2 et CH_4 . Les particules de carbone solide ne doivent cependant pas être négligées du fait de leur proportion importante.

2.2.3 Théorie de Zeldovitch, Neumann et Doering

2.2.3.1 Modèle

Le modèle de Zeldovitch, Neumann et Doering (ZND), développé dans les années 1940, est un modèle de détonation plane stationnaire à structure épaisse. Contrairement au modèle CJ, la zone de réaction a une épaisseur non nulle. Le processus de détonation consiste en une onde de choc suivie d'un écoulement réactif d'un fluide parfait.

Le front de détonation porte l'explosif au repos ($P_0, v_0, \lambda = 0$) à un état ($P_S, v_S, \lambda = 0$) appelé pic de Von Neumann (VN) (Fig. 2.4). Après cette élévation de pression, les réactions chimiques s'initient et la pression diminue jusqu'à atteindre P_{CJ} , dans l'état de détonation, quand $\lambda = 1$. La zone de réaction qui s'étend du choc jusqu'à la surface représentant la fin des réactions exothermiques est stationnaire. Les

¹Il existe de nombreuses équations d'état déterminées par différents auteurs : BKWC, JWL, KHT, etc.

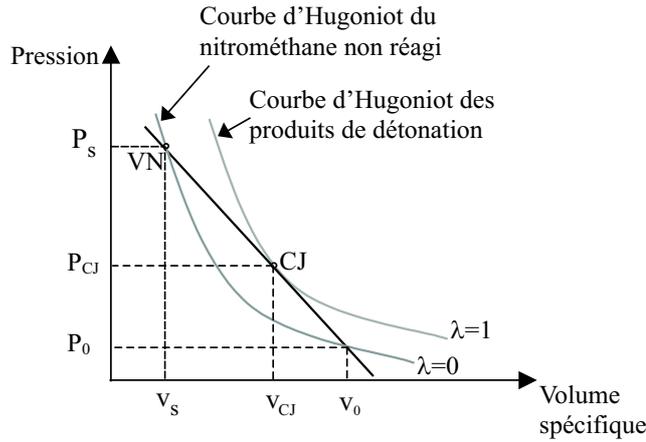


FIG. 2.4 - Courbes d'Hugoniot et droites de Rayleigh dans le modèle ZND

produits de détonation issus des réactions chimiques se détendent de manière isentropique suivant une détente appelée onde de Taylor. La représentation du profil de l'onde de détonation selon ZND est donnée figure 2.5. La largeur de la zone de réactions chimiques est indiquée par a .

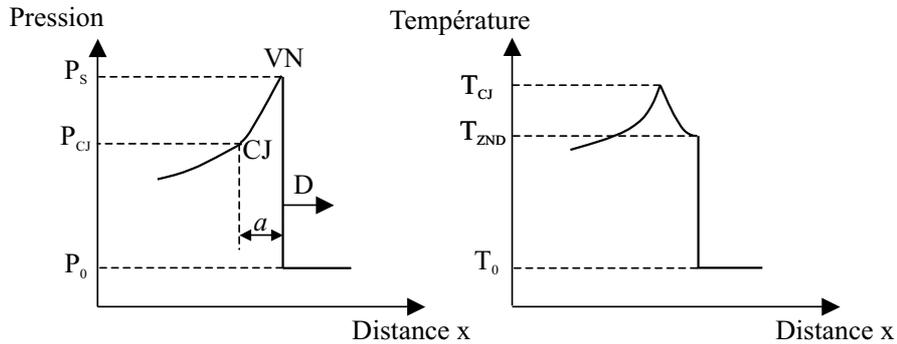


FIG. 2.5 - Profil de l'onde idéale selon le modèle ZND

L'apport important de la théorie ZND est la chute de pression provoquée par la réaction chimique, ce qui semble aller à l'encontre de l'intuition générale. Aujourd'hui, ce modèle prenant en compte une zone de réactions chimiques à l'arrière du front de choc s'avère plus précis que le modèle plus simple de Chapman-Jouguet.

La théorie classique (CJ et ZND) s'applique aux ondes stationnaires unidimensionnelles planes. Hors, les ondes de détonation réelles ont une courbure non nulle et leur vitesse peut éventuellement varier au cours de leur propagation. Dès 1970,

l'étude de plusieurs explosifs liquides dont le NM, a montré que la détonation était apparemment unidimensionnelle, en accord avec la théorie classique dans des cartouches cylindriques de grand diamètre. Afin de rester dans le cas simple de la théorie classique, les essais de détonation réalisés dans cette thèse sont des essais d'impact plan qui produisent des ondes de détonation unidimensionnelles planes.

La modélisation numérique de la détonation du NM a permis de calculer l'épaisseur de la zone de réaction. La nature de cette zone dépend des taux de décomposition chimique et de l'équation d'état utilisée pour décrire les différents milieux en présence. L'épaisseur déterminée par Mader [56] est inférieure à $70 \mu m$. Il est possible de trouver également des estimations d'épaisseurs entre $0,3$ et $600 \mu m$ [28].

Pour un explosif solide, la zone de réaction peut être du même ordre de grandeur, $100 \mu m$ pour l'octogène ou plus épaisse, par exemple $2 mm$ pour le TATB [28].

Lorsque l'épaisseur de la zone de réaction est inférieure à $1 mm$, le modèle CJ est applicable en première approximation [6]. C'est pourquoi dans la suite de la thèse, le cas de la détonation idéale type CJ sera souvent utilisé.

3 Transition choc-détonation dans un explosif homogène

3.1 Amorçage par choc de la détonation

Les matériaux explosifs homogènes sont par définition les liquides ou les monocristaux dans lesquels il y a un minimum de défauts (bulles ou vides) pouvant provoquer des perturbations dans l'initiation de la détonation [28].

L'initiation de la détonation par une onde de choc est le mode d'amorçage le plus couramment retenu pour les études de transition choc-détonation. Ce type d'amorçage permet de réaliser des expériences unidimensionnelles planes que l'on peut donc modéliser plus facilement. Il consiste à produire une onde de choc plane suffisamment intense pour amorcer les réactions dans l'explosif liquide. Si l'application de la pression est suffisamment importante et soutenue, le choc deviendra une détonation. Ce processus, appelé transition choc-détonation, est instationnaire et suit immédiatement l'amorçage.

3.2 Dispositif expérimental pour l'amorçage de la détonation par impact plan

L'onde de choc est initiée dans le NM par l'impact plan d'un disque appelé impacteur, à travers un autre disque intermédiaire appelé plaque de transfert. Le niveau du choc induit dans le NM est maîtrisé à partir de la vitesse d'impact du projectile, de la nature de l'impacteur et de la plaque de transfert, ainsi que de leurs épaisseurs. Le NM étant un explosif liquide, il doit être contenu dans une cellule étanche. La figure 3.1 représente le schéma de ce dispositif.

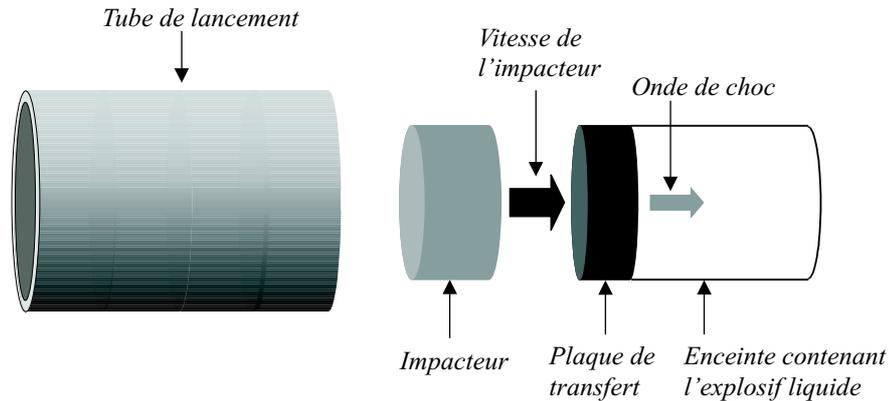


FIG. 3.1 - Schéma du dispositif d'amorçage par impact plan

3.3 Description de la transition choc-détonation

La transition choc-détonation (notée TCD dans la suite) dans un explosif homogène a été étudiée par Chaiken [17] puis Campbell, Travis et Davis [78, 16]. Ces auteurs répondent à deux questions majeures, à savoir, quels sont les processus de formation de la détonation et à quoi est due la sensibilité aux chocs des explosifs. Les études ont conduit au modèle classique de la transition choc-détonation présenté sur la figure 3.2 par un diagramme temps-distance.

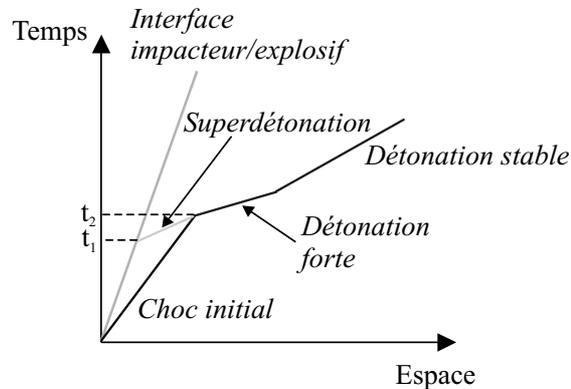


FIG. 3.2 - Modèle classique de la TCD selon Chaiken

Pour le NM, ce processus est observable pour des pressions de choc comprises entre 8 et 12 GPa .

La TCD peut se diviser en trois étapes principales :

1^{re} étape :

Après impact, un choc se propage à une vitesse de l'ordre de 4500 *m/s* dans l'explosif qui est mis en mouvement (Fig. 3.3) et il atteint un état thermodynamique caractérisé par des pressions de l'ordre de 10 *GPa*, des températures de l'ordre de 1000 *K* et une densité d'environ 1900 *kg/m³* (la densité du NM est de 1134 *kg/m³* à l'état ambiant).

2^e étape :

Une explosion thermique a lieu dans la région soumise le plus longtemps à l'élévation de température, à proximité de la plaque de transfert (Fig. 3.4); elle est due à des réactions chimiques du NM qui passe de l'état liquide à des produits de réaction gazeux denses comprimés à une pression de l'ordre de 20 *GPa* et à 3000-4000 *K*. Ces réactions fortement exothermiques conduisent à l'instant t_1 à la formation d'une détonation dans le milieu comprimé par le choc initial que l'on appelle superdétonation. Sa vitesse est supérieure à celle d'une onde de détonation se propageant dans le NM non comprimé.

3^e étape :

La superdétonation se propage et rattrape le choc initial (Fig. 3.5); on observe à l'instant t_2 la formation d'une onde de détonation forte. Celle-ci se relaxe en une onde de détonation autonome stationnaire qui va se propager dans le NM non choqué. Derrière l'onde de détonation, les produits issus des réactions exothermiques sont pour l'essentiel gazeux (H_2O , N_2 , CO , CO_2 et CH_4) d'une densité de l'ordre de 2000 *kg/m³*, à 3500-4000 *K* et 12-20 *GPa* (résultats issus de calcul avec CHEETAH, voir 2.2.2). Des particules de carbone solide sont également présentes (8 *mol/kg d'explosif* environ).

Ces phénomènes se déroulent pendant une durée très courte, de l'ordre de quelques microsecondes.

La théorie de la TCD considère que les phénomènes suivent une cinétique d'Arrhénius et le temps d'induction de l'explosion thermique s'exprime alors selon [38, 27] :

$$\tau = \frac{C_v \rho R T^2}{A Q E_a} \exp\left(\frac{E_a}{RT}\right) \quad (3.1)$$

La sensibilité de l'explosif liquide au choc dépend donc de la température sous choc. Par voie de conséquence, elle dépend aussi de la pression de choc et de la température initiale de l'explosif.

La plupart des travaux sur l'initiation de la détonation dans le NM s'accordent sur ce modèle, malgré quelques divergences dans la formation de la superdétonation et sur la cinétique proposée. Quelques auteurs ont par contre remis en cause l'existence de l'onde de détonation qui se propage dans un milieu comprimé et proposent un autre modèle. Le paragraphe suivant analyse ces différentes approches.

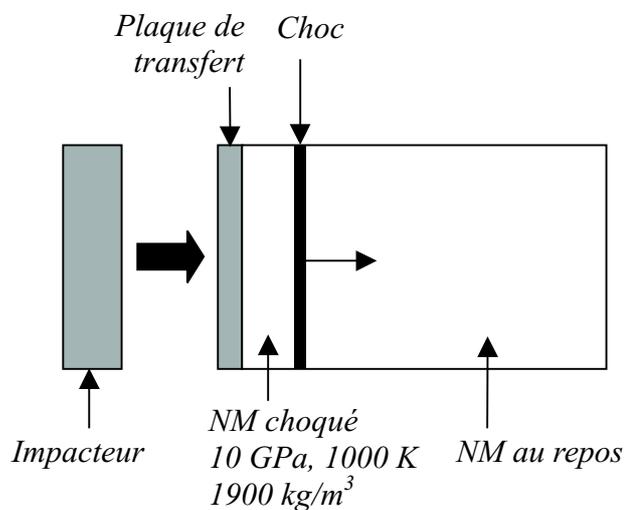


FIG. 3.3 - Schéma de la 1^{re} étape de la TCD dans le NM

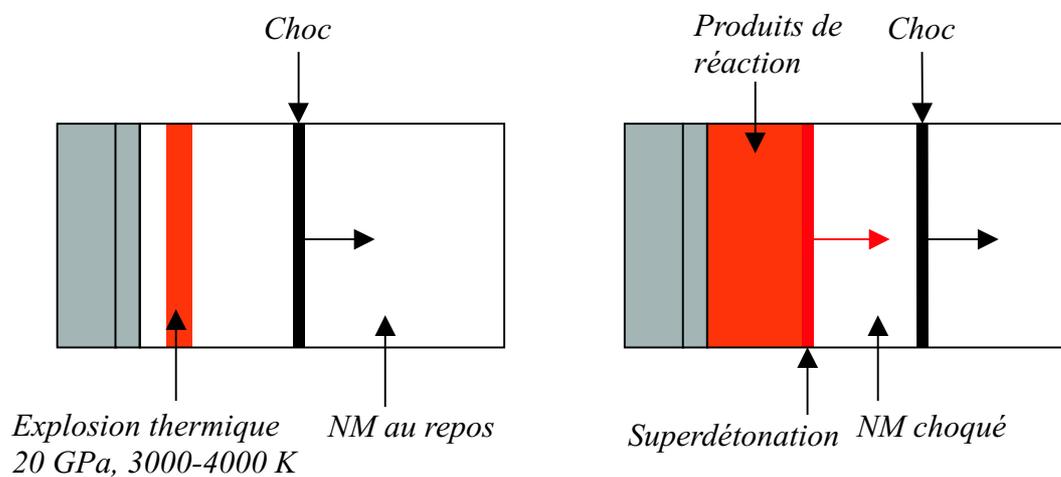


FIG. 3.4 - Schéma de la 2^e étape de la TCD dans le NM

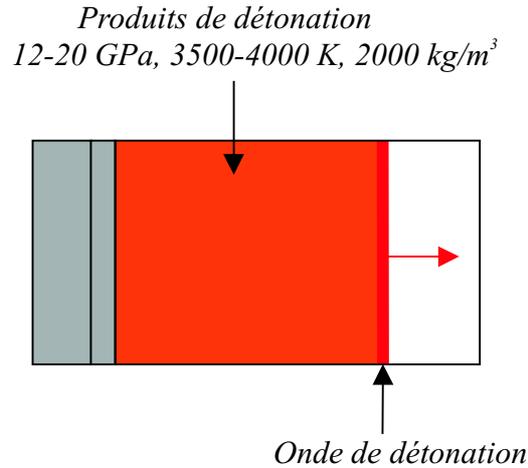


FIG. 3.5 - Schéma de la 3^e étape de la TCD dans le NM

3.4 Connaissances actuelles de la TCD d'un explosif liquide homogène

Le modèle de Chaiken, théorie initiale pour expliquer la TCD stipule que l'onde de détonation dans l'explosif choqué se forme à l'interface impacteur/explosif [78, 16]. En effet, c'est dans cette zone que l'explosif a eu le plus de temps pour réagir [38, 39]. Les travaux de Léal-Crouzet *et al.* [51] proposent que la superdétonation se formerait en réalité à une certaine profondeur dans l'explosif, fonction de la pression. Ses conclusions sont cohérentes avec les résultats de Sheffield *et al.* [28] qui propose un modèle de TCD légèrement différent. L'explosif choqué atteindrait un état (P, T) tel que les réactions chimiques s'amorcent localement dans des zones subcritiques. Elles produiraient alors des ondes de compression au-delà de l'interface impacteur/NM. Ces ondes vont s'accumuler et conduire à un front réactif pouvant devenir une onde de superdétonation. Seuls les travaux de Walker *et al.* [38] ainsi que ceux de Pujol *et al.* [64] remettent en cause l'existence de la superdétonation et proposent des modèles proches des processus de décomposition hétérogène (par points chauds) mais les travaux récents de Léal-Crouzet *et al.* [51] contestent cette approche.

Bien que le NM ait une structure moléculaire simple, son comportement chimique à haute pression est relativement complexe, notamment du fait des nombreux produits de réaction du NM qui sont très réactifs [14]. De plus, les phénomènes de détonation entraînent des conditions thermodynamiques sévères en termes de pression, température et densité. Suite à des travaux théoriques ou des essais permettant de

se rapprocher de ces conditions thermodynamiques, des modèles réactifs de la décomposition du NM ont été proposés. La dynamique moléculaire classique ou *ab initio* et la chimie quantique ont conduit à établir des processus de décomposition bimoléculaire [3, 72]. Par ailleurs, l’hypothèse d’une double cinétique plutôt qu’une simple cinétique d’Arrhénius semble plus vraisemblable ([5, 52]). Des mesures de spectroscopie de masse du NM sous sollicitation de chocs multiples [8] et des mesures de spectroscopie infrarouge lors d’expériences de compression en enclume de diamant [63] mettent également en évidence ce processus bimoléculaire qui conduit aux composés gazeux majoritaires H_2O , N_2O , CO_2 (composition différente de celle déterminée par CHEETAH pour les produits de détonation) et à un composé solide carboné. Il est peu probable que les essais sous haute pression en statique conduisent aux mêmes mécanismes réactionnels que des expériences dynamiques de détonation. Cependant, les résultats obtenus permettent de mieux appréhender la TCD.

3.5 Importance de la température

D’un point de vue théorique et pratique, il est important de connaître la célérité des ondes de choc et de détonation et l’état (P, T) du milieu. Si la vitesse et la pression peuvent être mesurées avec des précisions satisfaisantes respectivement de 1 et 5 % [47], la température demeure difficile à mesurer. C’est pourtant un paramètre nécessaire à la compréhension des réactions chimiques qui se produisent lors de l’initiation de la détonation et à la caractérisation de l’état thermodynamique des produits de détonation. De plus, la valeur de température calculée avec un modèle dépend beaucoup du choix des équations d’état. La vitesse et la pression y sont moins sensibles. Par conséquent, la mesure de la température permettrait de valider les lois d’état et les mécanismes chimiques exothermiques. Les tableaux 3.1 et 3.2 indiquent les principaux résultats obtenus depuis les années 60 sur la température du front de détonation que ce soit expérimentalement ou par calcul avec le choix d’une équation d’état.

Auteurs	Température du front de détonation (K)
Gibson, et al.	3800
Dremin, Savrov	3600
Kato, et al.	3400
Leal-Crouzet, et al.	3600

TAB. 3.1 - *Température du front de détonation du NM d’après des résultats expérimentaux. Résultats tirés de [47, 49].*

Auteurs	Température CJ (K)	Equation d'état
Chéret	3136	BKW
Hardesty, Kennedy	3510	JCZ-3
Tanaka	3300	KHT
Leal-Crouzet, et al.	3530	JWL

TAB. 3.2 - Température du front de détonation du NM d'après des résultats théoriques. Résultats tirés de [47, 49].

Ces tableaux font apparaître des écarts de 400 K parmi les différentes mesures expérimentales ou les calculs basés sur différentes équations d'état. L'écart atteint 800 K entre l'expérience et la modélisation. Winey *et al.* [81] ont calculé la température du NM liquide sous choc pour plusieurs états de pression et trouvent également des écarts de plus de 200 K entre les différentes approches et la mesure expérimentale. La tableau 3.3 reprend leurs résultats, complétés de ceux obtenus par Delpuech *et al.* [25] qui présentent des écarts semblables. Winey a réalisé des expériences de chocs multiples alors que Delpuech a effectué des tirs en cartouches.

P (GPa)	T_{mesure} (K)	T_A (K)	T_B (K)	T_C (K)	T_D (K)
Winey <i>et al.</i>					
8,5	727	661	629	767	593
11	851	786	719	859	670
14,2	896	761	709	863	653
Delpuech <i>et al.</i>					
2,3	474	580	530	-	-
5	712	830	730	-	-
8,5	865	1000	850	-	-

TAB. 3.3 - Températures sous choc du NM : T_A température calculée avec C_v et $\gamma\rho = cte$, T_B avec $C_v = f(T)$ et $\gamma\rho = cte$, T_C selon modèle de Winey, T_D avec $C_v = f(T)$ et $(\delta P/\delta T)_v = cte$

D'autres mesures [49] effectuées durant la TCD ont également montré les écarts entre les mesures et la modélisation. Notamment, les températures précédant la formation de la superdétonation obtenues sont trop élevées pour confirmer un modèle d'amorçage homogène du type loi d'Arrhénius. Des écarts de plus de 1000 K sont observés.

Si la propagation de la détonation établie a été souvent étudiée et comprise, des incertitudes sur le déroulement de la TCD demeurent. La température est un élément important qui doit permettre de développer la compréhension des différents

phénomènes ayant lieu. C'est pourquoi l'objet de la thèse est de développer une technique d'analyse spectrale qui permet d'accéder à la résolution temporelle et spatiale de la température.

Deuxième partie

Application de la spectroscopie d'émission à l'étude des mécanismes de transition choc-détonation du nitrométhane

Introduction

Tout d'abord, on recense les techniques d'analyse optique utilisées pour l'étude des matériaux condensés. Un premier paragraphe traite de la pyrométrie optique, un second, des différentes techniques de spectroscopie. Une discussion sur ces méthodes est faite pour expliquer le choix de la spectroscopie d'émission.

Le dispositif expérimental de détonation du CEG est ensuite décrit.

Le troisième chapitre de cette partie présente le dispositif de spectroscopie d'émission. Il a été développé d'après les caractéristiques optiques du nitrométhane et les contraintes imposées par la configuration des essais d'impact plan. Une fois le cahier des charges et le domaine spectral d'étude définis, nous expliquons le choix du matériel utilisé pour réaliser le dispositif de spectroscopie d'émission. Dans un premier temps, nous décrivons le système de l'étude du domaine spectral visible $0,3-0,85 \mu m$. Ensuite, nous citerons les deux configurations testées pour l'étude du domaine infrarouge.

4 Choix de la méthode de spectroscopie d'émission

4.1 Techniques d'analyse optique pour l'étude des matériaux condensés

Les techniques de mesure optique telles que la pyrométrie sont souvent utilisées pour déterminer la température de détonation d'explosifs. Une des techniques les plus avancées aujourd'hui est la technique pyrométrique 6 longueurs d'onde développée au CEG [49]. C'est un moyen d'investigation intéressant pour comprendre les mécanismes de détonation mais qui repose sur l'hypothèse d'une émission de surface du front de détonation. En réalité, les produits de réaction du NM ainsi que les caractéristiques optiques du milieu sont mal connus surtout dans la phase d'amorçage de la détonation où le milieu est semi-transparent. Face à ces problèmes, une analyse spectroscopique devrait permettre d'apporter des informations complémentaires afin d'améliorer la technique de pyrométrie. Les techniques de spectroscopie sont déjà largement utilisées dans les études sur les mécanismes de détonation des matériaux condensés.

4.1.1 La pyrométrie optique

Depuis de nombreuses années, la pyrométrie optique est devenue d'un grand intérêt en raison du manque de données sur la température du milieu en détonation. Les premiers auteurs ayant obtenu des résultats sur la température de la détonation établie sont Gibson *et al.* dès 1958 puis Voskoboinikov et Apin [46]. L'amélioration des technologies de l'optoélectronique au cours des 20 dernières années a conduit à l'élaboration de pyromètres plus rapides comme le pyromètre à 4 couleurs de Kato *et al.* [46, 47] et de Léal-Crouzet *et al.* [49].

Le principe des méthodes employées consiste à mesurer le flux radiatif émis par le front de détonation et à le traduire en température de luminance à l'aide de la loi de Planck, en supposant satisfaites les conditions d'équilibre thermodynamique local,

en dehors desquelles une température ne peut être définie. Le principal problème rencontré pour la détermination de la température vraie est la méconnaissance du facteur d'émission pour les longueurs d'onde de mesure du pyromètre. Par exemple, pour un pyromètre monochromatique, la relation entre la température vraie et la température de mesure est égale à :

$$\frac{1}{T_{vraie}} = \frac{1}{T_{mesure}} + \frac{\lambda}{C_2} \ln \varepsilon_\lambda \quad (4.1)$$

Plusieurs solutions ont été envisagées pour pallier ce problème [10].

Certaines consistent à se placer dans des conditions de corps noir fictif, lorsqu'il n'y a qu'une seule longueur d'onde de mesure [22]. Pour un pyromètre à deux couleurs, l'hypothèse d'un corps gris, c'est-à-dire que l'émissivité ne dépend pas de la longueur d'onde est courante [80, 86]. Si les longueurs d'onde de mesure sont éloignées, la détermination de la température est imprécise car il est peu probable que les facteurs d'émission soient voisins. Une autre solution consiste à supposer une variation linéaire de ε en fonction de la longueur d'onde [31] mais cette hypothèse n'est pas vérifiée pour toutes les surfaces. Le développement des pyromètres multichromatiques, dont le domaine spectral d'étude est large (jusqu'à $1,5 \mu m$), a conduit à élaborer d'autres modèles : variation polynomiale en fonction de la longueur d'onde de ε [49] ou encore de $\ln \varepsilon$ [20].

Toutes ces solutions conduisent à résoudre un problème à n mesures à différentes longueurs d'onde avec $n + 1$ inconnues (n, ε, T) et les auteurs font une hypothèse plus ou moins justifiée pour essayer de lever l'indétermination.

4.1.2 Autres techniques d'analyse

Plusieurs chercheurs des trois grands laboratoires américains de la physique des chocs, Los Alamos National Laboratory, Sandia National Laboratory et Washington State University [65, 59, 35] ont recensé les techniques d'analyse optique développées pour la compréhension des mécanismes atomiques et moléculaires ainsi que des cinétiques chimiques qui régissent le comportement d'un explosif soumis à un choc. Les mesures réalisées en fonction du temps apparaissent les plus utiles mais sont néanmoins difficiles à mettre en oeuvre. Les techniques de spectroscopie sont largement exploitées que ce soit en tant que spectroscopie électronique ou spectroscopie vibrationnelle.

La spectroscopie d'absorption dans le domaine visible a permis à Pangilinan *et al.* [61, 83, 84] de mettre en évidence le décalage du pic d'absorption du NM à $300 nm$ vers les grandes longueurs d'onde, décalage qui dépend de la température sous choc et du niveau de pression. Knudson *et al.* ont mis au point une méthode de spectroscopie d'absorption avec une résolution temporelle de $100 ps$, en soulignant qu'une augmentation de la résolution temporelle nécessite la diminution de la durée

d'enregistrement de l'expérience [48] (limitations des appareillages pour l'acquisition des mesures).

Des mesures de spectroscopie d'émission ont également été menées depuis 1960. Les temps de réponse ont été réduits de $140 \mu s$ [26] à moins de $50 ns$ [62, 34]. L'objectif de ces études étant parfois d'obtenir la température du milieu, la spectroscopie permet alors d'avoir plus d'informations en fonction de la longueur d'onde en comparaison avec la pyrométrie. Dans l'infrarouge, Piermarini *et al.* ont étudié les produits de décomposition du NM sous haute pression, en statique, par spectrométrie à transformée de Fourier [63].

La spectroscopie Raman est une méthode très utile pour déterminer les stades initiaux de la réaction chimique. Elle complète les mesures d'absorption et de fluorescence. Winey *et al.* ont ainsi proposé que la décomposition du NM se déroulait selon un processus bimoléculaire [82]. Delpuech *et al.* ont déterminé la température à l'arrière de l'onde de choc à l'aide du ratio des intensités de diffusion anti-Stokes et Stokes [25]. La spectroscopie Raman a aussi été utilisée pour des études en statique du NM sous enclume de diamant afin de déterminer le diagramme de phase de l'explosif en fonction de la pression et de la température [23].

4.2 Discussion

Les méthodes d'analyse optique, de spectroscopie ou de pyrométrie, en dynamique ou en statique, se complètent et fournissent des éléments indispensables à la compréhension de la TCD.

Ces dernières années, le CEG s'est orienté vers la pyrométrie optique à 6 longueurs d'onde à travers la thèse de Léal-Crouzet [50]. Les mesures de température vraie obtenues en détonation stationnaire autonome sont en bon accord avec les calculs théoriques et les autres données expérimentales (*cf* section 3.5). L'hypothèse choisie pour le facteur d'émission est une variation polynomiale en fonction de la longueur d'onde. L'évolution du facteur d'émission entre 0,99 et 0,86 du front de détonation montre que ce front n'émet pas comme un corps noir parfait mais conforte l'hypothèse d'un rayonnement de surface. En effet, l'état dense dans lequel se trouvent les produits de détonation conduit à penser que le milieu a une opacité élevée. De plus, l'élargissement des raies à haute pression pourrait induire une variation monotone du facteur d'émission en fonction de la longueur d'onde. Les températures de luminance mesurées ne sont pas égales, il faut donc s'interroger sur l'origine de cet écart :

- la mesure ne serait pas en toute rigueur surfacique mais intégrée sur une petite épaisseur, correspondant à l'épaisseur de la zone de réaction,
- le coefficient d'absorption monochromatique en fonction de la longueur d'onde subit de légères variations au cours de la propagation de l'onde de détonation,

- le front n'a pas une structure uniforme mais une structure cellulaire donnant un effet de rugosité au front.

De plus grandes incertitudes demeurent en ce qui concerne la température durant la TCD. Les hypothèses d'une émission de surface et d'une variation linéaire de l'émissivité en fonction de la longueur d'onde n'ont pas de fondements physiques. Il est fort possible que le flux lumineux mesuré provienne alors d'un volume. Dans les deux cas, émission de surface ou émission volumique, il est nécessaire de connaître les caractéristiques optiques pour pouvoir déterminer la température. Mais leur détermination est complexe. Le nitrométhane étant le siège de réactions chimiques qui conduisent à la formation de produits de réaction dont on ne connaît ni précisément la nature, ni la concentration et qui sont probablement hors équilibre, on ne peut savoir s'ils sont opaques ou non. Les émissions thermiques des couches successives du nitrométhane qui a réagi sont vraisemblablement très différentes, en raison du fort gradient de concentration des espèces gazeuses et condensées en présence. Il est vrai que l'on peut s'aider d'un code de calcul thermo-chimique qui détermine la composition chimique et l'état thermodynamique en aval d'une détonation (*cf* section 2.2.2). Cependant, on ne peut pas vérifier expérimentalement quels sont les produits de réaction.

De plus, comment repérer optiquement les espèces pour de si hautes pressions et températures sachant que les spectres d'absorption ou d'émission des molécules varient avec ces deux paramètres et qu'il n'y a pas de banques de données pour des valeurs aussi élevées? La plupart des méthodes utilisées en statique pour déterminer l'émissivité [68, 41], ne sont plus applicables en détonique car elles ne permettent pas d'accéder aux résolutions temporelles nécessaires. Les modélisations calculant les spectres d'émission des espèces gazeuses en fonction de la pression et de la température à partir de bases de données [66, 44] sont limitées dans les conditions thermodynamiques de la détonique. Des validations expérimentales peuvent permettre de les vérifier mais il faut d'abord commencer par des pressions faibles, de l'ordre d'une dizaine de bar [19].

Enfin, si le front de détonation est bien opaque comme le suggèrent de nombreux auteurs, comment observer ce qui se passe à l'arrière de ce front?

Voilà pourquoi l'interprétation des mesures de pyrométrie est limitée pour la phase de TCD où les phénomènes sont complexes et rapides. Il est donc nécessaire de mettre en évidence l'émission des produits de réaction et plus généralement de déterminer les caractéristiques optiques du milieu afin de vérifier ou remettre en cause les hypothèses précédentes. Pour avancer dans la compréhension, il est important d'accéder à la répartition spatiale et temporelle de la température et des espèces chimiques présentes au moyen d'une méthode adaptée aux milieux semi-transparents. Les méthodes de spectroscopie répondent à ce problème car elles ne sont pas limitées à un choix de longueurs d'onde de mesure et la résolution spectrale est meilleure.

Elles permettent d'avoir ainsi plus d'informations sur les caractéristiques optiques du milieu. La détermination de la température à partir des mesures de luminance nécessite ensuite de faire appel à des méthodes mathématiques de résolution inverse.

Le choix d'un diagnostic complémentaire à la pyrométrie a été discuté au travers des études de spectroscopie développées pour l'étude des matériaux condensés ainsi que les autres techniques existantes. L'objet de la thèse n'étant pas de décrire toutes ces techniques, le lecteur pourra se reporter aux références suivantes [43, 67, 40, 15]. Le choix s'est porté tout d'abord sur une technique dite passive, par opposition aux techniques actives qui font intervenir une source lumineuse en plus du système à étudier (cas de la spectroscopie d'absorption ou de transmission). Parmi les méthodes passives, la spectroscopie d'émission s'est avérée la technique la plus simple à mettre en oeuvre compte tenu du dispositif expérimental de détonation et prometteuse, au vu notamment de l'étude de spectroscopie d'émission du NM de Grudzkov *et al.* [34]. Elle repose sur le même principe que la pyrométrie mais la résolution spectrale est plus fine.

5 Dispositif expérimental de détonation

5.1 Description

L'objectif des essais est d'étudier les phénomènes régissant l'amorçage et la détonation du nitrométhane. Le principe consiste à induire une onde de choc plane soutenue dans le nitrométhane par impact plan d'un projectile sur une cellule contenant l'explosif (Fig. 5.1). Le dimensionnement du système est tel que les phénomènes observés se déroulent selon un écoulement plan soutenu, non perturbé par les effets de bord.

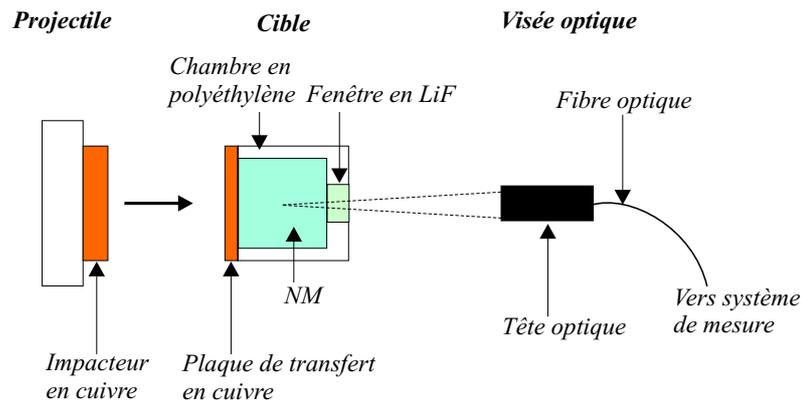


FIG. 5.1 - Schéma de principe des essais de détonation

Les trois principaux éléments constitutifs du système sont un projectile, une cible contenant l'explosif et un dispositif de collecte du flux lumineux.

Le lanceur à poudre ARES du CEG d'une longueur de 10 m propulse le projectile sur la cible de nitrométhane à une vitesse de l'ordre de 1940 m/s pour amorcer la détonation. Afin d'assurer un impact plan, le montage cible est aligné suivant l'axe du lanceur. L'angle entre la face avant de l'impacteur et la cible, appelé tilt à l'impact, est inférieur à 2,5 mrad. Le NM est confiné dans une chambre de polyéthylène fermée

par une plaque de transfert en cuivre. L'épaisseur de l'explosif peut varier entre 15 et 25 *mm*. A l'autre extrémité de la cellule est collée une fenêtre en fluorure de lithium (LiF) permettant de viser à l'intérieur pendant la TCD. Le LiF est un matériau transparent sur un grand domaine de longueur d'onde (du visible à l'infrarouge vers 6 μm , voir figure 5.2) qui résiste à des sollicitations élevées en pression (plus de 10 *GPa*).

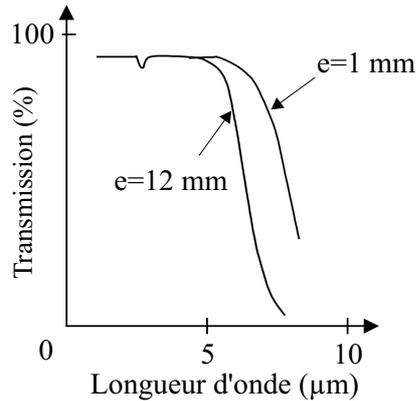


FIG. 5.2 - Propriétés optiques du LiF (fournisseur OPA)

Des moyens de mesure permettant de vérifier le bon déroulement de la détonation sont utilisés : une électrode de polarisation pour repérer l'apparition de l'entrée du choc, la formation de la superdétonation et de la détonation, des aiguilles de chronométrie, afin d'obtenir le diagramme de marche des ondes de choc et de détonation, un fluxmètre large bande [0,9 - 1,7 μm] qui sert de témoin de la détonation (Fig. 5.3 et photographie Fig. 5.4).

Le système de collecte de flux (tête optique et fibre optique) est monté sur la cible, dans l'axe du lanceur. Il sera décrit ultérieurement.

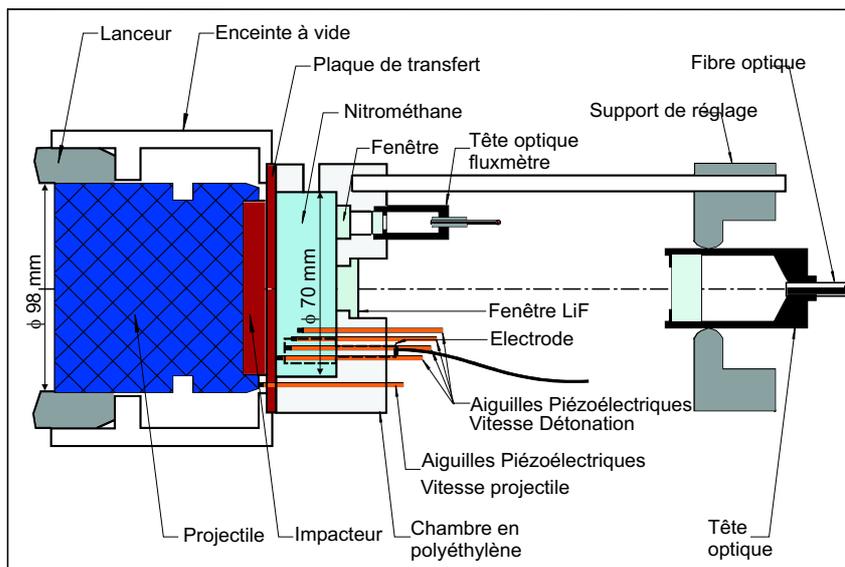


FIG. 5.3 - Dispositif expérimental d'impact plan sur une cible de NM



FIG. 5.4 - Montage de la cible à l'extrémité du lanceur

6 Dispositif de spectroscopie d'émission

6.1 Caractéristiques optiques du nitrométhane

La semi-transparence du NM non choqué permet l'étude de la transition choc-détonation. Le spectre de transmission du NM (Fig. 6.1) a été déterminé au LEEE au moyen d'un spectromètre à transformée de Fourier de type Nicolet Magma 550 sur un échantillon de NM de 25 mm d'épaisseur, à pression et température ambiantes.

Le nitrométhane, dans ces conditions, est transparent entre 0,4 et 1 μm . Entre 1,1 et 2,1 μm , il présente des pics d'absorption puis, pour des longueurs d'ondes plus élevées, cet explosif absorbe la lumière. Ces caractéristiques particulières conditionnent le choix du domaine spectral de l'étude. En effet, le dispositif de détonation et la conception de la cible imposent une visée à travers l'explosif liquide. Par conséquent, dans les domaines spectraux où le NM est opaque, le flux émis par le milieu ne peut être mesuré.

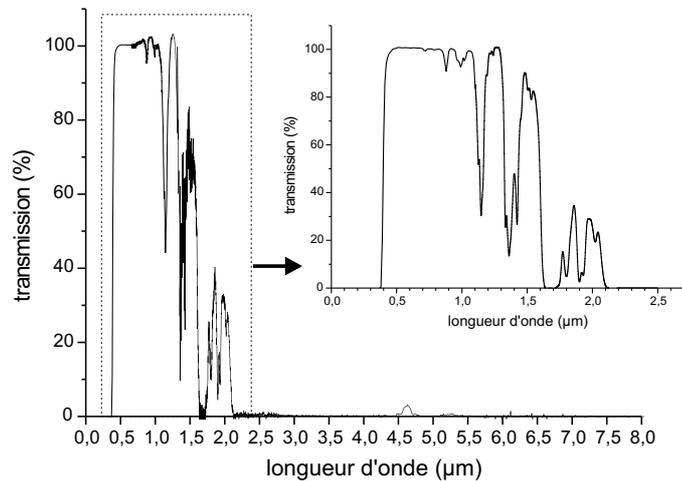


FIG. 6.1 - Spectre de transmission du NM pour une épaisseur de 25 mm

6.2 Cahier des charges : contraintes et domaine spectral

Le phénomène de détonation est un phénomène très rapide. Pour une épaisseur de 25 mm de NM, il s'écoule seulement 5 μs environ entre l'entrée du choc et l'interaction de l'onde de détonation avec la fenêtre en LiF. La phase de TCD dure entre 0,5 et 1,5 μs . Il est donc indispensable de pouvoir disposer d'un matériel de détection et d'enregistrement rapide pour pouvoir observer avec précision la TCD du nitrométhane. Après lecture des différents travaux expérimentaux sur le NM (*cf* section 4.1) et compte tenu des performances actuelles des détecteurs dans le domaine visible et l'infrarouge, nous avons fixé une résolution temporelle de 10 ns, ce qui correspond à une résolution spatiale de 60 μm (pour une vitesse de l'onde de détonation de 6000 m/s).

A cette contrainte de célérité du phénomène, s'ajoute le fait que les expériences de détonation sont destructrices. En effet, la cible de nitrométhane ainsi que le matériel de mesure proche de la cible sont détruits. Tous les appareils de mesure sont donc éloignés de la cible et le transport de l'énergie lumineuse ne peut se faire que grâce à des fibres optiques.

Le choix du domaine spectral et de la résolution spectrale s'est basé sur des travaux effectués précédemment sur le NM. De nombreuses expériences se placent dans l'intervalle de longueur d'onde 0,25-0,5 μm où le nitrométhane est opaque jusqu'à 0,4 μm puis transparent. C'est le cas des travaux réalisés par Gupta, Winey et Constantinou [83, 21] sur la spectroscopie d'absorption dans l'U.V. et le visible. Il s'agit d'étudier le déplacement de la bande d'absorption du NM soumis à des pics de pression vers les grandes longueurs d'onde. Une autre étude de Gruzkov et Gupta [34] porte sur la spectroscopie d'émission dans le domaine spectral 0,35-0,7 μm . Parmi les techniques de pyrométrie optique, les mesures du CEG s'effectuent à 6 longueurs d'onde choisies entre 0,5 et 1,5 μm [49].

Les études du NM en statique sous haute pression dans une cellule à enclume de diamant se placent dans l'infrarouge entre 3 et 14 μm (3333 et 715 cm^{-1}) [63, 57]. Ce choix est judicieux pour observer l'émission des produits de réaction du nitrométhane car c'est dans ce domaine spectral que l'on peut observer les raies caractéristiques des groupements fonctionnels. L'épaisseur de l'explosif est très fine, inférieure à 10 μm . Dans ce cas, les caractéristiques optiques sont très différentes de celles d'une épaisseur de plusieurs millimètres d'explosif. Le NM n'est plus opaque dans l'infrarouge et on peut viser à travers l'échantillon. En effet, la transmission du NM augmente lorsque l'épaisseur du matériau diminue selon la loi de Beer (équation 1.13). Un exemple de l'effet de l'épaisseur l sur le facteur de transmission du NM est donné sur la figure 6.2. Pour une épaisseur importante (15 à 25 mm pour notre étude afin de pouvoir enregistrer la TCD), le NM est opaque et il n'est plus possible

de viser à travers. Cela nécessiterait une modification du dispositif de mesure.

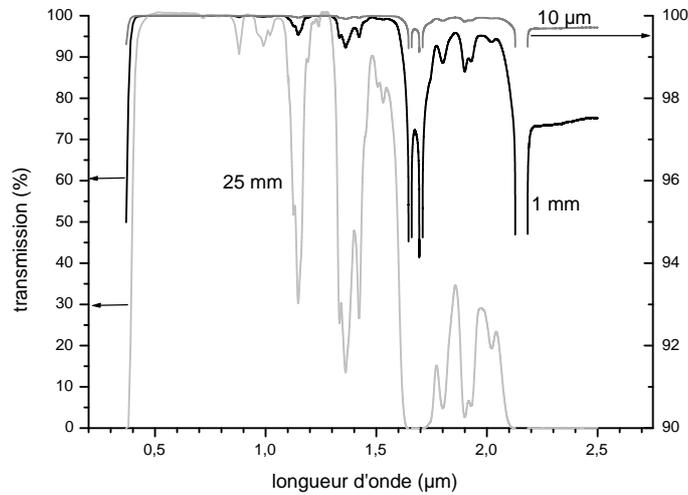


FIG. 6.2 - Spectre de transmission du NM pour différentes épaisseurs

Les résultats obtenus dans ces travaux montrent que les mesures effectuées dans l'ultraviolet, le visible et l'infrarouge apportent des précisions sur le comportement du nitrométhane soumis à un choc. Compte tenu de notre dispositif de détonation, une analyse spectrale pour les longueurs d'onde supérieures à $2,1 \mu m$ sera impossible. En effet, l'épaisseur de NM entre le front de choc et la fenêtre d'observation est opaque à cette longueur d'onde (Fig. 6.2). Les faibles zones de transmission vers $2,5$ et $5 \mu m$ ne seront pas étudiées ici. La solution la plus adaptée pour des mesures dans l'infrarouge est de modifier l'application du choc pour pouvoir viser à l'arrière du front de choc et non à l'avant.

Nous nous limiterons donc à l'étude du domaine $0,3-2,1 \mu m$. Il est important d'étudier le domaine visible-proche infrarouge qui a déjà fait l'objet de nombreux essais de pyrométrie 6 longueurs d'onde. L'intérêt sera de préciser les résultats déjà obtenus par une meilleure résolution spectrale.

Le but de la spectroscopie d'émission n'est pas, dans cette thèse, d'obtenir des mesures spectrales avec une très grande résolution mais d'explorer un domaine spectral relativement étendu pour pouvoir par la suite définir l'intervalle de longueurs d'onde qui apporte le plus d'informations sur les phénomènes intervenant durant la TCD. Une résolution spectrale de 20 à $30 nm$ est apparue être un bon compromis entre le besoin de préciser les mesures de pyrométrie et celui d'analyser un domaine spectral étendu.

L'étude du domaine se fera en 2 parties. Tout d'abord, l'étude du domaine UV-visible entre 0,3 et 0,85 μm puis l'étude du domaine infrarouge, plus complexe à cause des zones d'absorption du NM.

En résumé, la technique de spectroscopie d'émission doit vérifier les critères suivants :

- mesure continue de l'émission du NM durant la TCD pendant une durée de l'ordre de quelques microsecondes,
- résolution temporelle inférieure à 10 ns ,
- résolution spectrale de 30 nm environ, résolution suffisante dans un premier temps pour préciser les mesures de pyrométrie,
- mesure à distance en raison du caractère destructeur des essais de détonation.

6.3 Discussion sur le choix du matériel de spectroscopie d'émission

Contrairement au pyromètre optique multi-longueurs d'onde du CEG qui a fait l'objet d'un développement spécifique, il a été décidé de constituer la chaîne spectrométrique à partir d'éléments déjà existants. Le dispositif de spectroscopie est constitué principalement d'un élément dispersif et d'un élément de détection. Le choix du système de dispersion s'est porté sur un monochromateur à réseau, réseau qui reste fixe pendant la durée de la mesure. Le choix du principe de détection s'est fait entre deux configurations possibles : l'utilisation d'une barrette de détecteurs ou l'utilisation d'une caméra à balayage de fente associée à une matrice CCD.

6.3.1 Barrette de détecteurs

A l'heure actuelle, des détecteurs avec un temps de réponse de quelques nanosecondes existent. Dans le domaine UV-visible, ces temps de réponse peuvent atteindre quelques centaines de picosecondes. Dans l'infrarouge, les détecteurs sont moins rapides et un temps de réponse court peut être obtenu au détriment de la sensibilité et du bruit. En sortie de monochromateur, une solution efficace consiste à placer une barrette de détecteurs reliée à des oscilloscopes servant à acquérir le signal. Il faut autant de voies d'enregistrement que de détecteurs. On obtient ainsi les profils de l'intensité émise pour chaque voie de mesure, correspondant à une longueur d'onde, en fonction du temps. La résolution spectrale, pour un réseau donné, dépend du nombre de détecteurs de la barrette. Ce sont le coût et la dimension de la barrette qui limitent le nombre d'éléments.

6.3.2 Caméra à balayage de fente et matrice CCD

Cette méthode, plus coûteuse, est couramment utilisée par Gupta *et al.* de l'université de Washington pour les études de spectroscopie. Une caméra à balayage, placée en sortie d'un monochromateur, «balaye» le faisceau dispersé sur un écran cathodique. Une matrice CCD enregistre le signal émis par l'écran cathodique. Cette méthode est applicable pour des mesures dans l'ultraviolet et le visible. Un traitement d'image est nécessaire avant l'obtention des spectres de l'intensité émise en fonction de la longueur d'onde pour différents instants. La résolution obtenue est de 50 *ns*. Une technique de spectroscopie atteignant une résolution de 100 *ps* a également été développée [48]. Mais plus la vitesse d'acquisition est rapide, plus la durée du phénomène observable est courte. Ce système permet d'obtenir des mesures avec une résolution temporelle suffisamment fine. Il présente en outre l'avantage d'une bonne résolution spectrale grâce au nombre de détecteurs de la matrice CCD (30 fois meilleure qu'une barrette de 16 détecteurs).

6.3.3 Conclusion

Compte tenu de l'objectif principal qui est d'étudier un domaine spectral étendu, du visible à l'infrarouge proche, le principe de la barrette de détecteurs semble le mieux adapté. En revanche, la technique avec la caméra à balayage de fente associée à une matrice CCD sera intéressante lorsqu'il s'agira d'étudier un intervalle de longueur d'onde précis, avec une meilleure résolution spectrale. Le coût d'un tel appareillage est encore élevé pour des résolutions temporelles de l'ordre de quelques centaines de picosecondes dans le visible, et, dans l'infrarouge, on atteint difficilement ces temps de réponse.

6.4 Spectroscopie d'émission dans le domaine visible 0,3 - 0,85 μm

La chaîne de mesure de spectroscopie d'émission (Fig. 6.3) consiste en :

- un système de collecte,
- un monochromateur à réseau,
- une barrette de détecteurs (barrette de photomultiplicateurs),
- un dispositif d'acquisition.

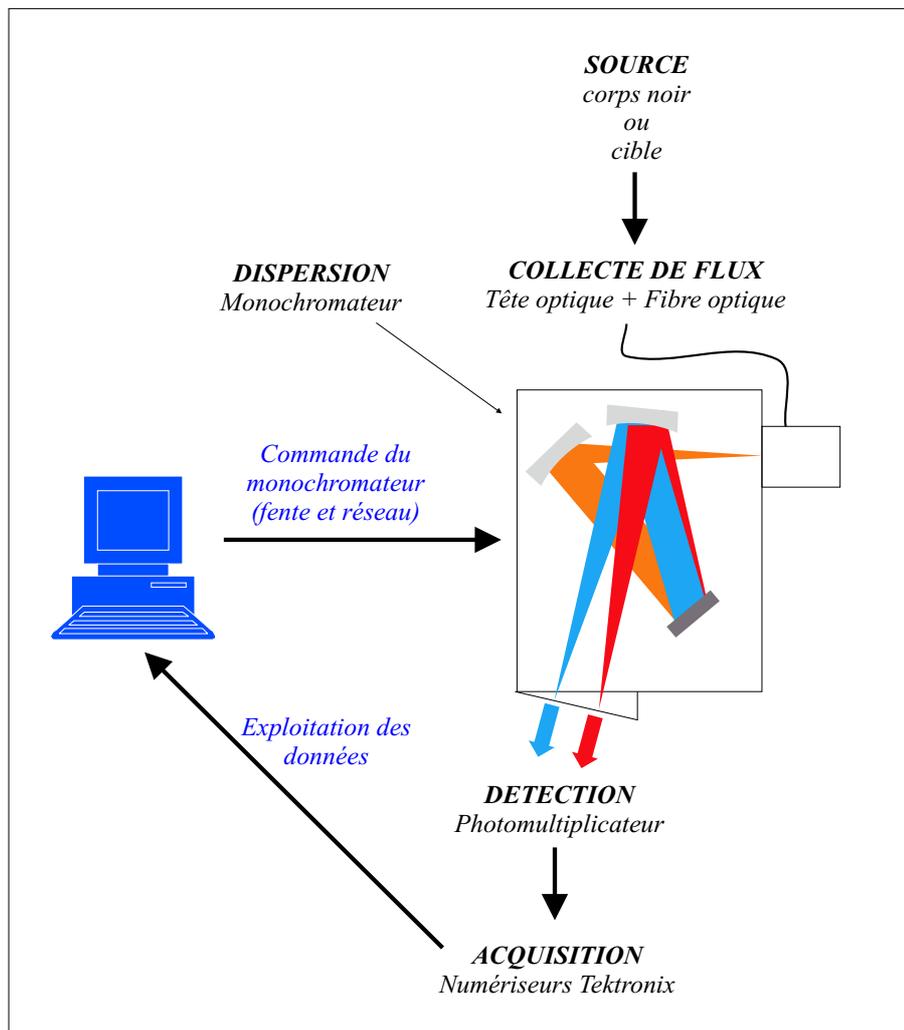


FIG. 6.3 - Chaîne de mesure de spectroscopie d'émission

6.4.1 Système de collecte du flux

Le flux émis à travers la fenêtre en LiF est collecté par une tête optique puis est transmis au système de mesure par une fibre optique. La tête optique a été développée spécialement pour les mesures de pyrométrie. Deux types de têtes existent :

- une tête à doublets achromatiques, dont le domaine spectral est compris entre $0,3$ et $1,6 \mu m$. Le point de visée est une surface de 2 mm de diamètre et la focale est de 192 mm . Un schéma de la tête est représenté sur la figure 6.4.

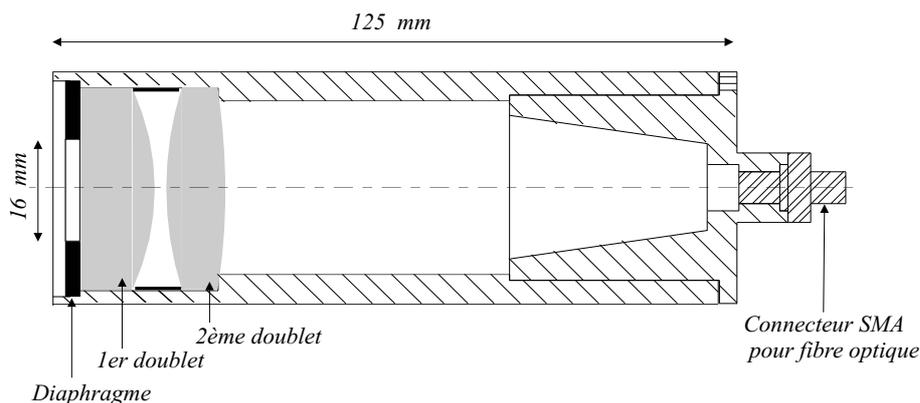


FIG. 6.4 - Schéma de la tête à doublets achromatiques

- une tête à miroirs a été conçue postérieurement pour avoir un meilleur rendement et pour augmenter la largeur du domaine spectral jusqu'à $4,5 \mu m$. Son principe repose sur le système Cassegrain des télescopes (Fig. 6.5). La surface visée avec cette tête a un diamètre de 5 mm et la focale est de 200 mm . L'avantage de ce système est son plus large domaine spectral $0,3-4,5 \mu m$ et la sortie sur une seule ou deux fibres optiques (Fig. 6.6) afin d'étudier par exemple le domaine visible et le domaine infrarouge en même temps. La séparation des deux faisceaux s'effectue alors à l'aide d'une lame séparatrice.

La position de la tête optique par rapport à l'interface NM / fenêtre en LiF est optimisée de manière à minimiser les variations de flux collecté lorsque une surface émettrice se déplace de la plaque de transfert jusqu'à la fenêtre d'observation. Afin de réaliser facilement la calibration du système, cette tête possède un point focal. La collecte d'un flux parallèle aurait posé des problèmes pour la calibration sur un corps noir.

La fibre optique utilisée est une fibre silice/silicone de 1 mm de coeur Optran PWF de Ceramoptec d'une longueur de 10 m .

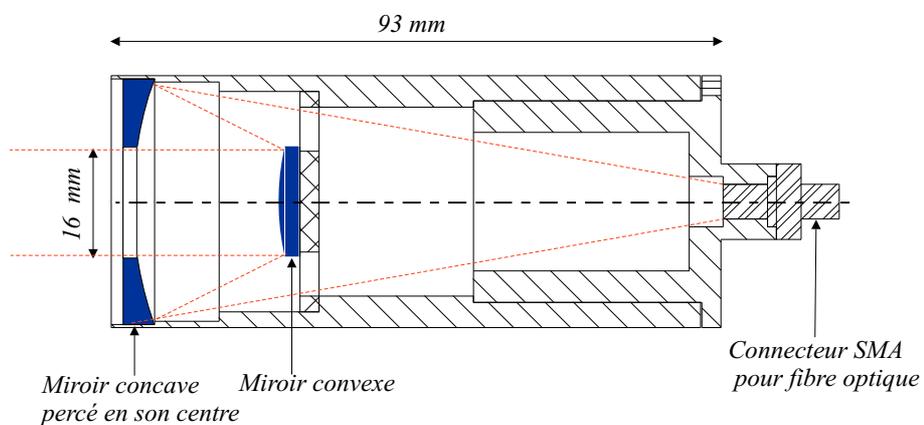


FIG. 6.5 - Schéma de la tête à miroirs à une sortie de fibre



FIG. 6.6 - Photo de la tête à miroirs et des embouts à 1 ou 2 fibres

6.4.2 Monochromateur

Il était nécessaire que le monochromateur soit peu encombrant en raison du déplacement du banc de mesure entre la calibration et la mesure en détonation. Le choix d'une courte focale et d'un petit boîtier s'est imposé. De plus, le monochromateur choisi a l'avantage de posséder une tourelle pouvant supporter 3 réseaux.

Le monochromateur choisi est un Triax 180 de Jobin-Yvon. C'est un monochromateur de focale 190 mm avec une configuration Czerny-Turner ¹ muni d'un réseau plan de 150 tr/mm, de dimensions 50 x 50 mm. Le premier miroir concave a un rôle de collimateur de la source lumineuse et le second fait converger à la sortie dans un plan focal la lumière dispersée par le réseau. Le réseau est blasé à 0,5 μm et son domaine d'efficacité se situe entre 0,3 et 0,9 μm (Fig. 6.7). La dispersion du réseau est d'environ 32,8 nm/mm à la longueur d'onde centrale 0,565 μm . Les mesures se font à l'ordre 1. La fente d'entrée a une ouverture réglable jusqu'à 2 mm. La position du réseau et l'ouverture de la fente sont commandées par un PC.

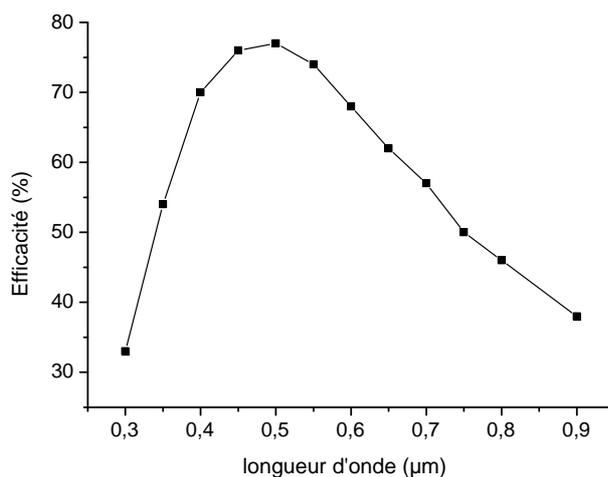


FIG. 6.7 - Courbe d'efficacité du réseau blasé à 0,5 μm

Le rayonnement émis durant la détonation, collecté par la tête optique et transmis par la fibre, est focalisé par un adaptateur fibre optique/monochromateur constitué de 2 miroirs, sur la fente d'entrée du monochromateur avec un grandissement égal à 1.

¹La disposition des miroirs et du réseau correspondant à la configuration Czerny-Turner est représentée sur la figure 6.3.

6.4.3 Détecteur

A la sortie du monochromateur, une barrette de détecteurs rapides pour l'étude spectrale du domaine visible, était nécessaire. Dans le domaine visible, les photomultiplicateurs répondent à ce critère. Un photomultiplicateur multianodes Hamamatsu R5900U-01-L16 permet l'étude du domaine spectral 0,3-0,85 μm (Fig. 6.8 et 6.9), domaine où le NM est transparent, avec un temps de réponse de 0,6 ns. Ce détecteur est constitué de 16 photocathodes de 0,8 mm de largeur et de 16 mm de hauteur, espacées de 0,2 mm. L'alignement de la barrette par rapport au plan focal de sortie du monochromateur s'effectue à l'aide de platines de translation. La résolution spectrale ainsi obtenue est d'environ 32 nm à 0,565 μm , longueur d'onde centrale, chaque voie de mesure détectant un intervalle spectral de 26 nm de large.

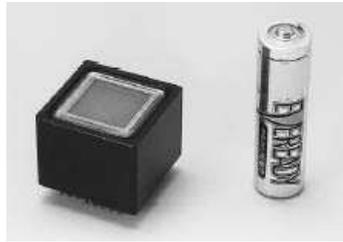


FIG. 6.8 - Photo du photomultiplicateur multianodes

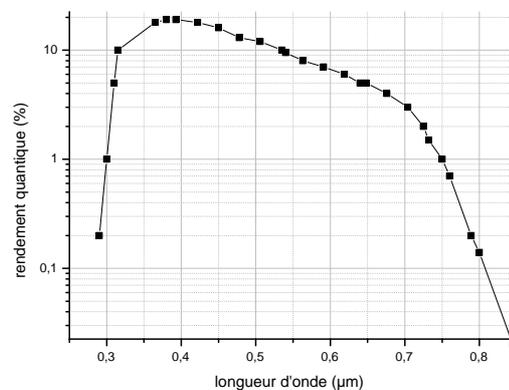


FIG. 6.9 - Courbe de réponse du photomultiplicateur multianodes

La figure 6.10 représente le monochromateur, le photomultiplicateur (PM) ainsi que l'adaptateur fibre optique/monochromateur.

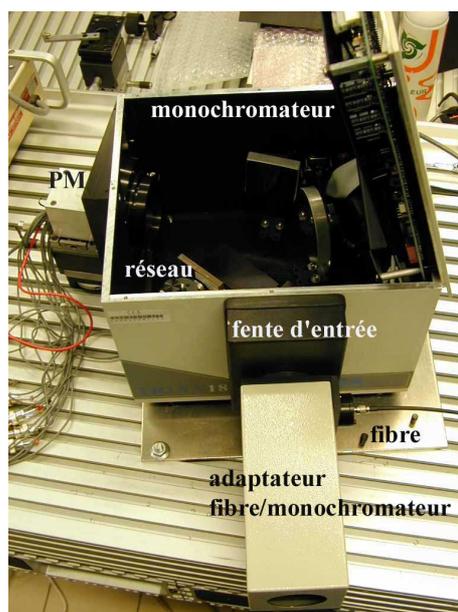


FIG. 6.10 - *Dispositif de spectroscopie d'émission*

6.4.4 Acquisition

Des numériseurs Tektronix TDS 684 possédant 4 voies sont utilisés pour l'acquisition des signaux. Ce sont des enregistreurs 8 bits de fréquence d'échantillonnage maximale $2,5 \text{ GHz}$. Lors des essais de spectroscopie visible, la durée d'enregistrement est de $15 \mu\text{s}$, avec une fréquence d'échantillonnage de 1 GHz .

6.4.5 Calibration

Avant chaque essai, une calibration du dispositif doit être effectuée. La source de rayonnement utilisée est un corps noir Mikron M390 à cavité de carbone dont la gamme de température s'étend de 900 à 3300 K . Un pyromètre étalon Mikron relève la température du corps noir. Avant toute mesure, le photomultiplicateur multianodes est aligné à l'aide d'un laser He-Ne. Un protocole de mise en oeuvre du dispositif a été rédigé au CEG [11]. Le banc d'étalonnage est présenté sur la figure 6.11. Une fois la calibration effectuée, le banc de spectroscopie est déplacé vers le dispositif de tir.

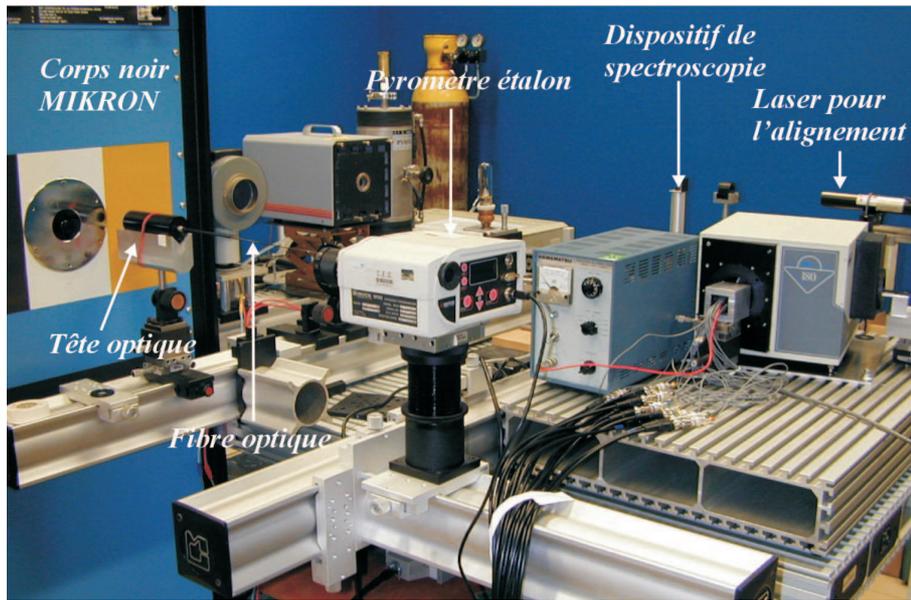


FIG. 6.11 - Banc d'étalonnage du dispositif de spectroscopie d'émission

6.4.6 Calcul d'erreur

6.4.6.1 Sources d'erreurs

On distingue plusieurs sources d'erreurs :

Température La température du corps noir est vérifiée par le pyromètre étalon. La somme des incertitudes liées à l'homogénéité de la source, à la variation de la température de la source et à la précision du pyromètre est évaluée à $\Delta T = \pm 5$ [1].

Longueur d'onde L'alignement de la barrette avec le faisceau laser entraîne une erreur sur la longueur d'onde. Cette erreur est associée à l'intervalle entre les détecteurs. Dans le cas de la spectroscopie visible, elle est égale à $\Delta \lambda = \pm 3,5 \text{ nm}$.

Tension Lors de mesures de répétabilité, nous avons obtenu une erreur relative qui inclut l'erreur due aux numériseurs (bruit et précision) (Fig. 6.12). Les voies exploitables présentent une erreur inférieure à 12%. Elle diminue quand la température augmente, restant inférieure à 10% pour les températures supérieures à 1800 K. Les voies pour lesquelles l'erreur est supérieure à 20% donnent un signal noyé dans le bruit.

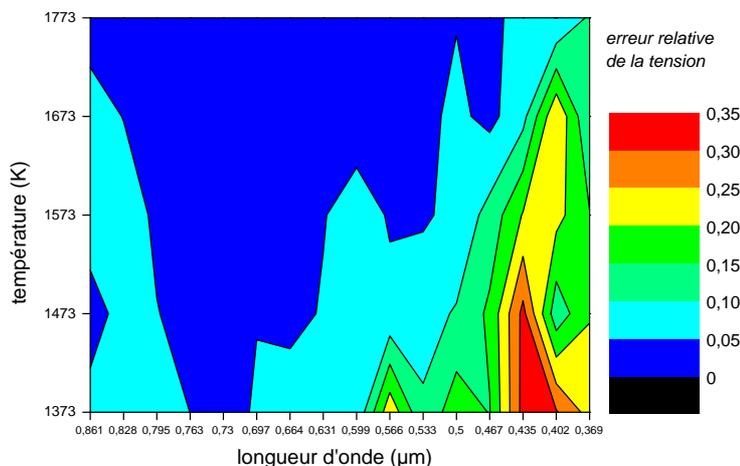


FIG. 6.12 - Cartographie de l'erreur relative de la tension mesurée en fonction de la température et de la longueur d'onde lors de la calibration

6.4.6.2 Erreur sur la luminance mesurée et sur la température de luminance calculée

Les résultats de calibration se présentent sous la forme de graphes des luminances en fonction de la tension. Nous avons observé une bonne linéarité des résultats. Après linéarisation des points de mesure, la relation tension-luminance lors de la calibration est :

$$V_i = A_i \cdot L_{calib}^0(\lambda_i, T) \quad (6.1)$$

L'indice i représente le numéro de la voie du détecteur.

L'erreur sur les coefficients de calibration A_i est égale à [75] :

$$\frac{\Delta A_i}{A_i} = \sqrt{\left(\frac{\Delta V_i}{V_i}\right)^2 + \left(5 - \frac{C_2}{\lambda_i T_i}\right)^2 \left(\frac{\Delta \lambda_i}{\lambda_i}\right)^2 + \left(\frac{C_2}{\lambda_i T_i}\right)^2 \left(\frac{\Delta T_i}{T_i}\right)^2} \quad (6.2)$$

La luminance mesurée est égale à :

$$L_{mes}^0(\lambda_i, T) = \frac{V_{i,mes}}{A_i} \quad (6.3)$$

L'erreur relative de la luminance mesurée (Fig. 6.13) s'écrit :

$$\frac{\Delta L_{mes}^0}{L_{mes}^0} = \sqrt{\left(\frac{\Delta V_{i,mes}}{V_{i,mes}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_i}{A_i}\right)^2} \quad (6.4)$$

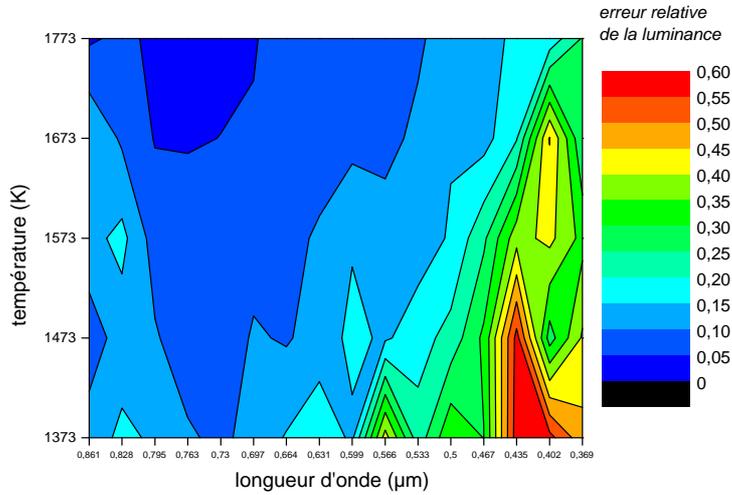


FIG. 6.13 - Cartographie de l'erreur relative de la luminance mesurée en fonction de la température et de la longueur d'onde

L'erreur obtenue aux basses températures et aux courtes longueurs d'onde est importante. Mais elle diminue lorsque la température de luminance augmente et devient inférieure à 10% à 1800 K pour les voies exploitables.

Par contre, l'erreur sur la température de luminance, paramètre que l'on souhaite obtenir, est négligeable. Elle est donnée par :

$$\frac{\Delta T_{i,lumi}}{T_{i,lumi}} = \sqrt{\left(\frac{\lambda_i T_i}{C_2} \frac{\Delta V_i}{V_i}\right)^2 + \left(\left(\frac{5\lambda_i T_i}{C_2} - 1\right) \frac{\Delta \lambda_i}{\lambda_i}\right)^2 + \left(\frac{\lambda_i T_i}{C_2} \frac{\Delta A_i}{A_i}\right)^2} \quad (6.5)$$

La figure 6.14 montre que l'erreur relative de la température de luminance est bien inférieure à 0,6% pour toutes les voies. Une faible variation de température entraîne une grande variation de luminance, c'est la loi de Planck. Ceci aura une conséquence pour la détermination des profils de température par méthode inverse du fait de la faible sensibilité des mesures au paramètre de température.

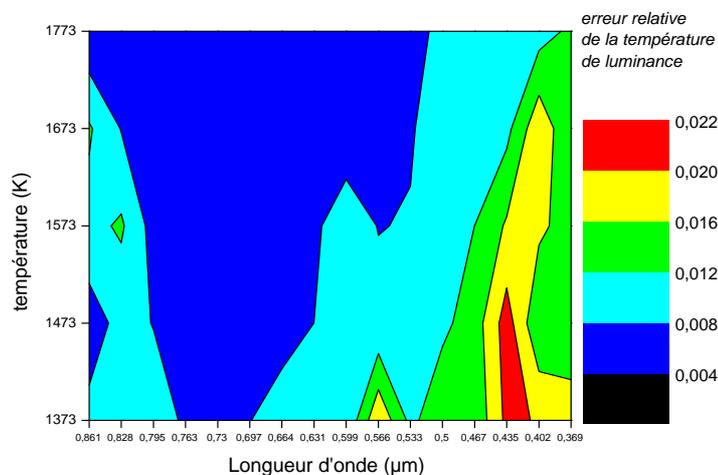


FIG. 6.14 - Cartographie de l'erreur relative de la température de luminance en fonction de la température et de la longueur d'onde lors de la calibration

6.5 Spectroscopie d'émission dans le domaine infrarouge

La mise en place du dispositif de spectroscopie d'émission pour l'étude du domaine infrarouge 0,85-2,1 μm s'est avérée plus délicate que dans le domaine visible, à cause de la plus faible quantité de flux émise. En effet, le NM devient absorbant et les détecteurs utilisés sont moins sensibles que le photomultiplicateur multianodes. Nous présenterons ici les deux configurations de mesure testées, dont la différence réside dans le principe de détection.

6.5.1 Spectroscopie d'émission avec une barrette de détecteurs HgCdZnTe

Le système de collecte est identique au précédent (section 6.4.1). Une autre fibre optique pourra être utilisée pour les longueurs d'onde supérieures à 1,6 μm , une fibre en verre fluoré dont le domaine spectral est compris entre 0,4 et 4,5 μm . Le monochromateur est le même, seul le réseau change. C'est un réseau plan de 150 tr/mm , de dimensions 50 x 50 mm , blasé à 1,4 μm et son domaine d'efficacité se situe entre 0,8 et 2,4 μm (Fig. 6.15).

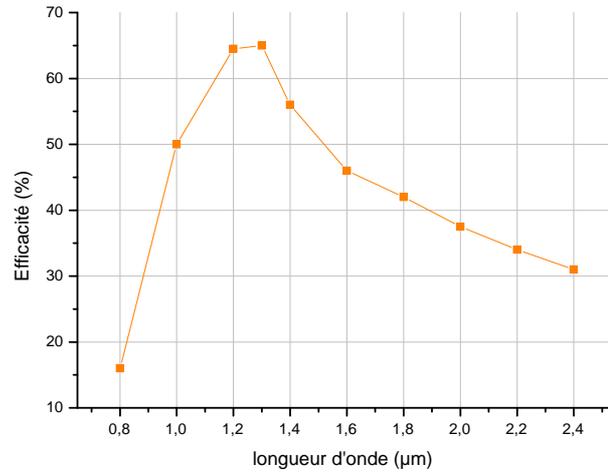


FIG. 6.15 - Courbe d'efficacité du réseau blasé à 1,4 μm

Le détecteur utilisé est une barrette de 32 détecteurs HgCdZnTe, non refroidis, développée par la société Optilas à partir de monoéléments de marque Vigo. Le temps de réponse est de 10 ns et son domaine spectral possède l'avantage d'être large, de 0,7 à 8 μm (Fig. 6.16). L'étendue de la barrette est aussi un inconvénient car elle peut alors détecter les ordres de diffraction du réseau différents de l'ordre 1 qui se recourent. De plus, la nécessité d'avoir un temps de réponse rapide nuit à la sensibilité qui est inférieure à $10^7 \text{ cmHz}^{-1} \text{ W}^{-1}$.

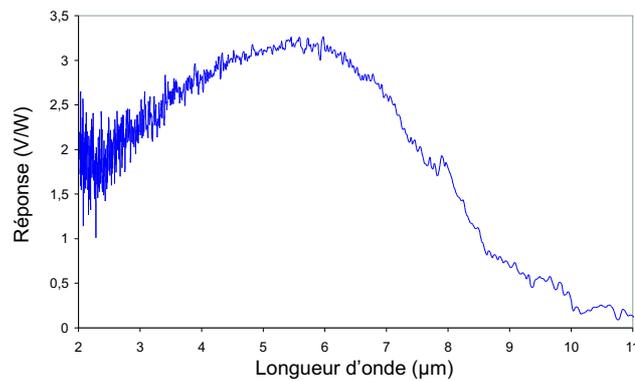


FIG. 6.16 - Courbe de réponse de la barrette de détecteurs HgCdZnTe entre 2 et 11 μm

Un essai a été réalisé dans cette configuration et a confirmé la faible sensibilité

du système : le signal émis par la détonation n'a pas pu être mesuré. Une autre configuration a donc été testée.

6.5.2 Spectroscopie d'émission avec des détecteurs InGaAs

La détectivité des monoéléments InGaAs utilisés est de $5.10^{11} \text{ cmHz}^{-1}\text{W}^{-1}$ à $1 \mu\text{m}$ contre 5.10^6 pour les détecteurs HgCdZnTe non refroidis. Leur temps de réponse est inférieur à 20 ns et leur domaine spectral est $0,8\text{-}1,8 \mu\text{m}$ (Fig. 6.17).

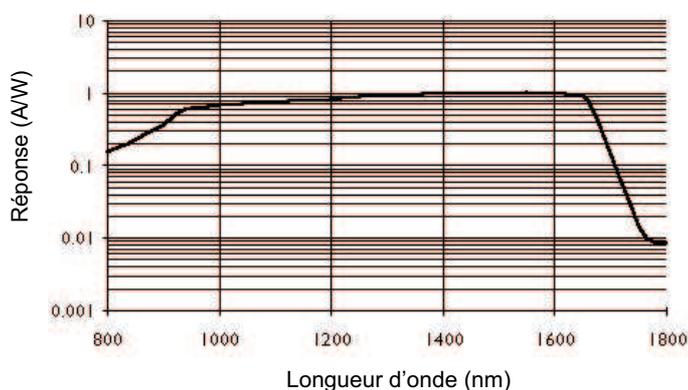


FIG. 6.17 - Courbe de réponse du détecteur InGaAs

Avant de faire l'acquisition d'une barrette de détecteurs InGaAs, nous avons testé ce type de détecteurs en utilisant des photodiodes que possédait le CEG. Le flux est collecté par une règlette de 12 fibres optiques dans le plan focal de sortie du monochromateur, chaque fibre étant reliée à un détecteur. Le diamètre des fibres est égal à $200 \mu\text{m}$ et les fibres sont espacées de $500 \mu\text{m}$. Une photo du dispositif est représentée sur la figure 6.18.

Une tête optique, plus simple que les têtes à doublets et à miroirs, constituée uniquement d'une lentille en LiF de focale 11 mm et de diamètre 10 mm a été utilisée. La principale difficulté repose alors dans la calibration car il n'est pas possible avec ce type de tête optique d'obtenir en calibration la même configuration de mesure que lors d'un essai de détonation.

Les essais réalisés entre 1 et $1,4 \mu\text{m}$ ont donné des signaux de tension faibles (Fig. 6.19) qui ne peuvent être exploités car la calibration n'est pas satisfaisante d'une part à cause de la faiblesse des signaux, d'autre part à cause des écarts entre la configuration de mesure sur le corps noir et lors de l'essai réel. Néanmoins, les différentes phases de la TCD sont bien visibles.

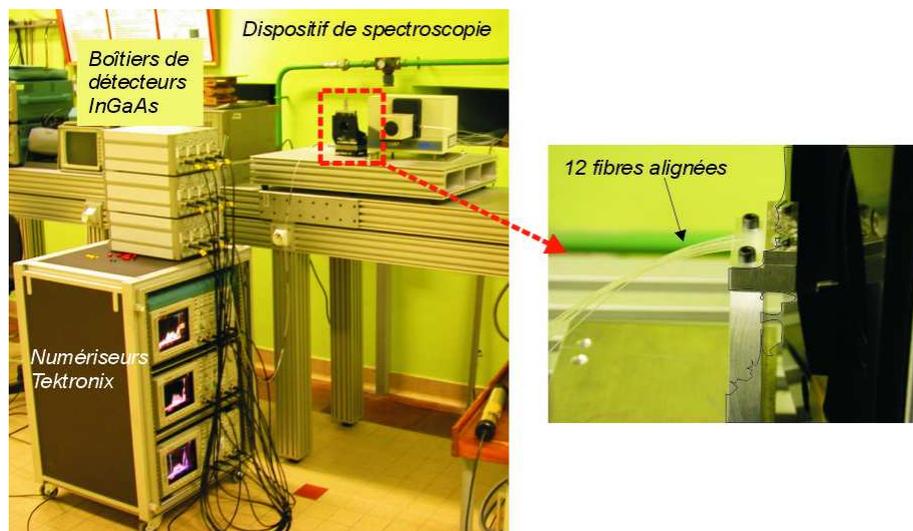


FIG. 6.18 - Dispositif de spectroscopie d'émission avec les détecteurs InGaAs

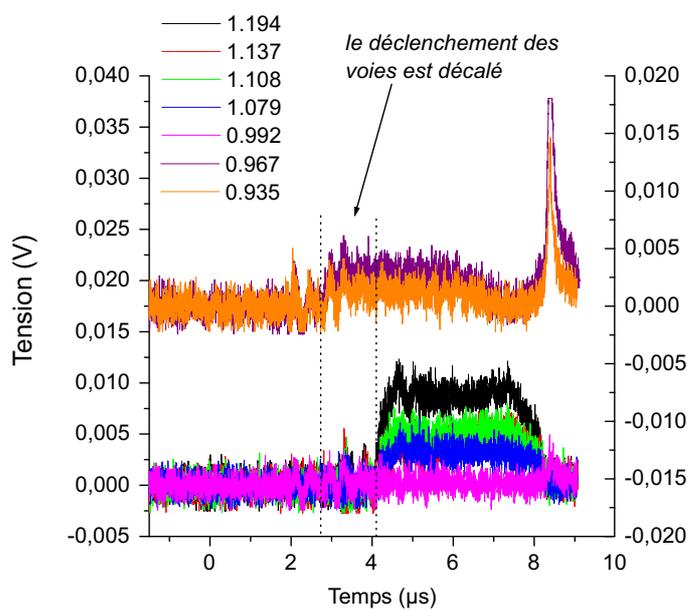


FIG. 6.19 - Signaux obtenus par spectroscopie d'émission avec les détecteurs InGaAs lors d'un essai d'impact plan à 8,6 GPa

6.5.3 Conclusion et perspectives de la spectroscopie d'émission dans l'infrarouge proche

Les essais réalisés avec les deux configurations présentées soulignent la difficulté de la mise en oeuvre des mesures de spectroscopie d'émission dans l'infrarouge proche.

Il est possible de déterminer théoriquement, dans une configuration donnée, quelle est la méthode optimale pour l'obtention d'un flux et d'une tension suffisants en sortie de système. Mais de nombreux tests ont montré que l'expérience peut donner un résultat différent. Notamment, les têtes à miroirs associées à une fibre optique donnent une image correspondant à un anneau et non un disque ce qui provoque des pertes de flux importantes dans le monochromateur.

Il semble cependant que l'utilisation d'une barrette de détecteurs InGaAs est la meilleure solution pour l'étude du domaine spectral 0,8-1,8 μm .

Troisième partie

Mesures de spectroscopie d'émission
dans le domaine visible $0,3 - 0,85 \mu m$

Introduction

Dans le chapitre 7, les résultats des mesures de spectroscopie d'émission sont présentés en fonction du temps sous forme de profils de luminance lors d'essais d'impact plan à 8,6 *GPa*. Ils mettent en évidence les différentes phases de la transition choc-détonation telles que décrites par Chaiken. Les températures de luminance correspondantes sont également calculées. Les résultats sont comparés aux mesures de pyrométrie spectrale à 6 longueurs d'onde effectuées auparavant lors de la thèse de Léal-Crouzet. La reproductibilité des instants caractéristiques d'apparition de l'onde de superdétonation et de la formation de la détonation est étudiée.

Dans le chapitre 8, l'intensité émise en fonction de la longueur d'onde est étudiée. Elle met en évidence l'évolution des caractéristiques optiques des différents milieux en présence durant la TCD et l'évolution de la luminance au cours du temps. Les résultats sont comparés à ceux obtenus par pyrométrie à 6 longueurs d'onde, lors de la détonation établie, et aux principaux résultats publiés dans la littérature concernant l'émission du NM soumis à un choc. Ensuite, l'interprétation de ces résultats est effectuée. Après avoir établi quelles pouvaient être les caractéristiques optiques des milieux et les espèces présentes, nous proposons un modèle pour le coefficient d'absorption des produits de détonation. Il est basé sur la présence de particules de carbone et de vapeur d'eau dans les produits de réaction du NM et fait donc appel à la diffusion Rayleigh et à la représentation du spectre d'émission d'un gaz. Les profils de luminance calculés à partir de l'équation de transfert radiatif d'un milieu semi-transparent gazeux avec des particules solides seront comparés aux mesures de spectroscopie.



7 Etude temporelle

7.1 Mesures de luminance

7.1.1 Rappel sur les propriétés du NM dans le domaine visible

Le NM est parfaitement transparent entre 0,4 et 0,85 μm (Fig. 7.1). Dans l'U.V. il n'y aura donc pas de signal transmis à travers l'épaisseur de NM au repos car l'explosif est alors opaque.

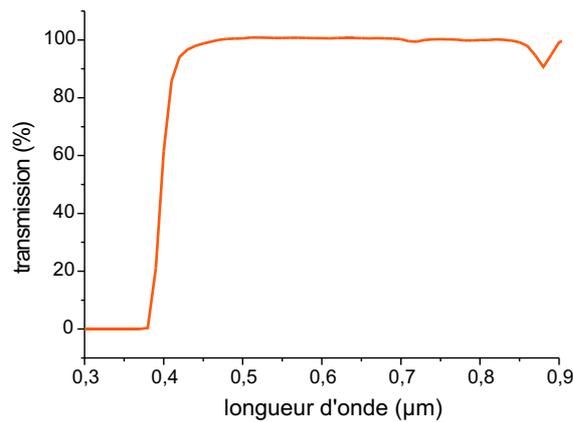


FIG. 7.1 - *Spectre de transmission du NM dans le domaine visible pour une épaisseur de 25 mm*

7.1.2 Résultats sur les signaux de luminance obtenus

Les premiers résultats obtenus sont les profils de luminance pour les différentes longueurs d'onde en fonction du temps. Six essais à 8,6 GPa ont été réalisés dans le domaine visible sur des cibles de NM de 25 mm d'épaisseur. Le tableau 7.1 récapitule ces essais.

n° tir	CA97019	CA00001	CA00020	CA00076	CA01020	CA01045	CA02019
Mesures optiques (<i>cf.</i> légende)	1d	2d	2d	2d	2d	2d	2m
épaisseur de NM (<i>mm</i>)	25	25	25	25	25	25	25
impacteur (<i>mm</i>)	15	15	15	15	15	15	15
plaque de transfert (<i>mm</i>)	4	4	4	4	4	5	4
Vitesse réelle du projectile (<i>m/s</i>)	1934	1948	1927	1926	1937	1936	1946
Pression (<i>GPa</i>)	8,61	8,6	8,57	8,57	8,64	8,64	8,7
température extérieure (<i>°C</i>)	-	22	21	16	14	24	16
température du NM (<i>°C</i>)	18	22	21	21	20	24	17
Amorçage de la superdétonation (μs)							
mesures électrode	1,08	-	-	1,67	-	1,35	-
mesures fluxmètre	-	1,64	1,46	1,6	1,65	1,37	1,6
mesures spectromètre	-	-	-	1,7	1,65	1,38	1,6
Rattrapage du choc par la superdétonation (μs)							
mesures aiguilles	1,35	2,26	2,06	2,23	2,13	1,79	2,05
mesures électrode	-	-	-	2,25	-	1,83	-
mesures fluxmètre	-	2,4	2,18	2,25	-	1,98	2,4
mesures spectromètre	-	-	-	2,36	2,15	1,84	2,15

TAB. 7.1 - *Caractéristiques des essais de détonation pour différentes mesures optiques : 1-pyrométrie 6 longueurs d'onde, 2-spectroscopie d'émission dans le visible, d-tête à doublets, m-tête à miroirs. Le tir de référence de la thèse de Léal-Crouzet est le CA97019.*

La figure 7.2 représente après filtrage numérique du bruit, les signaux de luminance mesurée en $Wm^{-2}\mu m^{-1}sr^{-1}$ en fonction du temps lors d'un essai à 8,6 GPa, pour les 16 voies de mesure. La résolution spectrale est de 32 nm et la résolution temporelle initialement de 1 ns est de 20 ns après filtrage du bruit. Ces mesures, couplées aux signaux des aiguilles de chronométrie, du fluxmètre et éventuellement de l'électrode de polarisation, mettent clairement en évidence les différentes phases de la TCD décrites par Chaiken. Les instants caractéristiques donnés ici sont propres à l'essai CA01045 représenté sur le figure 7.2.

- l'entrée du choc à $t = 0$ entraîne une faible augmentation de la luminance,
- un premier saut de luminance à $t_1=1,65 \mu s$ caractérise la formation de la superdétonation qui rattrape l'onde de choc initial à $t_2=2,15 \mu s$ lors d'un second saut de luminance,
- une onde de détonation forte se forme alors et se relaxe progressivement pour atteindre un régime quasi-stationnaire, ce qui se traduit par une diminution de la luminance,
- un pic à $t_3=4,5 \mu s$ caractérise l'interaction de l'onde de détonation avec la fenêtre en LiF.

Lors de nos essais, la détonation a tout juste le temps de s'établir : en effet, en raison de la transparence du NM non choqué sur le domaine de longueur d'onde étudié, le signal de luminance durant la propagation de la détonation établie doit augmenter ou être constant. D'après nos mesures, le signal devient constant environ 400 ns avant l'interaction avec la fenêtre.

Les voies de mesure des deux longueurs d'onde les plus élevées (ici 861 et 828 nm) sont beaucoup plus bruitées que les autres voies. Le rapport signal sur bruit atteint un niveau égal à 25% voire 50% de la valeur du signal. On peut attribuer ce niveau de bruit élevé au rendement quantique du photomultiplicateur qui est inférieur à 0,1% pour les longueurs d'onde supérieures à 0,8 μm .

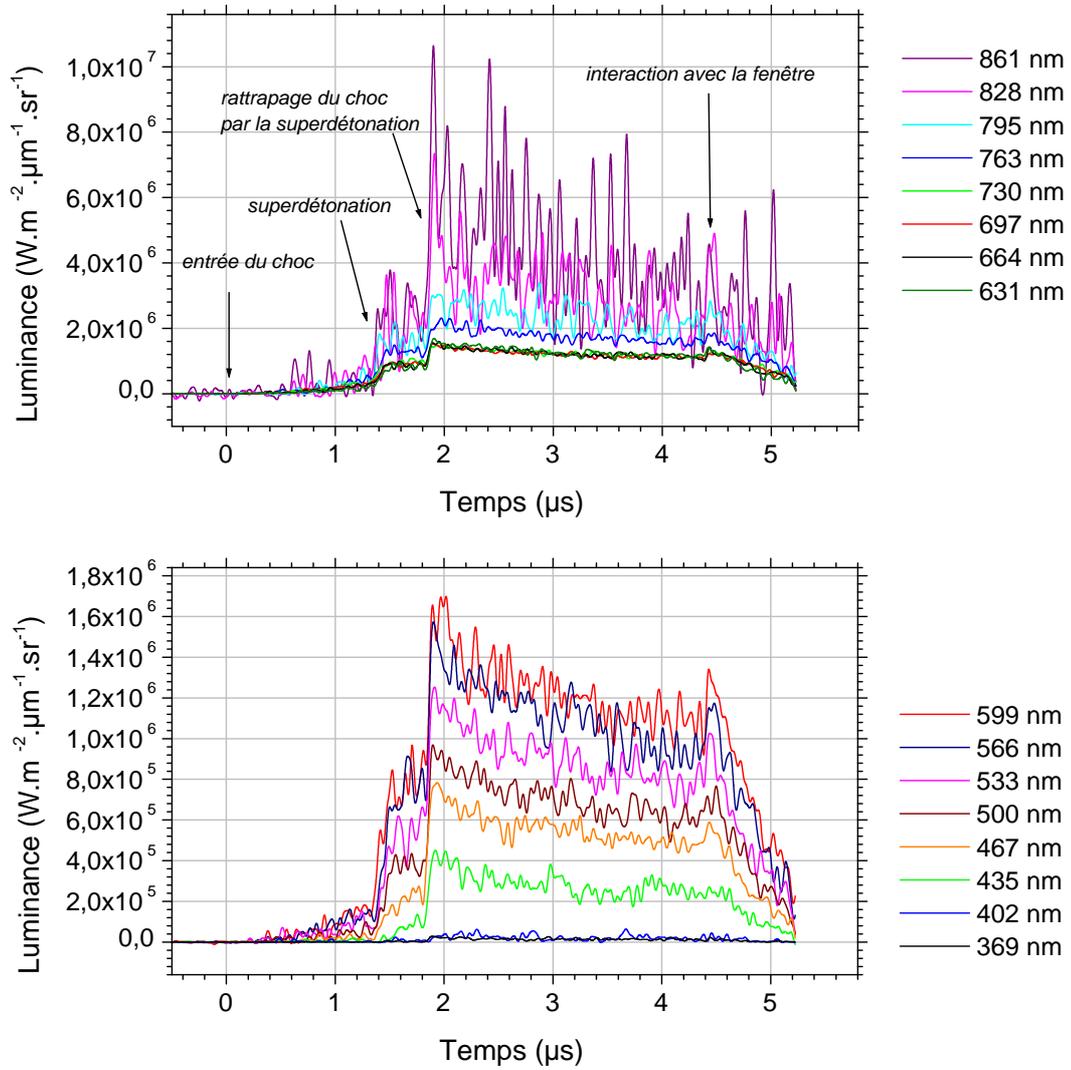


FIG. 7.2 - Profils de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01045 à 8,6 GPa sur une cible de NM de 25 mm

7.2 Températures de luminance

La température de luminance (ou température apparente) est la température du système, en considérant que ce dernier est un corps noir, donc que l'émissivité est égale à 1 et qu'il n'est pas transparent. Elle est calculée à l'aide de la loi de Planck (1.6).

La température vraie du milieu d'émissivité inférieure ou égale à 1, est au moins égale au maximum des températures de luminance ($\varepsilon(\lambda, T) = \frac{L(\lambda, T)}{L_{\lambda}^0(\lambda, T)}$).

Les figures 7.3 et 7.4 représentent les profils de température de luminance en fonction du temps pour les essais *CA01020* et *CA01045*. Les températures inférieures à 1500 *K* ne peuvent être mesurées en raison du bruit de mesure.

Les résultats montrent de fortes valeurs de température de luminance avant la formation de la superdétonation, de l'ordre de 2500 *K*. Ce n'est pas en accord avec le modèle de Chaiken qui prévoit des températures sous choc de l'ordre de 1000 *K*. Cette observation a été également faite sur des essais de réverbération de chocs menés au CEG. Dans le domaine visible, la température de luminance maximale sous choc atteint 2250 *K* [4].

Plusieurs phénomènes pourraient expliquer cette élévation de température.

- Léal *et al.* [49] suggèrent que ces valeurs de températures élevées sont liées à des réactions locales (ou points chauds subcritiques), dues à des hétérogénéités à l'interface impacteur/NM.
- Les travaux de Engelke et Sheffield [28] sont cohérents avec la présence de ces réactions locales : elles pourraient être à l'origine d'ondes qui se rejoignent pour former l'onde de superdétonation.
- Les travaux récents de Lamoureux *et al.* [52] sur la double structure cellulaire de l'onde de détonation du nitrométhane gazeux font penser à une possible libération d'énergie chimique en deux étapes pour former l'onde de superdétonation.

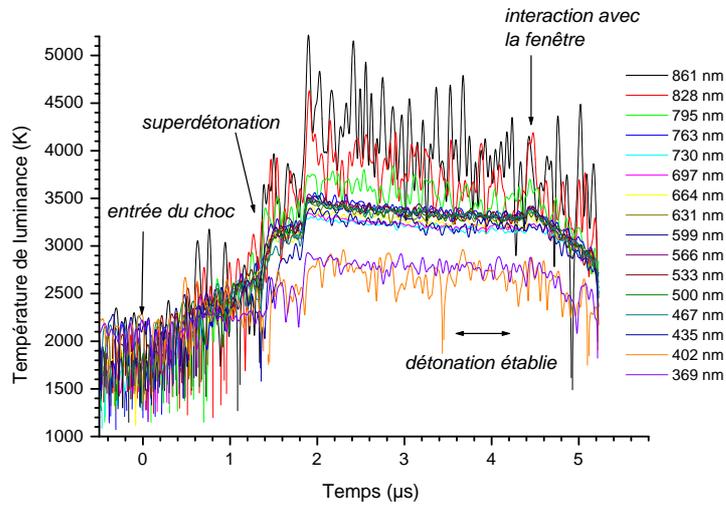


FIG. 7.3 - Profils de température de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01045 à 8,6 GPa sur une cible de NM de 25 mm

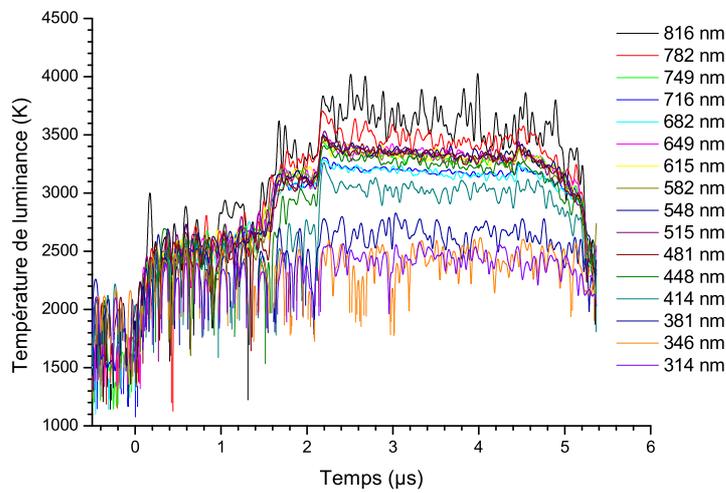


FIG. 7.4 - Profils de température de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01020 à 8,6 GPa sur une cible de NM de 25 mm

7.3 Comparaison avec les essais de pyrométrie

7.3.1 Reproductibilité des essais d'impact plan

Les conditions des premiers tirs ont été choisies par rapport à une configuration préalablement étudiée avec la technique de pyrométrie 6 longueurs d'onde du CEG. Le tableau 7.1 représente les caractéristiques des essais de détonation effectués pour les mesures de spectroscopie d'émission dans le domaine visible ainsi que du tir de référence effectué durant la thèse de Léal-Crouzet [50].

Il apparaît que si la pression de choc est la même, environ $8,6 \text{ GPa}$, les temps t_1 et t_2 d'apparition de l'onde de superdétonation et du rattrapage du choc par la superdétonation sont différents. Les écarts observés atteignent $0,9 \mu\text{s}$ soit 70 %. Les essais effectués durant la thèse présentent un retard par rapport à l'essai de référence réalisé en 1997. Ceci peut s'expliquer par la qualité du NM qui a pu changer, également par la qualité de l'usinage des surfaces de l'impacteur et de la plaque de transfert. La température d'utilisation du NM est comprise entre 17 et $25 \text{ }^\circ\text{C}$, et elle a peu d'influence dans cette gamme de température. La superdétonation apparaissant plus tardivement et la profondeur de la cellule étant toujours de 25 mm , la phase de la propagation de la détonation établie est plus courte.

La comparaison de ces résultats avec des mesures effectuées par Hardesty en 1976 [38] montre que les instants caractéristiques obtenus lors de tous ces essais se trouvent dans des plages de $1 \mu\text{s}$ environ (Fig. 7.5).

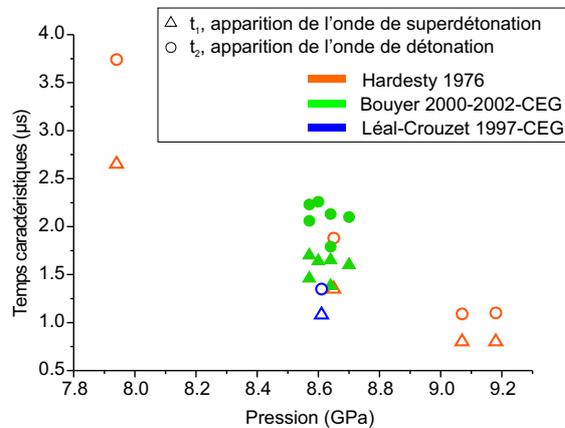


FIG. 7.5 - Comparaison des temps caractéristiques obtenus lors de différents essais d'impact plan sur des cibles de NM

Ces constatations soulignent donc la difficulté d'avoir des essais très reproductibles malgré la qualité et la précision des mesures durant ces manipulations.

7.3.2 Luminances et températures de luminance obtenues par pyrométrie

Les figures 7.6 et 7.7 représentent les profils de luminance et de température de luminance obtenus lors de l'essai de pyrométrie CA97019. Les longueurs d'onde du pyromètre sont comprises dans le visible et le proche infrarouge.

Dans l'ensemble, les luminances obtenues par le pyromètre sont plus élevées que celles mesurées par le spectromètre, mais la comparaison ne peut se faire qu'à 0,5, 0,65 et 0,85 μm . L'écart semble diminuer lorsque la longueur d'onde augmente. Nous reviendrons sur la comparaison entre les deux techniques dans le paragraphe 8.2.

La comparaison des profils de température en fonction du temps fait apparaître également des différences entre pyrométrie et spectrométrie. Les températures de luminance obtenues à partir des mesures de spectrométrie présentent des écarts jusqu'à 300 K pour les longueurs d'onde comprises entre 0,5 et 0,82 μm . En revanche, les mesures de pyrométrie conduisent à des températures de luminance égales pour les longueurs d'onde du domaine visible. **Il ne semble donc pas que le milieu, en détonation notamment, ait un comportement proche de celui d'un corps noir.**

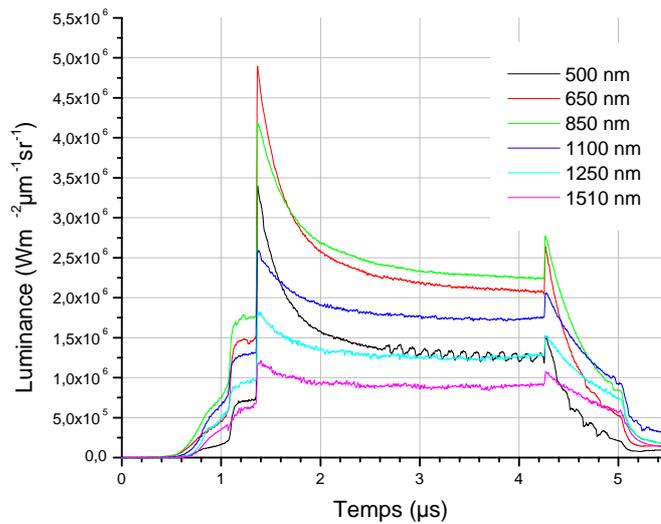


FIG. 7.6 - Profils de luminance obtenus par pyrométrie lors du tir CA97019 à 8,6 GPa sur une cible de 25 nm de NM [50]

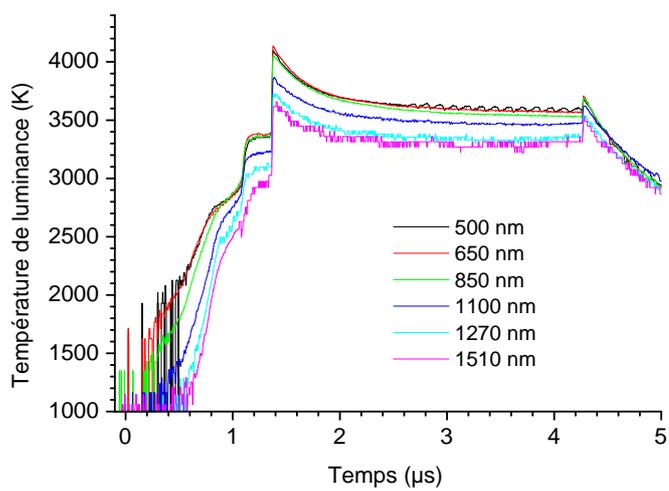


FIG. 7.7 - Profils de température de luminance obtenus par pyrométrie lors du tir CA97019 à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM [50]

8 Etude spectrale

8.1 Résultats

8.1.1 Principaux résultats

La représentation des résultats en fonction de la longueur d'onde présente un grand intérêt puisque la principale différence entre la pyrométrie spectrale et la spectroscopie réside dans la résolution spectrale. La figure 8.1 permet d'avoir une vue d'ensemble des profils de luminance en fonction de la longueur d'onde et du temps. Après le saut de luminance monochromatique dû au rattrapage du choc par la superdétonation apparaît nettement un creux entre les longueurs d'onde 0,60 et 0,75 μm . Ce creux est plus ou moins marqué selon les essais.

Pour plus de précision, la figure 8.2 représente l'évolution de la luminance en fonction de la longueur d'onde pour des instants caractéristiques choisis entre l'entrée du choc et l'interaction avec la fenêtre. Le creux décelé précédemment semble apparaître dès, ou après, la formation de la superdétonation, entre 0,65 et 0,75 μm . Il peut s'agir d'un pic d'émission centré à 0,65 μm et d'un second pic dont le sommet se trouve à une longueur d'onde supérieure à 0,816 μm . **Ce profil est caractéristique d'un milieu semi-transparent et semble aller à l'encontre de l'hypothèse couramment utilisée en pyrométrie d'un rayonnement de l'onde de détonation proche de celui d'un corps noir [70, 46] et d'une émissivité de surface de l'onde [47].**

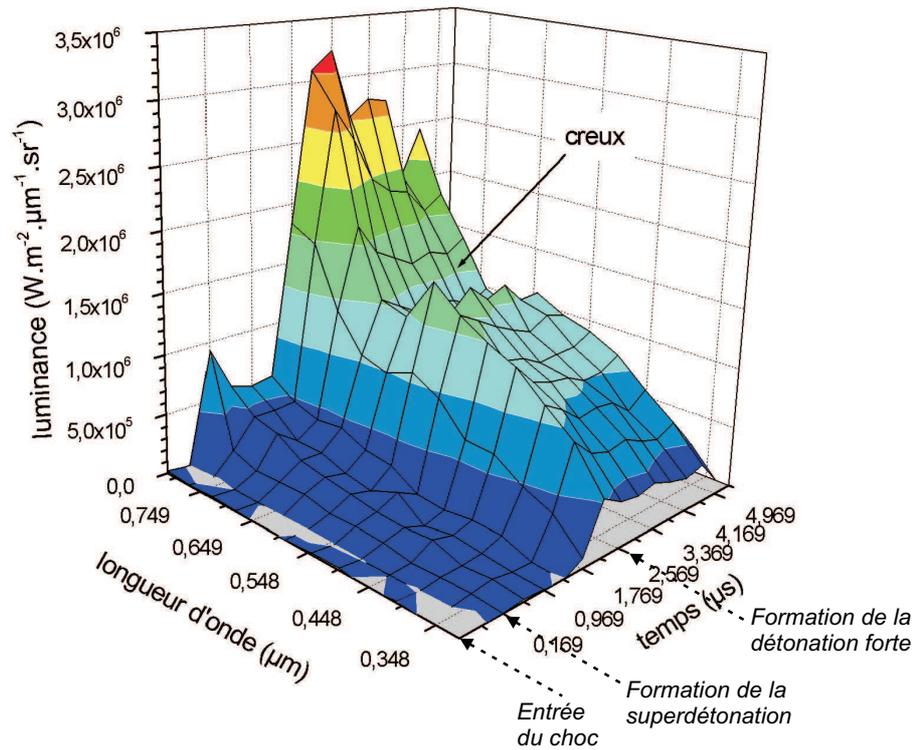


FIG. 8.1 - Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir CA01020 à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM en fonction du temps et de la longueur d'onde

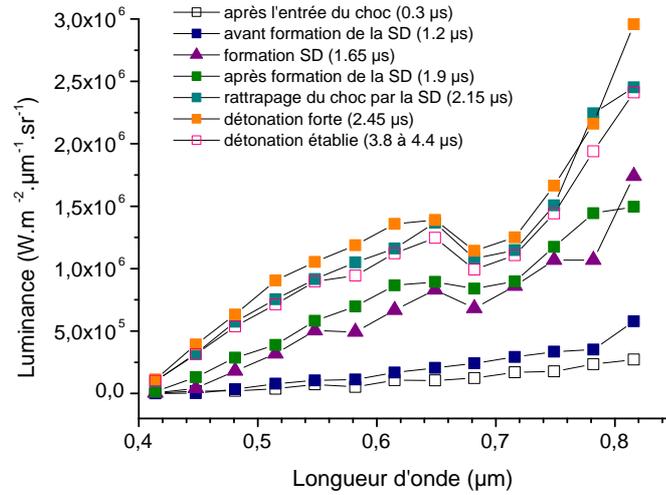


FIG. 8.2 - Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir CA01020 à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour différents instants caractéristiques (SD, superdétonation)

En représentant les spectres de température de luminance de la même façon, nous obtenons le minimum de température atteint pour les différentes étapes de la TCD car la température vraie est supérieure à la température de luminance (voir section 7.2) (Tab. 8.1 et Fig. 8.3). Si le milieu était un corps noir ou un corps gris, la température de luminance serait indépendante de la longueur d'onde à chaque instant.

Phases de la TCD	Température
détonation établie	$\geq 3600 \text{ K}$
superdétonation	$\geq 3200 \text{ K}$
avant la formation de la superdétonation	$\geq 2600 \text{ K}$
après l'entrée du choc	$\geq 2500 \text{ K}$

TAB. 8.1 - Températures pour différents instants de la transition choc-détonation

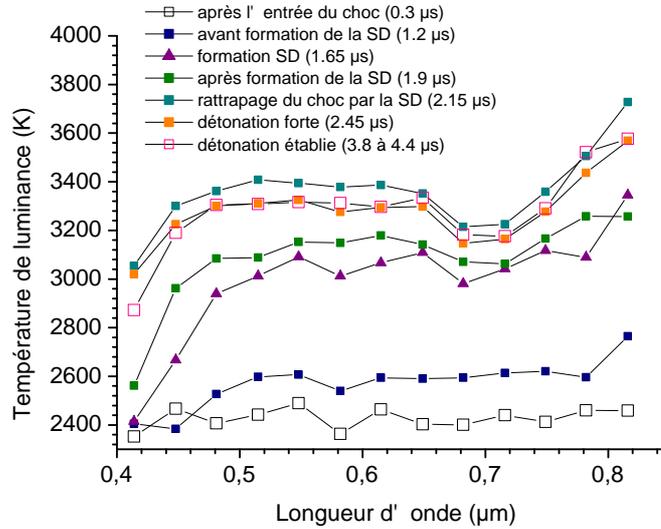


FIG. 8.3 - Spectres de température de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir CA01020 à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour différents instants caractéristiques

Le tracé des spectres de luminance obtenus pour chacun des essais d'impact plan (essais ayant produit des résultats exploitables) en fonction de la longueur d'onde lors de la détonation établie montre une bonne reproductibilité des résultats pour les longueurs d'onde inférieures à $0,7 \mu m$ (Fig. 8.4). Par contre, l'essai CA02019, premier essai réalisé avec une tête à miroir pour collecter le flux, présente des signaux plus élevés pour les longueurs d'onde supérieures à $0,75 \mu m$. L'écart de température de luminance avec l'essai CA01045 à $0,86 \mu m$ est de $600 K$. Cette différence pourrait être liée à un défaut d'achromatisme des têtes à doublets pour ces longueurs d'onde, défaut corrigé par les têtes à miroirs. Le creux centré à $0,75 \mu m$ est moins net pour cet essai. Nous n'avons pas d'explication.

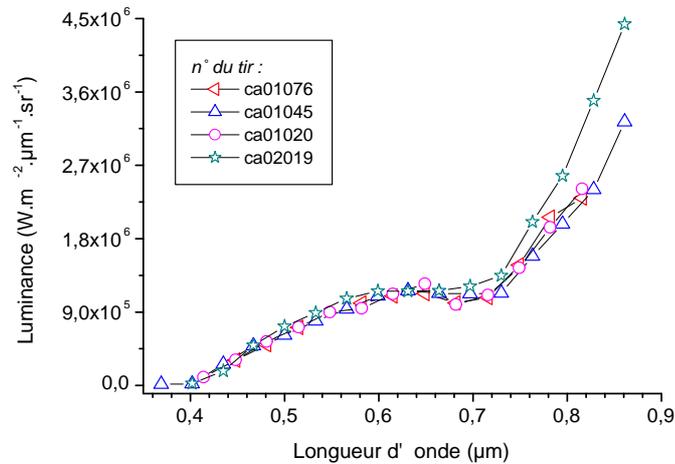


FIG. 8.4 - Spectres de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour chaque essai à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour la détonation établie

8.1.2 Comparaisons des profils à l'entrée du choc, à la formation de la superdétonation, avant et après sa formation et en détonation établie

Les figures 8.5 et 8.6 montrent les profils de luminance obtenus à différents instants de la TCD lors de trois essais d'impact plan.

La forme des courbes de la détonation établie et après la formation de la superdétonation ne semble pas beaucoup changer (Fig. 8.5). Les courbes subissent un décalage en intensité lié à l'augmentation de température. Aux courtes longueurs d'onde (inférieures à $0,4 \mu m$), l'intensité est nulle car le NM est opaque. Au moment de la formation de la superdétonation, le pic d'émission ou point d'inflexion à $0,65 \mu m$ n'est pas encore présent. On peut donc penser que les produits de réaction ne sont pas tout à fait les mêmes. Nous reviendrons sur ces observations dans la suite, au paragraphe 8.3.4.3.

La figure 8.6 permet de comparer les spectres de luminance quelques centaines de nanosecondes après l'entrée du choc et avant la formation de l'onde de superdétonation. L'écart en intensité des signaux entre les deux instants caractérise bien la différence de température liée aux réactions chimiques qui précèdent la formation de la superdétonation. Le calcul de la luminance émise par le fond de la cellule, qui correspond à l'intensité émise par la plaque de transfert en cuivre à 500 K et

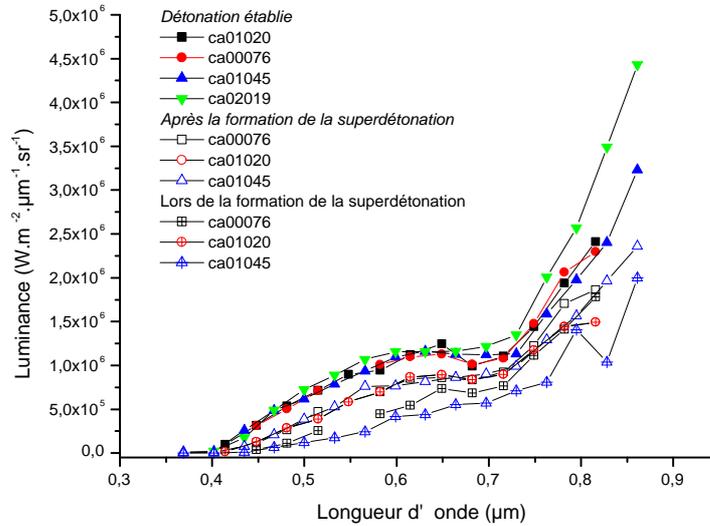


FIG. 8.5 - Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour plusieurs essais à 8,6 GPa à différents instants de la TCD

d'émissivité 0,04 montre qu'il y a peu de différence avec les luminances sous choc¹. Cela confirme l'hypothèse que juste après l'entrée du choc, le nitrométhane reste transparent.

Dans un premier temps, nous allons comparer les résultats obtenus avec le profil de luminance obtenu par pyrométrie. Compte tenu des écarts entre les instants caractéristiques d'apparition de la superdétonation et de la détonation, la comparaison portera uniquement sur la détonation établie. Ensuite, nous tenterons d'interpréter nos mesures de spectroscopie d'émission.

¹la température de l'impacteur est de 500 K [22] et l'émissivité d'une surface de cuivre dont la surface est polie varie entre 0,03 et 0,04 entre 300 et 600 K. Source : <http://iusti.univ-mrs.fr>.

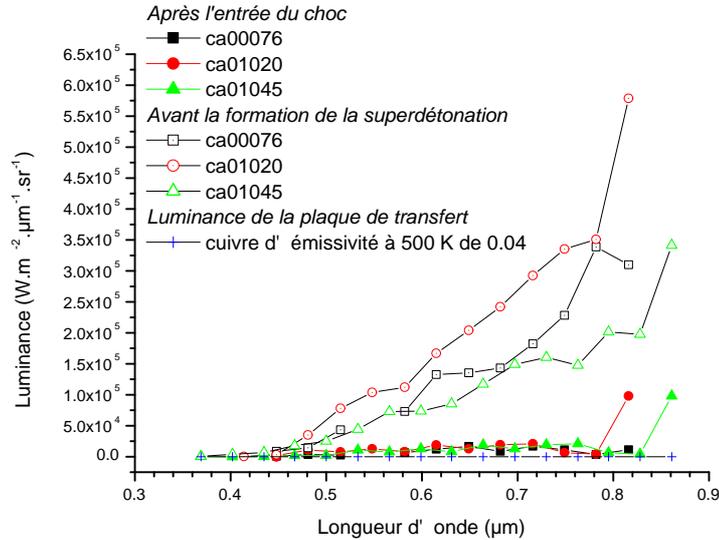


FIG. 8.6 - Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour plusieurs essais à 8,6 GPa à différents instants de la TCD

8.2 Comparaison avec la pyrométrie, lors de la détonation établie

La figure 8.7 représente les mesures de luminance obtenues en détonation établie avec le pyromètre multi-longueurs d'onde du CEG et avec la spectrométrie d'émission. La courbe de Planck est tracée pour la température de la détonation établie obtenue par pyrométrie, 3570 K. Les barres d'erreur indiquent la largeur de la bande spectrale de chaque détecteur.

Un résultat important de la thèse de Léal Crouzet [50] est qu'en première approximation, le comportement de la détonation proche de celui d'un corps noir. En effet, les mesures de pyrométrie sont très proches de la courbe de Planck à 3570 K pour les longueurs d'onde du domaine visible, et de la courbe à 3350 K dans l'infrarouge. Les facteurs d'émission monochromatiques correspondants varient entre 0,85 à 1,27 μm et 0,95 à 0,5 μm .

Les mesures plus résolues obtenues aujourd'hui par spectrométrie apportent des précisions dans le domaine visible. D'une part, les niveaux de luminance obtenus, plus faibles de par la résolution, montrent que les mesures s'éloignent de la courbe du corps noir, d'autre part, la variation de la luminance n'est pas strictement monotone entre 0,5 et 0,8 μm comme pouvaient le faire penser les mesures de pyrométrie. **Il y**

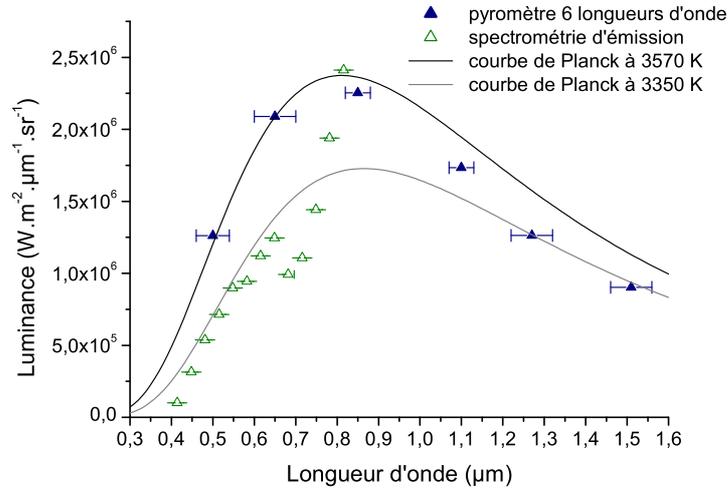


FIG. 8.7 - Profils de luminance obtenus par pyrométrie multi-longueurs d'onde et par spectrométrie d'émission lors des tirs CA97019 et CA00076 à 8,6 GPa sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour la détonation établie

a donc de fortes probabilités pour que les produits de détonation soient semi-transparents. Cette observation souligne l'importance du choix des longueurs d'onde de mesure en pyrométrie. Si les mesures de température ne sont pas toujours affectées par ce choix, il peut conduire à des caractéristiques optiques très différentes [13, 12].

8.3 Interprétation des résultats

8.3.1 Résultats dans la littérature

Il y a peu de travaux portant sur la spectroscopie d'émission dans le domaine visible du NM soumis à un choc.

Le résultat qui semble le plus intéressant est celui obtenu par Gruzdkov *et al.* en 1998 lors de mesures d'émission de la décomposition du NM sous choc [34]. Leurs essais sont différents de ceux menés dans cette thèse : l'explosif est soumis à des sollicitations de chocs multiples sous des pressions atteignant 12 à 17 GPa. La figure 8.8 présente le spectre d'émission du NM choqué à 16,7 GPa, mesuré 600 ns après l'entrée du choc dans l'explosif.

En corrélant la courbe de Planck à ces résultats, les auteurs déterminent une

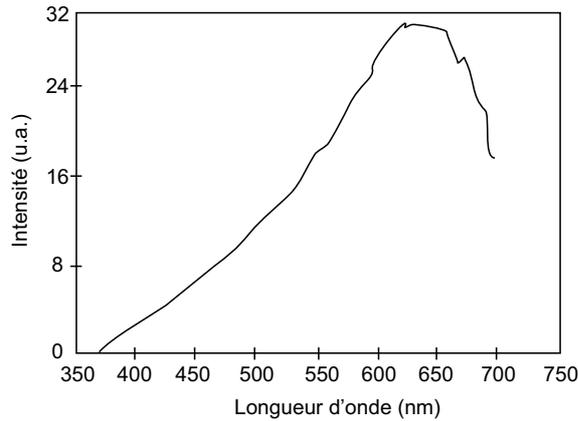


FIG. 8.8 - Spectre d'émission du NM soumis à un choc de 16,7 GPa, 600 ns après l'entrée du choc. Extrait de [34]

température de 4500 K, température de luminance trop élevée pour correspondre à la température d'une détonation établie. Ne pouvant corrélérer aucun spectre de corps gris au spectre observé, ils expliquent l'émission observée à 650 nm par un rayonnement autre que thermique, correspondant à la luminescence des produits de réaction et en particulier du NO_2 , formé lors de la décomposition du NM.

En 1965, Dremin *et al.* ont également mesuré le spectre d'émission du NM en détonation entre 380 et 800 nm lors d'essais de détonation de NM en cartouche [26]. Seuls leurs résultats entre 435 et 588 nm sont présentés dans leur article. Le spectre est différent de celui de Gruzdkov et de ceux que nous avons obtenus aux courtes longueurs d'onde car il présente une *bosse* à 0,47 μm mais aucune explication n'est donnée par les auteurs quant à la caractéristique des signaux obtenus.

Les auteurs, dans les deux articles, tentent de corrélérer leurs résultats à la courbe de Planck à différentes températures. Ceci n'est possible que si le milieu est parfaitement absorbant et non semi-transparent comme le suggèrent nos résultats.

En 1993, Persson *et al.* ont étudié l'amorçage par choc de la détonation du NM en mesurant l'émission grâce à des photomultiplicateurs à 10 longueurs d'onde entre 0,4 et 0,7 μm [62]. Leurs résultats sont présentés sur la figure 8.9. Aux courtes longueurs d'onde, les mesures ont tendance à être au-dessous de la courbe de Planck et aux grandes longueurs d'onde, au-dessus.

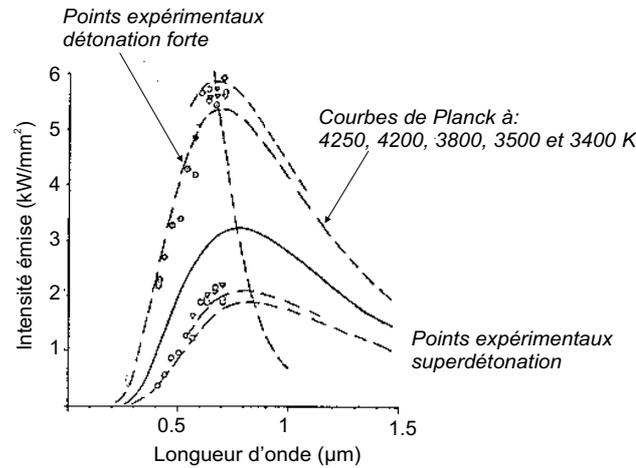


FIG. 8.9 - Spectre d'émission du lors de la TCD du NM à 8,5 GPa (amorçé par une charge de NM pour deux épaisseurs de plaque de transfert 25 et 75 mm). Extrait de [62]

8.3.2 Espèces en présence

Nous allons tenter d'expliquer les signaux obtenus par la présence d'espèces particulières, gazeuses ou solides. Le calcul thermochimique de la composition des produits de réaction du NM montre l'importance, d'une part, des espèces gazeuses comme N_2 , H_2O , CO , CO_2 et CH_4 , d'autre part, des espèces solides, à savoir le carbone (cf tableau 2.2).

Dans le domaine visible, la plupart de ces gaz sont «clairs», c'est-à-dire qu'ils sont transparents (Fig. 8.10). Dans les gaz, dont la proportion relative est importante, seule la vapeur d'eau présente des raies d'absorption, localisées vers 0,65, 0,72 et 0,82 μm (Fig. 8.11). Sur la figure 8.10 est également représenté le dioxyde d'azote NO_2 , car, bien qu'en faible quantité, il présente des raies dans le domaine visible [42]. Les particules de carbone, solides, présentent un spectre d'émission continu et on peut penser qu'aux courtes longueurs d'onde, inférieures à 0,65 μm , seules les particules de carbone émettent.

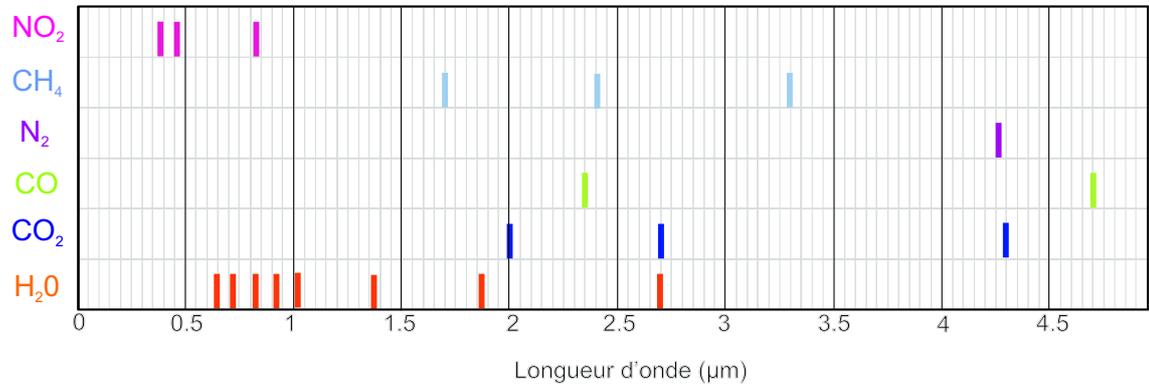


FIG. 8.10 - Position des principales raies d'absorption des espèces présentes dans les produits de détonation [58, 42]

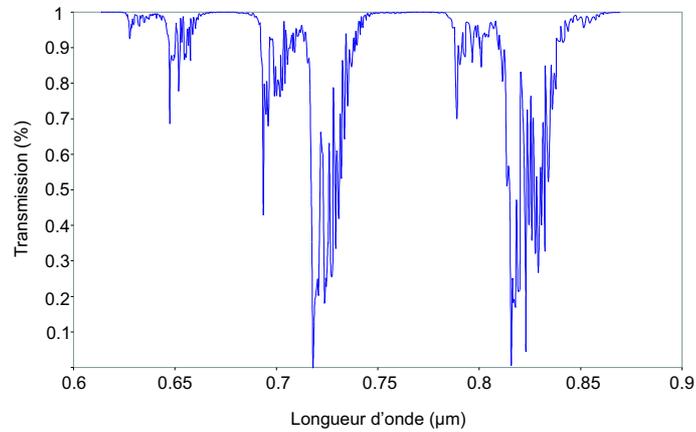


FIG. 8.11 - Spectre de transmission de H₂O à pression et température ambiantes, modélisé avec la base de données HITEMP. Résolution 10 nm.

8.3.3 Recherche des caractéristiques optiques des milieux

8.3.3.1 Détonation établie

C'est le cas représenté par la figure 3.5. Le front de détonation se propage dans l'explosif au repos, transparent dans le domaine visible. A l'arrière du front, les produits de détonation se trouvent à une température quasi-constante en raison de la vitesse de la plaque de transfert proche de la vitesse matérielle CJ. Le coefficient d'absorption monochromatique, qui dépend de la température, est donc constant. Au fur et à mesure que l'onde se propage, l'épaisseur des produits de détonation augmente. Par conséquent, l'intensité émise par le milieu devrait augmenter car la couche de NM à l'avant du front est transparente. Or, ce n'est pas le cas, le signal enregistré juste avant l'interaction avec la fenêtre en LiF étant constant (voir Fig. 7.2). Nous envisageons plusieurs explications.

1. Tout d'abord, il s'agit peut-être d'une émission de surface du front de détonation, proche de celle d'un corps noir, ce qui est suggéré par les résultats de pyrométrie [50]. Cette hypothèse ne nous paraît pas satisfaisante car les signaux obtenus avec la technique de spectroscopie d'émission montrent que les températures de luminance ne sont pas égales. Ils caractérisent au contraire un milieu semi-transparent.

De plus, nous avons comparé les spectres de luminance en détonation établie avec les spectres de luminance après l'interaction de l'onde de détonation avec la fenêtre. La luminance mesurée correspond alors aux produits de détonation qui se trouvent à l'arrière du front. Les profils ont la même forme, la différence en intensité s'expliquant par le refroidissement à la traversée de la fenêtre (Fig. 8.12). Le front de détonation n'est donc pas opaque.

2. Une autre explication envisageable pourrait être que le coefficient d'absorption monochromatique du milieu dans le domaine visible soit grand. Le signal émis ne provient non pas de toute l'épaisseur du milieu semi-transparent des produits de détonation mais seulement d'une couche de produits de détonation d'épaisseur constante, réduite, à l'arrière du front de détonation (Fig. 8.13). Cette couche correspond à l'explosif qui vient de réagir au passage de l'onde de détonation. Le milieu est alors dit optiquement épais.

Yoo *et al.* [87] notent que les produits de réaction du nitrométhane choqué comme les particules de carbone et de graphite peuvent être considérés comme optiquement épais ce qui est en accord avec l'hypothèse d'un coefficient d'absorption grand.

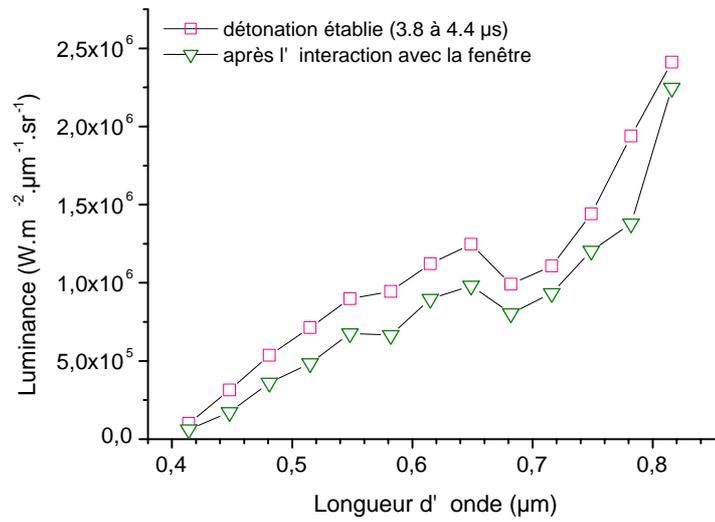


FIG. 8.12 - Comparaison des spectres de luminance avant et après l'interaction de l'onde de détonation avec la fenêtre

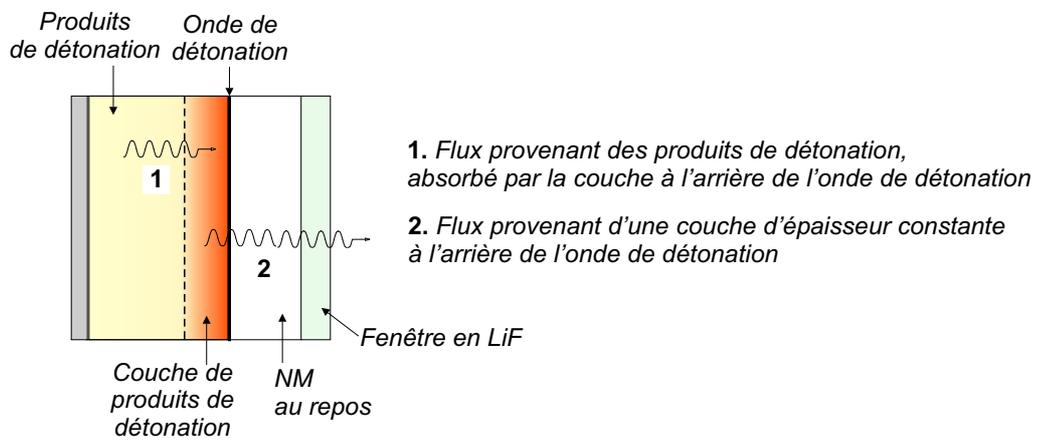


FIG. 8.13 - Schéma de la détonation établie se propageant dans la cellule lorsque le coefficient d'absorption provient d'une couche d'épaisseur constante à l'arrière du front

Le cas de la détonation établie est le plus simple à étudier du point de vue du transfert radiatif car la température est constante. La figure 8.14 représente les caractéristiques des milieux en détonation établie.

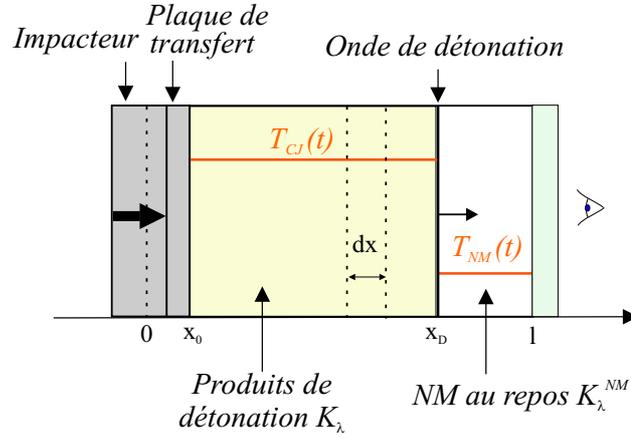


FIG. 8.14 - Détonation établie se propageant dans la cellule

Les produits de détonation se trouvent dans un état constant (T_{CJ} , K_λ). C'est une conséquence du modèle de Chapman-Jouguet. L'équation de transfert pour une couche d'épaisseur dx dans le milieu en détonation s'écrit donc (voir section 1.3) :

$$\frac{dL(x)_\lambda}{dx} = -K_\lambda L_\lambda(x) + K_\lambda L_\lambda^0(T) \quad (8.1)$$

Le premier terme $-K_\lambda L_\lambda(x)$ traduit l'absorption dans la couche dx et le second terme $K_\lambda L_\lambda^0(T)$, l'émission du milieu en détonation entre x et $x + dx$.

Pour $x \in [x_0, x_D]$, en intégrant l'équation 8.1 suivant x , on obtient :

$$L_\lambda(x) = L_\lambda(x_0)e^{-K_\lambda(x-x_0)} + L_\lambda^0(T_{CJ})(1 - e^{-K_\lambda(x-x_0)}) \quad (8.2)$$

Le premier terme correspond au rayonnement de l'interface absorbé par les produits de détonation de la couche $(x - x_0)$ émis en x .

Le second terme de l'équation correspond à l'émission/absorption des produits de détonation.

La luminance mesurée à l'interaction NM/fenêtre en LiF est égale à la luminance émise en x_D corrigée de l'absorption et de l'émission de la couche de NM entre le front de détonation et la fenêtre :

$$L_\lambda(l) = L_\lambda(x_D)e^{-K_\lambda^{NM}(l-x_D)} + L_\lambda^0(T_{NM})(1 - e^{-K_\lambda^{NM}(l-x_D)}) \quad (8.3)$$

Le fond de la cellule (interface plaque de transfert/NM) a une température négligeable devant celle des produits de détonation (500 K vs 3600 K - voir section 8.1.2), on peut donc négliger le premier terme du second membre de l'équation 8.2.

Le NM est transparent dans le domaine visible, par conséquent, le second terme de l'équation 8.3 est égal à 0. Le coefficient de transmission de la couche d'explosif à l'avant du front de détonation $e^{-K_\lambda^{NM}(l-x_D)}$ est égal à 1.

D'où l'expression de la luminance au point d'abscisse l où s'effectue la mesure :

$$L_\lambda(l) = L_\lambda^0(T_{CJ}) (1 - e^{-K_\lambda(x_D-x_0)}) \quad (8.4)$$

La figure 8.15 présente les résultats de simulations montrant l'influence de la valeur du coefficient d'absorption monochromatique K_λ sur la valeur de la luminance émise $L_\lambda(l)$. Lorsque le coefficient d'absorption est petit, c'est-à-dire pour un milieu qui absorbe très peu le rayonnement, le flux émis par les produits de détonation augmente au cours du temps. Plus la valeur de K_λ augmente, plus le signal tend à être constant au cours du temps. Il correspond alors à la luminance du corps noir à la même température. Nous avons calculé la luminance émise par une couche de produits de détonation d'épaisseur constante à l'arrière de l'onde détonation : nous obtenons la courbe en pointillés pour une longueur d'onde de 566 nm et une épaisseur de 5 mm. La luminance émise est constante ce qui correspond bien au signal obtenu par spectroscopie d'émission. La valeur du coefficient d'absorption correspondante, $K_\lambda=169 \text{ m}^{-1}$ correspond à milieu d'émissivité de 0,6.

Il est intéressant d'étudier également l'épaisseur optique (sans dimension) $K_\lambda(x_D-x_0)$ des produits de détonation pour différentes températures.

$$K_\lambda(x_D - x_0) = -\ln \left(1 - \frac{L_{\lambda,mesure}(l)}{L_\lambda^0(T)} \right), \quad L_{\lambda,mesure}(l) \leq L_\lambda^0(T) \quad (8.5)$$

La figure 8.16 représente les valeurs du rapport entre la luminance mesurée en détonation établie et la luminance du corps noir à différentes températures. Le rapport est égal à l'émissivité apparente du milieu. Ce rapport est inférieur à 1. Ce calcul permet de déterminer une borne minimum de la température de détonation. Par exemple, la température 3300 K entraîne des valeurs du rapport supérieures à 1, ce qui est impossible puisque l'émissivité maximale est égale à 1 pour un corps noir. La température en détonation établie est donc supérieure 3500 K.

On en déduit l'épaisseur optique $K_\lambda(x_D-x_0)$ à différentes températures (Fig. 8.17).

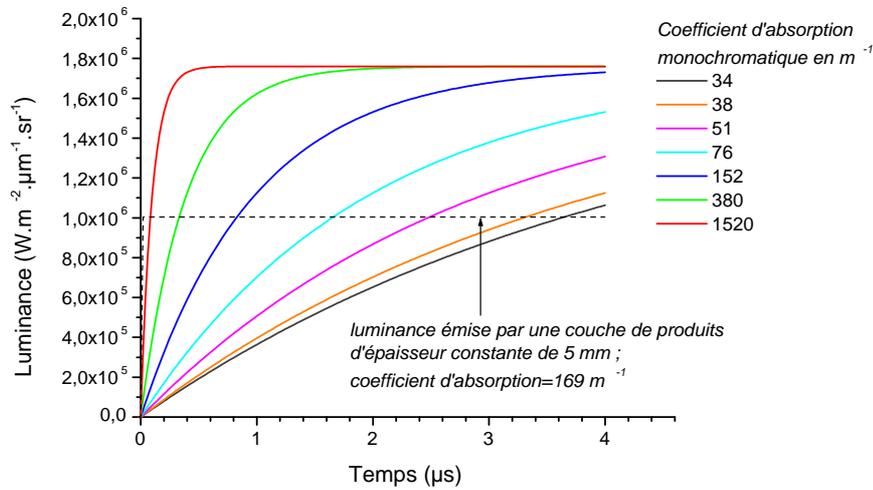


FIG. 8.15 - Influence de la valeur du coefficient d'absorption monochromatique sur la luminance d'une détonation autonome stationnaire soutenue, la température étant fixée à 3600 K

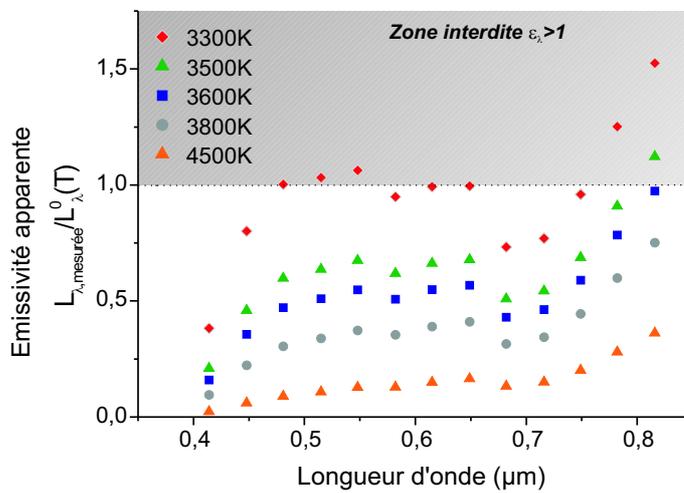


FIG. 8.16 - Calcul du rapport $\frac{L_{\lambda,mesuree}(l)}{L_{\lambda}^0(T)}$ ou émissivité apparente pour plusieurs températures

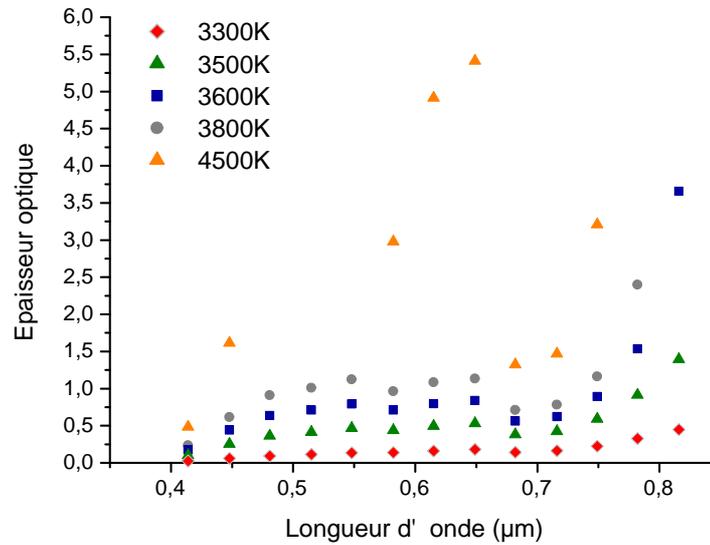


FIG. 8.17 - Calcul de l'épaisseur optique en détonation établie à différentes températures

Lorsque la détonation interagit avec la fenêtre en LiF, l'épaisseur des produits de réaction est égale à $l - x_0 = 17 \text{ mm}^2$. Il est alors possible de calculer le coefficient d'absorption (Fig. 8.18). Ce graphique donne l'allure calculée du coefficient d'absorption des produits de détonation en fonction de la longueur d'onde. L'amplitude de K_λ diminue lorsque la température augmente. C'est cette allure qui sera fournie aux calculateurs de l'INRIA pour l'inversion des profils de luminance sous forme d'une grille de valeurs en fonction de la longueur d'onde et de la température (cf section 10.1.2).

² $x = 25 \text{ mm}$, le fond de la cellule est fixe. Dans le cas où l'on tient compte de la vitesse de l'interface, égale à 1700 m/s environ, l'épaisseur de la cellule lors de l'interaction avec la fenêtre est de 17 mm environ.

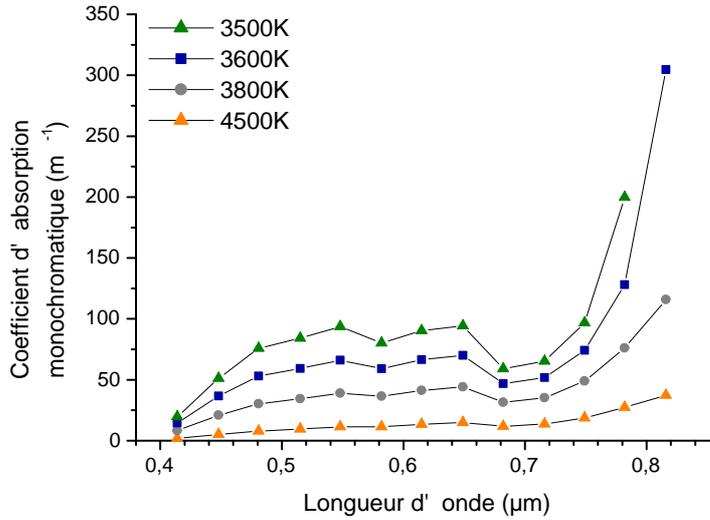


FIG. 8.18 - Calcul du coefficient d'absorption en détonation établie à différentes températures

8.3.3.2 Propagation de l'onde de superdétonation

Cette phase est représentée par le second schéma de la figure 3.4 que l'on redonne ici (Fig. 8.19).

Le choc se propage dans le NM au repos. A une certaine distance à l'arrière du choc, l'onde de superdétonation se propage dans le NM choqué. Entre la plaque de transfert et l'onde, le NM a réagi et des produits de réaction sont présents.

Si le front de choc (et/ou le NM choqué) était opaque, on ne mesurerait qu'une intensité constante de la luminance émise par le choc jusqu'à la formation de l'onde de détonation. En effet, le NM étant transparent, le flux émis par la surface du front de choc serait mesurée. Comme le signal entre la formation de la superdétonation et le rattrapage du choc par l'onde de superdétonation varie, **le choc est bien transparent. On peut donc considérer que le NM choqué a les mêmes propriétés que le NM pur.** Yoo *et. al* [87] affirment d'ailleurs que le NM au repos et le NM choqué sont optiquement transparents entre 0,35 et 0,7 μm tant qu'ils n'ont pas réagi.

Des essais réalisés au CEG confirment que le choc est transparent et que les produits de réaction à l'arrière de la superdétonation ne sont pas opaques. L'exploitation de signaux obtenus avec la technique BMI, technique IDL utilisant un laser pulsé, montrent qu'un faisceau laser à la longueur d'onde 600 nm traverse le milieu

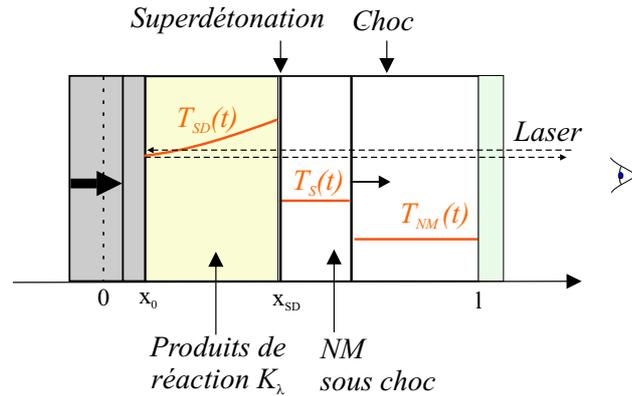


FIG. 8.19 - Onde de superdétonation se propageant dans la cellule, à l'arrière du front de choc

derrière le choc et le milieu à l'arrière de l'onde de superdétonation ³.

Les mesures de spectroscopie d'émission enregistrent donc bien la propagation de l'onde de superdétonation dans le milieu choqué. L'émission en dessous de $0,6 \mu\text{m}$ des produits de réaction augmente au fur et à mesure que l'onde de superdétonation rattrape le choc. Pour les longueurs d'onde supérieures à $0,6 \mu\text{m}$, le signal est constant. L'explication du signal constant mesuré donnée dans le paragraphe précédent est valable ici : le coefficient d'absorption monochromatique pour les longueurs d'onde supérieures à $0,6 \mu\text{m}$ est plus élevé et c'est une couche d'épaisseur constante à l'arrière de l'onde de superdétonation qui émet. **Les produits de réactions constituent un milieu que l'on peut qualifier d'optiquement épais pour ces longueurs d'onde et d'optiquement mince pour les longueurs d'onde inférieures à $0,6 \mu\text{m}$** (Fig. 8.20).

La figure 8.21 représente les valeurs du coefficient d'absorption calculées à différentes températures. Nous avons considéré une couche de produits de réaction de température et de coefficient d'absorption constants à l'arrière du front de superdétonation. Le NM choqué et le NM au repos sont transparents. L'épaisseur de la couche est de 8 mm environ ⁴. Les valeurs du coefficient d'absorption correspondent à un facteur d'émission inférieur à 1 donc le milieu n'est pas un corps noir. Pour la même température, le coefficient d'absorption des produits de réaction formés au passage de l'onde de superdétonation est supérieur à celui des produits de détonation.

³Essai CA00030 à $7,31 \text{ GPa}$. Le faisceau laser traverse la cellule remplie d'explosif puis est réfléchi par la plaque de transfert. L'intensité du faisceau réfléchi est mesuré par une photodiode ou un photomultiplicateur.

⁴La vitesse de l'impacteur est de l'ordre de 1700 m/s , la vitesse de l'onde de superdétonation est de l'ordre de 8000 m/s .

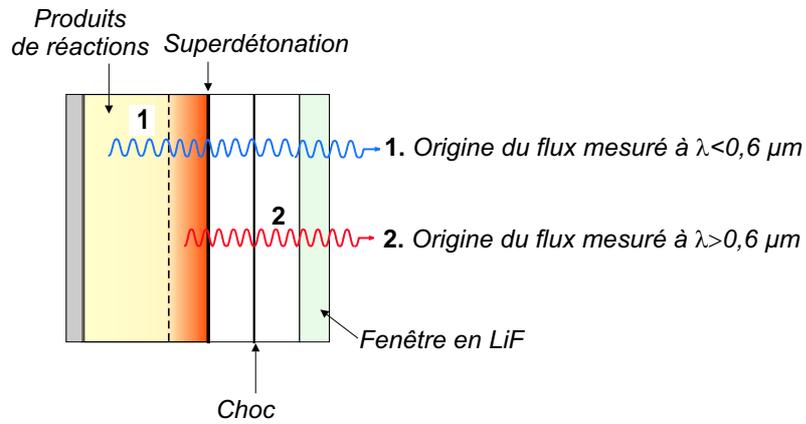


FIG. 8.20 - Origine du flux mesuré lors de la propagation de l'onde de superdétonation

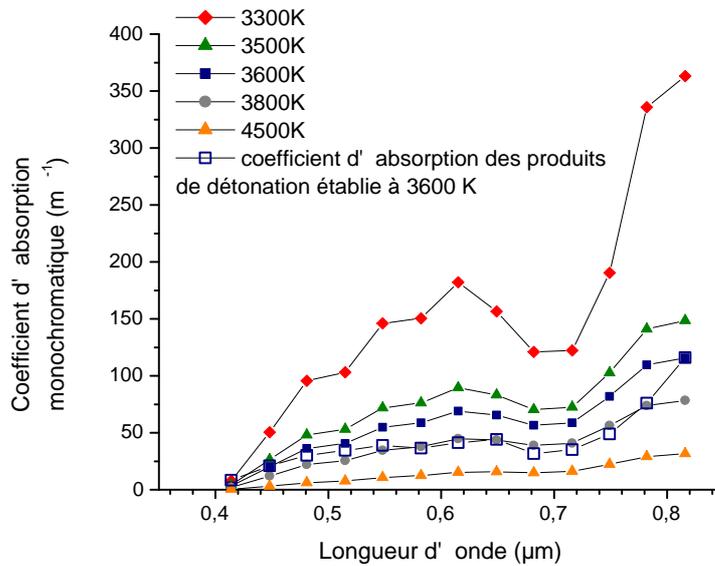


FIG. 8.21 - Calcul du coefficient d'absorption lors de la superdétonation à différentes températures

8.3.3.3 Etape entre l'entrée du choc et la formation de l'onde de superdétonation

C'est la première étape de la TCD représentée par la figure 3.3. Le choc se propage dans le NM au repos et le NM qui a subi son passage se trouve à une pression de l'ordre de 8,6 *GPa*.

Nous avons constaté dans la section 8.1.2 que le flux émis après l'entrée du choc était faible par rapport au flux émis dans les instants précédant la formation de la superdétonation et qu'il était peu différent de celui émis par la plaque de transfert. Cela caractérise le fait que le NM sous choc reste transparent.

Dans la section 7.2, l'étude des profils de température de luminance en fonction du temps ne permettait pas d'avoir la température dès l'entrée du choc mais elle a montré qu'entre l'entrée du choc et la formation de la superdétonation, la température de luminance varie entre 1500 *K* et 2500 *K*. Plusieurs explications ont été données sur les fortes valeurs de températures de luminance enregistrées dans le NM choqué. La plus probable est la présence locale de micro-zones de réactions chimiques. Le NM a donc localement réagi mais il reste semi-transparent. Le calcul du coefficient d'absorption monochromatique avant la formation de la détonation lorsque la température de luminance est égale à 2500 *K* n'apporte pas d'éléments concluants. Il risque d'induire en erreur du fait de la faible épaisseur de NM sous choc considéré (2-3 *mm*) : les valeurs de luminance à un instant caractéristique sont en effet moyennée sur 100 *ns* ou plus ce qui correspond à une moyenne sur 0,5 *mm* d'épaisseur.

L'interprétation des essais de réverbération de chocs menés au CEG [4] permet d'envisager la présence possible de zones locales de réactions. La figure 8.22 est un des résultats obtenus suite à des mesures de pyrométrie dans le visible et l'infrarouge.

L'encadrement des points de mesure par la courbe de Planck fournit deux valeurs de température de luminance. Dans l'infrarouge, la température de luminance est égale à 580 *K* et dans le visible, elle est égale à 2235 *K*. Dans le visible, le NM qui a ici une épaisseur de 2 *mm* est transparent mais dans l'infrarouge, sa transmission est de 60% (Fig. 8.23). La température de luminance correspondante est donc de 670 *K* environ ($L_\lambda/\varepsilon = L_\lambda^0$). L'écart en température suivant la longueur d'onde de mesure s'explique par les caractéristiques optiques du NM. Dans le visible, le NM étant transparent, le flux émis provient de l'ensemble de la cellule, ce qui n'est plus le cas dans l'infrarouge. On peut donc penser que dans le visible, on mesure l'émission du NM qui aurait réagi localement et que dans l'infrarouge, la plus faible transmission de l'explosif empêche de mesurer l'émission due aux réactions chimiques locales (Fig. 8.24).

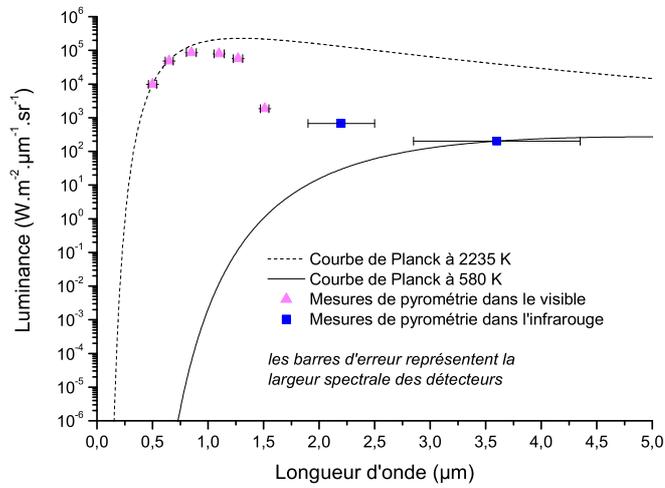


FIG. 8.22 - Mesures pyrométriques lors d'un essai de réverbération de chocs sur une épaisseur de 2 mm de NM

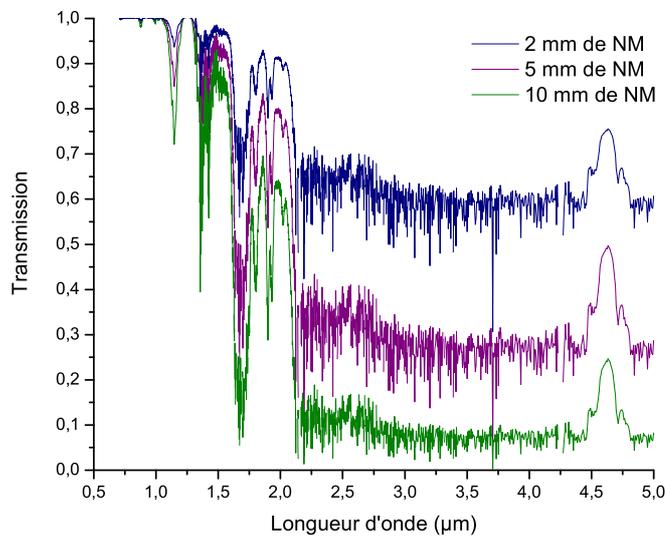


FIG. 8.23 - Transmission du NM pour des épaisseurs de 2, 5 et 10 mm

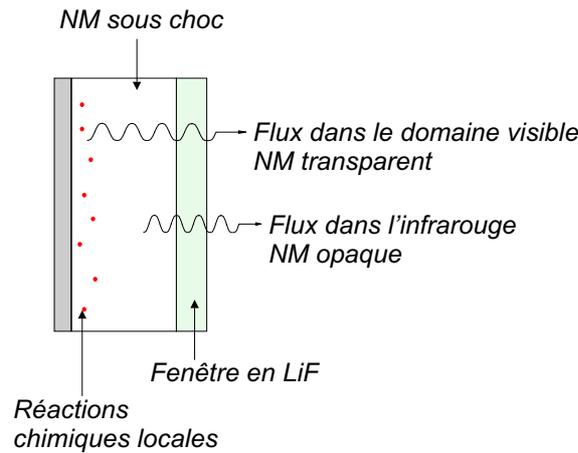


FIG. 8.24 - Provenance du flux suivant le domaine de longueurs d'onde

8.3.4 Modélisation du coefficient d'absorption

8.3.4.1 Modélisation du coefficient d'absorption des particules de carbone

Les particules de carbone qui se forment lors de la détonation d'explosifs se présentent sous la forme d'agglomérats ou *clusters* dont la taille (équivalente au diamètre des particules) a été estimée à 50 \AA [85]. Le paramètre de taille des particules de carbone, x , rapport entre la taille des particules et la longueur d'onde ($x = 2\pi a/\lambda$), est compris entre 0,02 et 0,04, valeurs prises entre 0,4 et $0,85 \mu\text{m}$. Par conséquent, le problème est décrit par la diffusion Rayleigh (voir figure 1.7 dans le chapitre 1). Par contre, la fraction volumique f_v du carbone, calculée à partir des résultats du code CHEETAH peut atteindre 9% dans les produits de réaction. Le régime de diffusion des particules de carbone est donc un régime de diffusion dépendante : à l'interaction du rayonnement avec les particules s'ajoutent les interactions entre particules, ce qui rend beaucoup plus complexe le traitement de la diffusion. De nombreux chercheurs ont traité la diffusion des particules de suies (particules de combustion) [2], particules différentes des clusters et en proportion différente.

Dans un premier temps, nous avons décidé de simplifier le problème en considérant un régime de diffusion sans interactions des clusters ; le problème peut être décrit par la diffusion Rayleigh.

Les facteurs d'efficacité d'absorption Q_{abs} et de diffusion Q_{sca} , définis dans le

chapitre 1, dans le cas de la diffusion Rayleigh sont [58]⁵ :

$$Q_{sca} = \frac{8}{3} \left| \frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right|^2 x^4 \quad (8.6)$$

$$Q_{abs} = -4\Im \left\{ \frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right\} x \quad (8.7)$$

Comme x est petit, x^4 est négligeable devant x . La diffusion peut donc être négligée devant l'absorption et le facteur d'efficacité d'extinction Q_{ext} est égal au facteur d'efficacité d'absorption Q_{abs} (cf relation 1.22). La diffusion des particules de carbone s'apparente à de l'absorption et le coefficient d'extinction monochromatique est donc égal au coefficient d'absorption monochromatique.

Le coefficient d'absorption monochromatique des particules d'indice de réfraction $\tilde{n} = n - i\chi$ s'écrit alors :

$$K_\lambda = -\Im \left\{ \frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right\} \frac{6\pi f_v}{\lambda} = \frac{36\pi n\chi}{(n^2 - \chi^2 + 2)^2 + 4n^2\chi^2} \frac{f_v}{\lambda} \quad (8.8)$$

Il ne dépend pas de la granulométrie (distribution de taille des particules) mais de leur fraction volumique. Si l'indice de réfraction des particules est constant, le coefficient d'absorption varie en $1/\lambda$.

Des études expérimentales conduisent à $K_\lambda = \frac{Cf_v}{\lambda^a}$, C et a étant des constantes empiriques [58, 73] et f_v la fraction volumique. Plusieurs valeurs de a ont été mesurées pour différentes flammes de combustion, valeurs comprises entre 0,7 et 2,2.

La variation de l'indice complexe des suies de combustion a été étudiée par plusieurs auteurs. Des résultats expérimentaux ont permis d'établir l'indice complexe de particules de suies d'origines variées (Fig. 8.25). Dans cette étude, nous prendrons un indice de réfraction complexe constant entre 0,3 et 1 μm ; les parties réelle et imaginaire n et k seront choisies d'après la courbe du carbone amorphe.

Le calcul du coefficient d'extinction (ou coefficient d'absorption) a été effectué par Lee et Tien [55] pour plusieurs tailles de particules sphériques et cylindriques (Fig. 8.26).

⁵ \Im : partie imaginaire

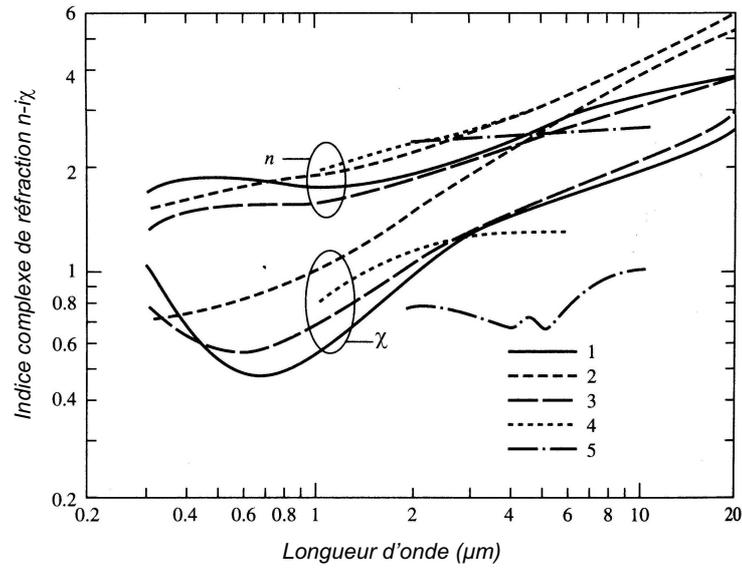


FIG. 8.25 - *Indice complexe de réfraction des particules de suies pour différentes études : 1 - Lee and Tien (polystyrène et plexiglas, 2 - Stull and Plass (carbone amorphe), 3 - Dalzell et Sarofm (propane), 4 - Howarth et. al (pyrographite à 300 K), 5 - Felske et. al (propane) [58]*

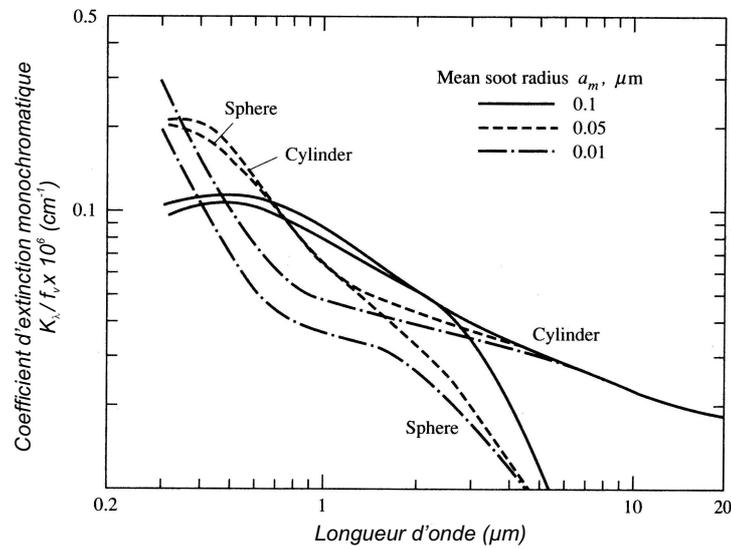


FIG. 8.26 - *Coefficient d'extinction pour des particules de carbone cylindriques et sphériques [58]*

Nous avons calculé K_λ avec les trois représentations citées précédemment, pour étudier la contribution des particules de carbone dans le rayonnement émis durant la TCD. L'indice complexe \tilde{n} est choisi égal à $1,8 - 0,9i$. La fraction volumique varie entre $6 \cdot 10^{-6}$ et $6 \cdot 10^{-2}$.

Les figures 8.27, 8.28 et 8.29 représentent respectivement le calcul de K_λ avec l'équation 8.8, le calcul de K_λ avec le modèle empirique $K_\lambda = \frac{C f_v}{\lambda^a}$, et le calcul de K_λ d'après les courbes de Lee et Tien en adaptant la fraction volumique.

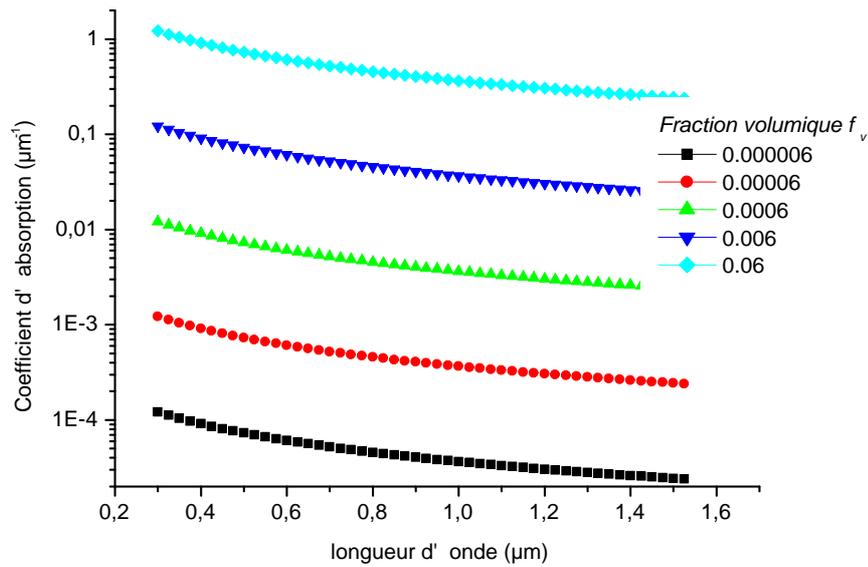


FIG. 8.27 - Coefficient d'absorption des particules de carbone dont la fraction volumique varie, d'après le modèle de Rayleigh

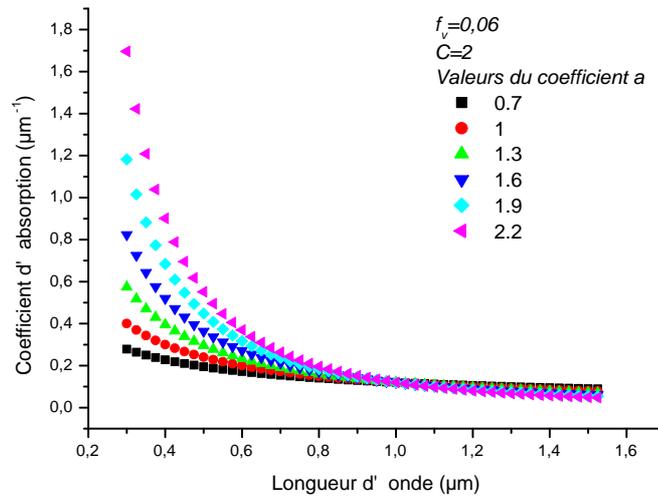


FIG. 8.28 - Coefficient d'absorption des particules de carbone d'après le modèle empirique $K_\lambda = \frac{Cf_v}{\lambda^a}$, $C = 2$, a varie

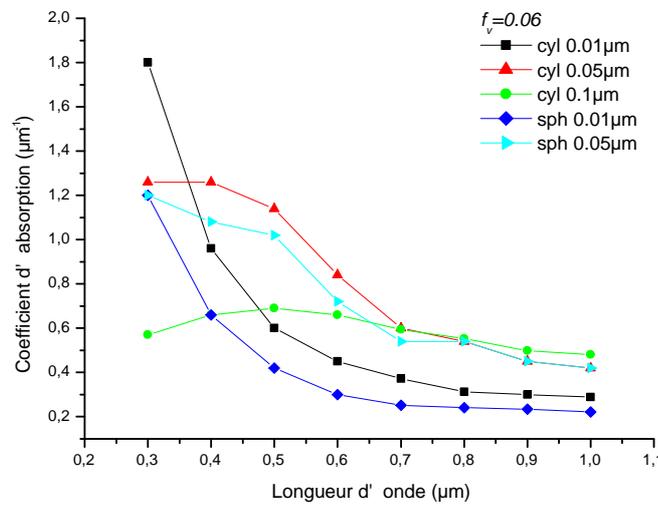


FIG. 8.29 - Coefficient d'absorption des particules de carbone cylindriques et sphériques de différents diamètres d'après les calculs de Lee et Tien, de fraction volumique 0.06

L'équation de transfert radiatif d'un milieu qui émet, absorbe et diffuse (équation 1.26), se ramène à celle d'un milieu homogène, où la diffusion est négligée (équation 1.18). Pour un milieu homogène de température constante à l'arrière d'une onde de détonation se propageant à vitesse constante dans le NM non choqué, transparent dans le domaine visible, l'ETR se simplifie (traité dans le paragraphe 8.3.3.1) et s'écrit :

$$L_\lambda(l) = L_\lambda^0(T) (1 - \exp(-K_\lambda x))$$

La figure 8.30 montre le calcul de la luminance mesurée à l'interaction de l'onde détonation avec la fenêtre, lorsque $x=25 \text{ mm}$, à la température 3600 K , en utilisant le coefficient d'absorption déduit du modèle de Rayleigh. Pour les fractions volumiques supérieures à 6.10^{-6} , la luminance est égale à la luminance du corps noir à 3600 K . Pour des valeurs de f_v trop élevées, le coefficient d'absorption des particules de carbone correspond donc à celui d'un corps noir. Les calculs des luminances avec les autres représentations conduisent au même résultat. Les mesures de spectroscopie ne correspondent pas à un corps noir. On en déduit que la fraction volumique de carbone dans le modèle est strictement inférieure à 6.10^{-5} .

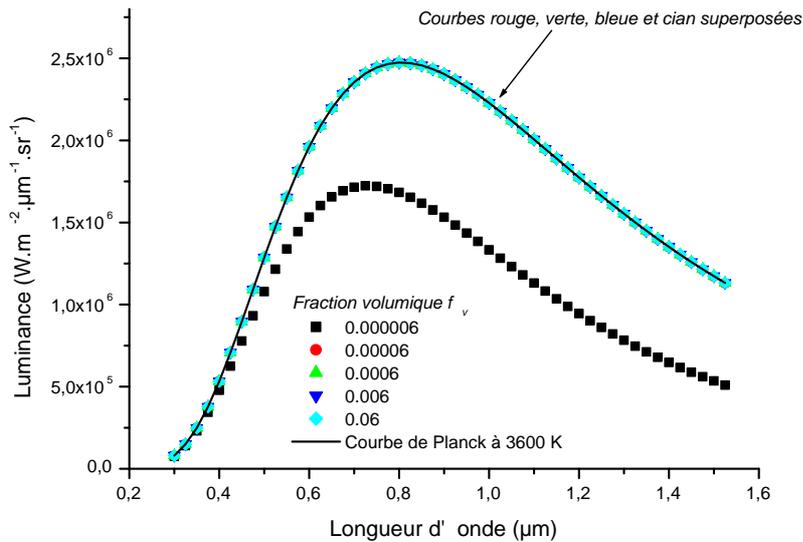


FIG. 8.30 - Luminances calculées avec le coefficient d'absorption des particules de carbone déduit du modèle de Rayleigh

8.3.4.2 Modélisation du coefficient d'absorption de la vapeur d'eau

Le calcul à partir de la base de données HITEMP du spectre d'émission de l'eau permet d'avoir une vue d'ensemble de la position des bandes d'absorption principales entre 0,6 et 0,9 μm . Certains ouvrages recensent précisément la position de ces bandes et la force de bande, I , caractérisée par l'intégrale de l'intensité sur la largeur de la bande.

Le tableau 8.2, extrait de [71], donne la position du centre des raies de l'eau dans le domaine visible et le proche-infrarouge, ainsi que la valeur de l'intensité ou force de bande I , à pression et température ambiantes. Dans cette étude, nous ne tenons compte que de ces bandes d'absorption et de la raie à 0,65 μm , moins intense (Fig. 8.11), non citée dans le tableau.

Nombre d'onde (cm^{-1})	Longueur d'onde (μm)	I (u.a.)
14319	0,698	0,2
13821	0,724	1,08
12151	0,823	0,93
11032	0,906	2,4
10613	0,942	10
10239	0,977	2,1

TAB. 8.2 - Positions et intensité des raies d'absorption de la vapeur d'eau dans le domaine visible-proche infrarouge

Il est nécessaire de choisir un modèle pour représenter le coefficient d'absorption de la vapeur d'eau en fonction de la longueur d'onde. Le modèle exponentiel large bande développé par Edwards *et al.*⁶ permet de modéliser les bandes d'absorption et de tenir compte qualitativement de l'élargissement des raies avec la pression et la température. Le coefficient d'absorption peut prendre trois formes qui sont représentées sur la figure 8.31. Les équations qui décrivent chaque forme sont :

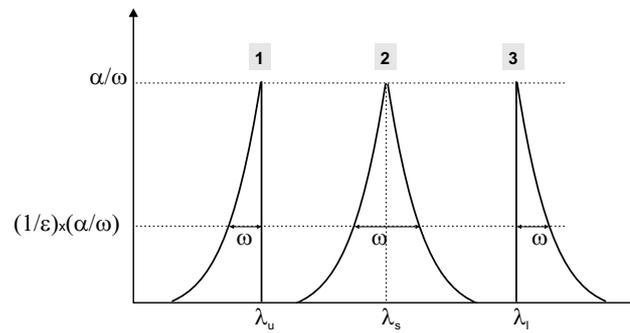
$$(1) \quad K_\lambda = \frac{\alpha}{\omega} e^{-(\lambda_u - \lambda)/\omega} \quad (8.9)$$

$$(2) \quad K_\lambda = \frac{\alpha}{\omega} e^{-2|\lambda_c - \lambda|/\omega} \quad (8.10)$$

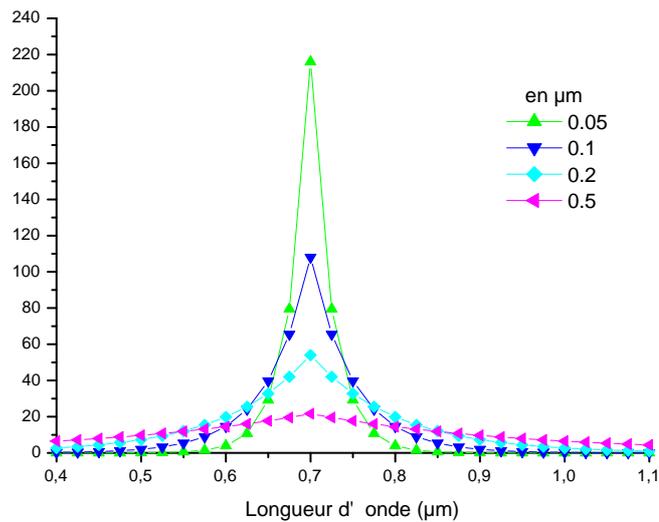
$$(3) \quad K_\lambda = \frac{\alpha}{\omega} e^{-(\lambda - \lambda_l)/\omega} \quad (8.11)$$

ω est le paramètre de largeur de bande à $1/e$ de l'intensité maximale et α l'aire définie par la courbe.

⁶Ce modèle a été choisi parmi plusieurs modèles large bande (*wide band*) et bande étroite (*narrow band*) présentés dans le chapitre 9 du livre de Modest [58]. Les références du modèle large bande de Edwards sont Edwards, D. K., W. A. Menard, *Applied Optics*, vol. 3, pp. 621-625, 1964 et Edwards, D. K., L. K. Glassen *et al.*, *ASME Journal of Heat Transfer*, vol. 89, pp. 219-229, 1967.

FIG. 8.31 - *Forme des bandes d'absorption du modèle exponentiel large bande*

La figure 8.32 montre l'influence de ω et de α sur la forme d'une bande d'absorption symétrique. Pour α fixé, l'élargissement de la bande provoque une diminution de l'intensité maximale de la raie. Pour ω fixé, α contrôle l'amplitude de la bande.

FIG. 8.32 - *Variation des paramètres du modèle exponentiel large bande pour une raie symétrique*

Chacune des bandes centrées sur les longueurs d'onde du tableau 8.2 peut être modélisée par l'équation 8.10. Le coefficient d'absorption de la vapeur d'eau K_{λ}^{eau} est égal à la somme des coefficients d'absorption de chaque bande spectrale, centrée

sur λ_i .

$$K_{\lambda}^{eau} = \sum_i K_{\lambda,i}^{eau} = \sum_i \frac{\alpha}{\omega} e^{-2|\lambda_i - \lambda|/\omega} \quad (8.12)$$

En première approximation, nous considérons que la largeur de bande ω est la même pour toutes les raies (bien qu'il y ait par exemple une différence d'un facteur 2 entre la largeur de la bande à $0,65 \mu m$ et celle à $0,82 \mu m$, voir figure 8.11). Le paramètre α est égal à $C.I$, avec C constante. L'intensité relative d'une raie par rapport à une autre est liée à la valeur de I .

Le calcul de K_{λ}^{eau} en fonction de la largeur de bande est présenté figure 8.33, pour les raies entre $0,65$ et $0,98 \mu m$ ⁷. Plus la largeur de bande augmente, plus le coefficient d'absorption est lissé et les raies sont donc de moins en moins distinctes. L'intensité de la raie à $0,65 \mu m$ est faible par rapport aux autres raies donc elle n'est pas présente sur les courbes. Par conséquent, il est peu probable que le très faible pic d'émission que nous avons enregistré (voir section 8.1) corresponde à l'émission de l'eau.

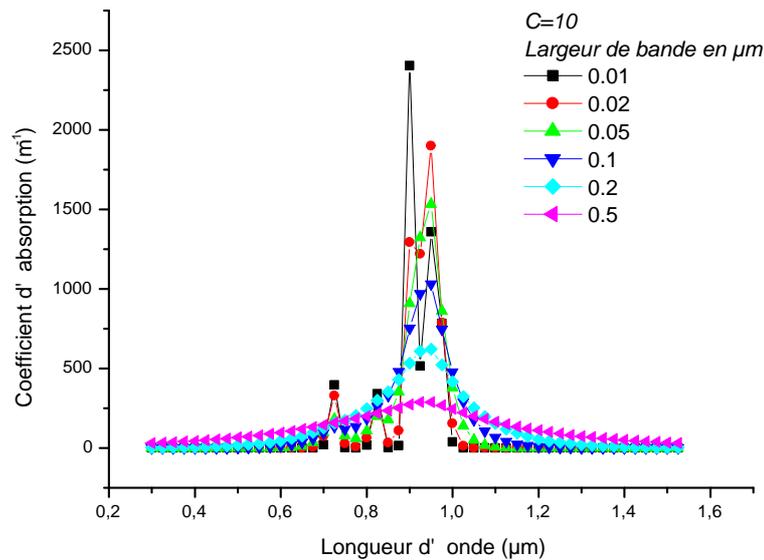


FIG. 8.33 - Calcul du coefficient d'absorption de l'eau avec les raies entre $0,65$ et $0,98 \mu m$

De même que précédemment, nous avons calculé la luminance qui serait émise par un milieu uniquement composé d'eau à l'arrière d'un front de détonation (Fig. 8.34).

⁷L'unité de K_{λ}^{eau} est ici en m^{-1} donc il faut diviser les valeurs par 10^6 pour pouvoir le comparer aux valeurs trouvées pour le carbone qui sont en μm^{-1} .

Pour les valeurs importantes de coefficients d'absorption, la luminance est égale à la luminance du corps noir à la même température. Si la valeur de C , qui contrôle l'intensité, augmente, les luminances se superposent davantage à la courbe de Planck et les raies ne sont plus distinctes (Fig. 8.35). Par contre, si elle diminue, les courbes calculées sont bien inférieures à la courbe de Planck (Fig. 8.36).

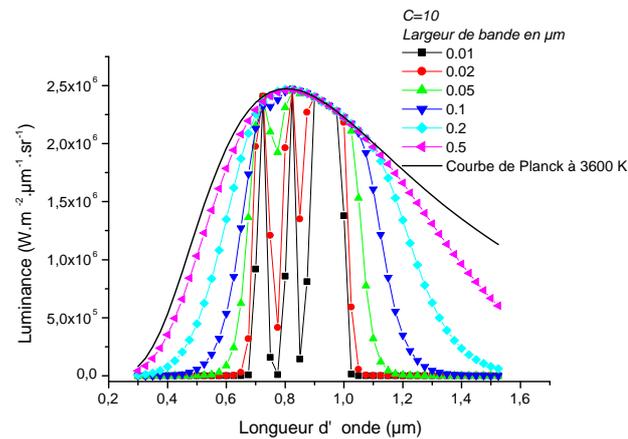


FIG. 8.34 - Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0,98 μm , $C = 10$

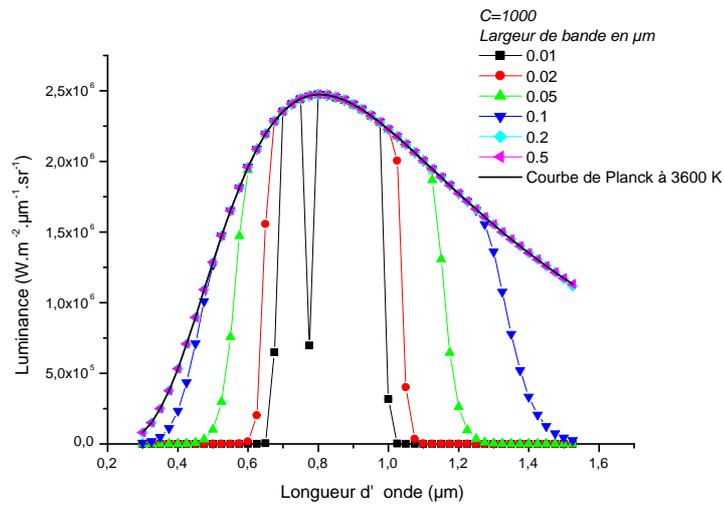


FIG. 8.35 - Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0,98 μm , $C = 1000$

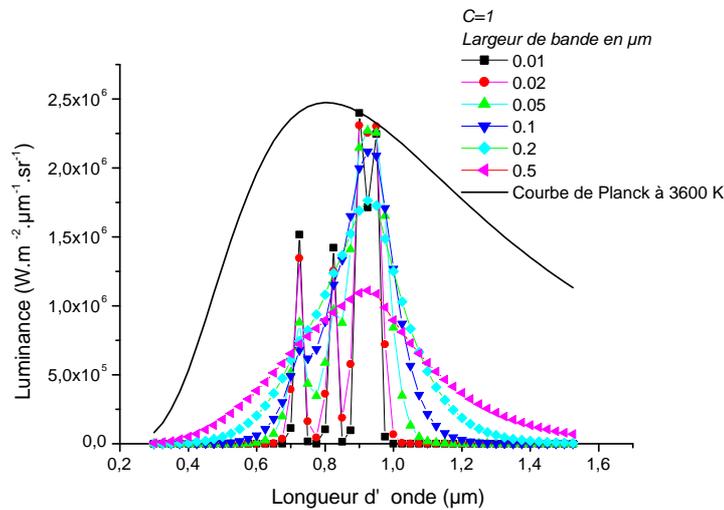


FIG. 8.36 - Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0,98 μm , $C = 1$

8.3.4.3 Synthèse

A l'issue des modélisations séparées du coefficient d'absorption du carbone et de celui de la vapeur d'eau, nous pouvons calculer la luminance d'un milieu constitué de vapeur d'eau et de particules de carbone en proportion f_v .

Le coefficient d'absorption du mélange est constitué d'un terme gazeux, K_λ^{eau} et d'un terme solide, K_λ^{carb} .

- si le coefficient d'absorption du carbone est très grand ($f_v > 6.10^{-6}$), les courbes de luminance seront bien sûr superposées à la courbe de Planck,
- s'il est faible ($f_v = 6.10^{-6}$), c'est le coefficient d'absorption de l'eau qui va définir l'allure du spectre de luminance (Fig. 8.37).

Le carbone en faible proportion va produire un spectre continu.

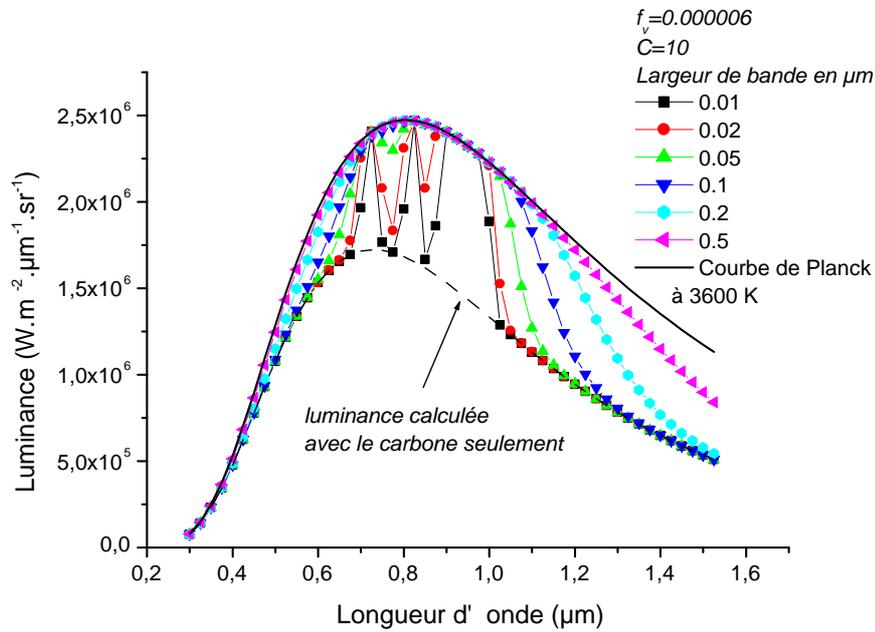


FIG. 8.37 - Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0,98 μm , $C = 10$ et le coefficient d'absorption du carbone selon le modèle de Rayleigh, $f_v = 6.10^{-6}$

Si nous représentons sur un même graphe les luminances calculées du mélange eau / particules de carbone et les courbes expérimentales, plusieurs observations sont possibles :

1. En détonation établie (Fig. 8.38), le calcul de la luminance est réalisé avec une température de 3600 K , égale à la température de luminance maximale déduite de nos mesures (essais réalisés avec la tête à doublets), une fraction volumique de 6.10^{-6} et une épaisseur de 17 mm . Les mesures de spectroscopie sont au-dessous des courbes synthétiques. La croissance du signal vers $0,8\ \mu\text{m}$ semble correspondre à une raie de l'eau. Pour les longueurs d'onde strictement supérieures à $0,8\ \mu\text{m}$, les luminances mesurées passent au-dessus des courbes calculées, ce qui correspond à une température de luminance plus élevée, égale à 4100 K pour la plus grande valeur. Si les mesures à ces longueurs d'onde sont fiables (ce dont on peut douter vu la réponse du système de spectroscopie à ces longueurs d'onde et vu la quantité de bruit), il est possible qu'il y ait une émission de rayonnement autre que thermique. Le faible pic d'émission à $0,65\ \mu\text{m}$ dont on pensait initialement qu'il pouvait correspondre à l'eau n'est pas présent. Il pourrait donc s'agir là aussi d'une émission non thermique.
2. Après la formation de la superdétonation, avant qu'elle rattrape le choc, la température de luminance maximale déterminée à partir de nos mesures de spectroscopie est égale à 3200 K . Les courbes synthétiques calculées avec cette température, pour une épaisseur des produits de réaction de 8 mm ne reproduisent pas les courbes expérimentales (Fig. 8.39). Les signaux sont encadrés par le modèle et la courbe de Planck mais, pour les longueurs d'onde supérieures ou égales à $0,75\ \mu\text{m}$, les mesures correspondent à des températures de luminance supérieures à 3200 K . Il se peut qu'il y ait comme en détonation des phénomènes autres que thermiques. Si nous utilisons au lieu de $T=3200\text{ K}$, la valeur déterminée par le calcul thermochimique CHEETAH, $T=3500\text{ K}$, les mesures ne sont pas non plus reproduites (Fig. 8.40).

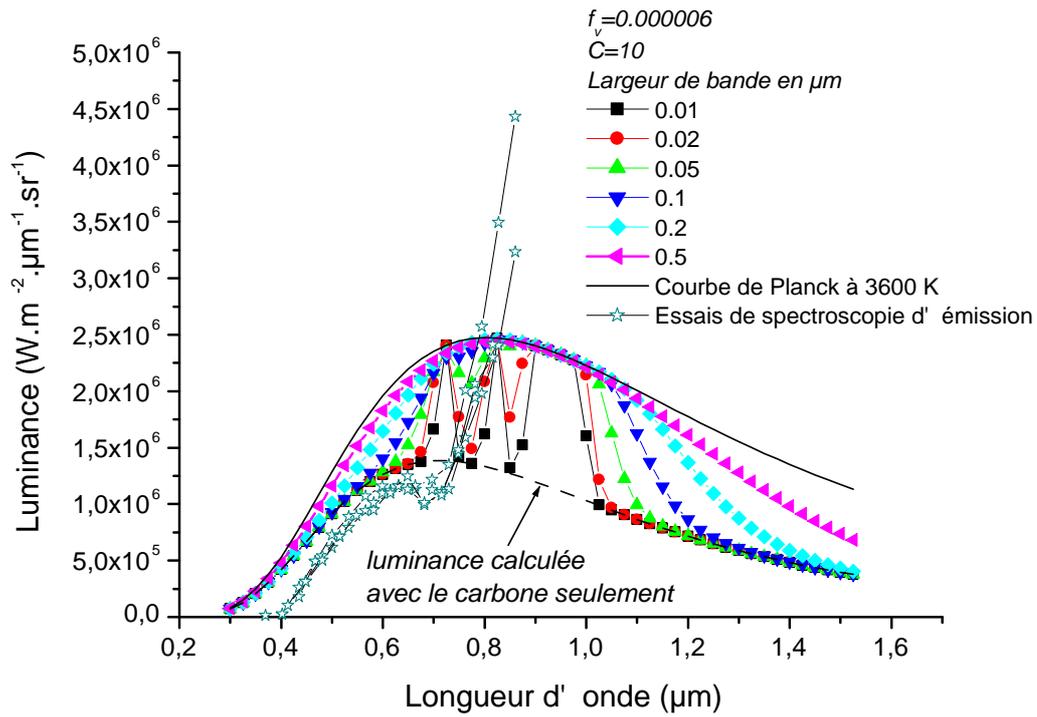


FIG. 8.38 - Comparaison des mesures de spectroscopie en détonation établie avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de détonation de 17 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T = 3600 \text{ K}$)

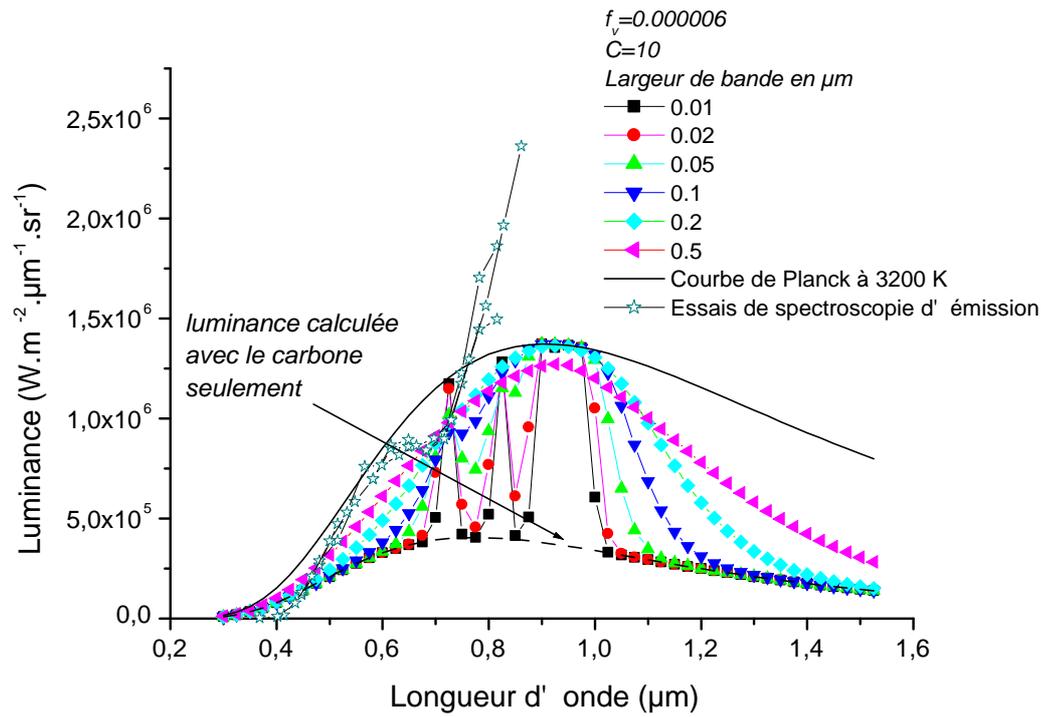


FIG. 8.39 - Comparaison des mesures de spectroscopie après la formation de la superdétonation avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de réaction de 8 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T = 3200 \text{ K}$)

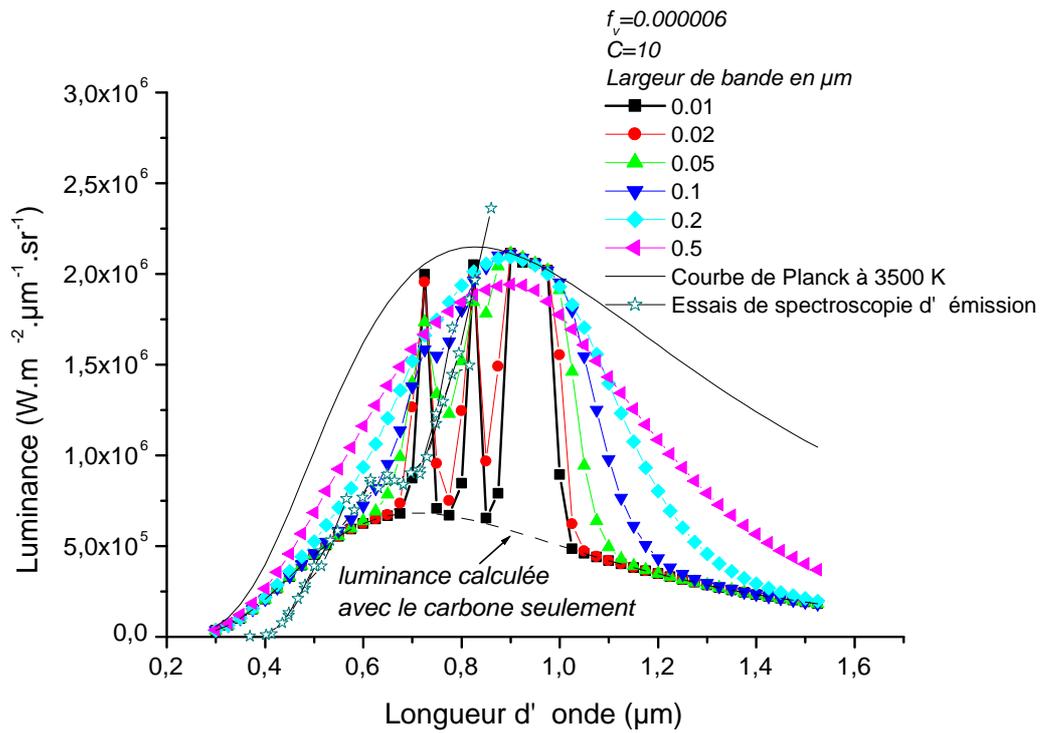


FIG. 8.40 - Comparaison des mesures de spectroscopie après la formation de la superdétonation avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de réaction de 8 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T = 3500$ K)

Il s'avère difficile de corréliser nos mesures de spectroscopie d'émission et le modèle d'émission d'un milieu constitué de vapeur d'eau et de particules de carbone. Aux courtes longueurs d'onde, les comportements des deux sont très proches.

- Le modèle est peut-être trop simple. Il est fort probable que le modèle de Rayleigh ne soit pas applicable. En effet, si la fraction volumique calculée par CHEETAH est juste, elle entraîne que le régime de diffusion est un régime de diffusion dépendante. Il faut alors tenir compte de l'interaction entre les particules de carbone. De plus, nous avons choisi un modèle très simple pour représenter les raies d'émission de la vapeur d'eau. Nous ne connaissons pas les variations de ce spectre entre l'état ambiant (qui a servi de base à notre modèle), et des états thermodynamiques à des pressions de quelques dizaines de GPa et quelques milliers de K , milieux rencontrés durant la TCD.
- L'incertitude sur la valeur de la fraction volumique de carbone est grande. Nous avons observé que lorsque la fraction volumique augmente à partir de $6 \cdot 10^{-6}$, le profil de luminance tend vers la luminance du corps noir à la même température, en commençant par les courtes longueurs d'onde. A partir d'une fraction volumique supérieure à $2 \cdot 10^{-5}$, les profils se superposent entre $0,3$ et $0,85 \mu m$. En détonation établie, les calculs thermochimiques conduisent à $f_v=6\%$: le modèle correspond donc à la courbe de Planck. L'équation de transfert radiatif d'un milieu homogène qui émet et qui absorbe n'est donc sûrement pas adaptée. Il faut tenir compte de la diffusion des particules en plus de l'absorption (forme complète de l'ETR, équation 1.26) et les calculs sont plus complexes.
- Il y a des phénomènes autres que thermiques, ce que Grudzkov a introduit en expliquant l'émission à $0,65 \mu m$ suite à la décomposition chimique du NM par la chimiluminescence de NO_2 . L'énergie interne atteinte sous choc est importante dans un matériau énergétique comme le NM. Elle peut conduire à la formation de radicaux dans un état excité, qui lors de leur désexcitation, émettent des photons. Le phénomène de fluorescence de NO_2 peut durer $44 \mu s$ [42]. Par conséquent, les mesures d'émission durant la transition choc détonation pourraient mesurer la chimiluminescence de NO_2 bien après sa formation lors de la décomposition de l'explosif. Cependant, la comparaison du spectre de luminance entre la détonation établie et après l'interaction avec la fenêtre a montré que l'allure des spectres était la même (Fig. 8.12). La décomposition du NM étant terminée, il n'y a plus de raison pour que la chimiluminescence de NO_2 , espèce minoritaire dans les produits, ait lieu. Par conséquent, il se peut que d'autres espèces aient une émission fluorescente, comme N_2 par exemple [33].

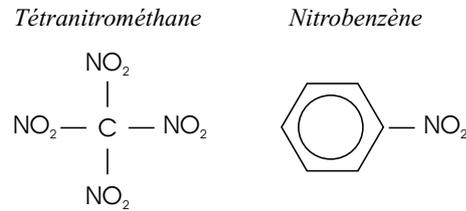
Le dioxyde d'azote a, dans le domaine visible, un nombre important de bandes d'absorption mal connues, chacune d'elle comportant un grand nombre de raies fines irrégulièrement espacées [42]. Il y a cependant une bande distincte

à 8370 Å et une bande moins précise entre 4542 et 4555 Å. Herzberg [42] cite plusieurs travaux qui ont porté sur la fluorescence et la chimie luminescence du NO_2 , qui ont conduit à l'observation de ces phénomènes entre 5000 et 6000 Å. Nous n'avons pu trouver à ce jour de données sur la chimiluminescence de NO_2 vers 0,8 μm .

Afin de mettre en évidence l'influence éventuelle du carbone sur le spectre de luminance mesuré, des essais sur d'autres liquides explosifs ont été envisagés. Nous avons étudié le mélange tétranitrométhane-nitrobenzène pour lequel le mélange stoechiométrique ne produit pas de carbone.

8.3.4.4 Essai d'impact plan sur un mélange tétranitrométhane - nitrobenzène

Les molécules de tétranitrométhane et de nitrobenzène se présentent sous la forme suivante :



Les spectres de transmission de ces deux produits n'ont pu être réalisés à cause de leur toxicité.

Le mélange 65% de tétranitrométhane, 35% de nitrobenzène a comme particularité l'absence de carbone dans les produits de réaction. Le calcul de la composition chimique des produits avec CHEETAH est récapitulé dans le tableau 8.3.

Etat (P, T, v)			Composition en moles/kg d'explosif				
P	T	v	CO_2	N_2	CO	H_2O	C
21,4	5177	0,512	10,5	8,42	6,93	5,596	0
9,3	4348	0,673	10,54	8,427	6,916	5,702	0
1,2	2962	1,48	10,8	8,456	6,682	5,551	0

TAB. 8.3 - Composition chimique des produits de réaction issus d'une détonation autonome stationnaire d'un mélange 65% tétranitrométhane 35% nitrobenzène, calculée avec CHEETAH et l'équation BKWC. P en GPa, T en K et v en cm^3/g .

Le mélange étant très explosif, la mise en oeuvre de sa détonation nécessite de grandes précautions et conditions de sécurité une fois les deux produits en contact.

Lors de cet essai, des aiguilles de chronométrie et un fluxmètre large bande ont été utilisés. La vitesse de l'onde de détonation ainsi déterminée est de 7312 m/s et la température de luminance mesurée par le fluxmètre est de 4300 K environ. La figure 8.41 représente les profils de luminance en fonction du temps pour toutes les voies de mesure du photomultiplicateur.

En représentant les spectres de luminance pour cet essai ainsi que les essais d'impact plan sur le NM, on obtient la figure 8.42 en détonation établie.

La température obtenue dans le mélange est supérieure à celle des produits de détonation du NM. Malgré cela, on trouve des signaux de luminance du même ordre de grandeur. Entre $0,4$ et $0,6\ \mu\text{m}$, l'intensité est légèrement supérieure à celle des essais sur le NM. Entre $0,6$ et $0,75\ \mu\text{m}$, il y a la même quantité de signal. Par contre, pour les longueurs d'onde plus élevées, l'augmentation de signal est plus rapide.

Si l'on considère que le pic d'émission vers $0,85\ \mu\text{m}$ correspond à l'eau présente dans les produits de détonation, la température plus élevée lors de la détonation du mélange et la pression vraisemblablement plus importante (la pression calculée par CHEETAH atteint $21,4\text{ GPa}$ en détonation), peuvent expliquer les luminances plus élevées. En effet, la pression et la température provoquent un élargissement des raies [69]. Par contre, on se serait attendu à ne pas avoir de signal émis dans ce domaine de longueurs d'onde à cause de l'absence théorique de carbone.

Des mesures de Zotov *et al.* sur le même mélange [88] ont conclu sur la transparence apparente des produits de détonation. Nos résultats font plutôt apparaître que les produits sont semi-transparents, étant donnés les niveaux d'intensité atteints.

Enfin, cet essai ne nous permet pas de conclure sur l'influence du carbone sur le spectre d'émission. Il est envisagé d'effectuer d'autres essais sur le mélange tétranitrométhane-nitrobenzène en faisant varier la proportion des deux liquides. Moins le nitrobenzène est dilué dans le tétranitrométhane, plus il y a de probabilité d'avoir du carbone dans les produits.

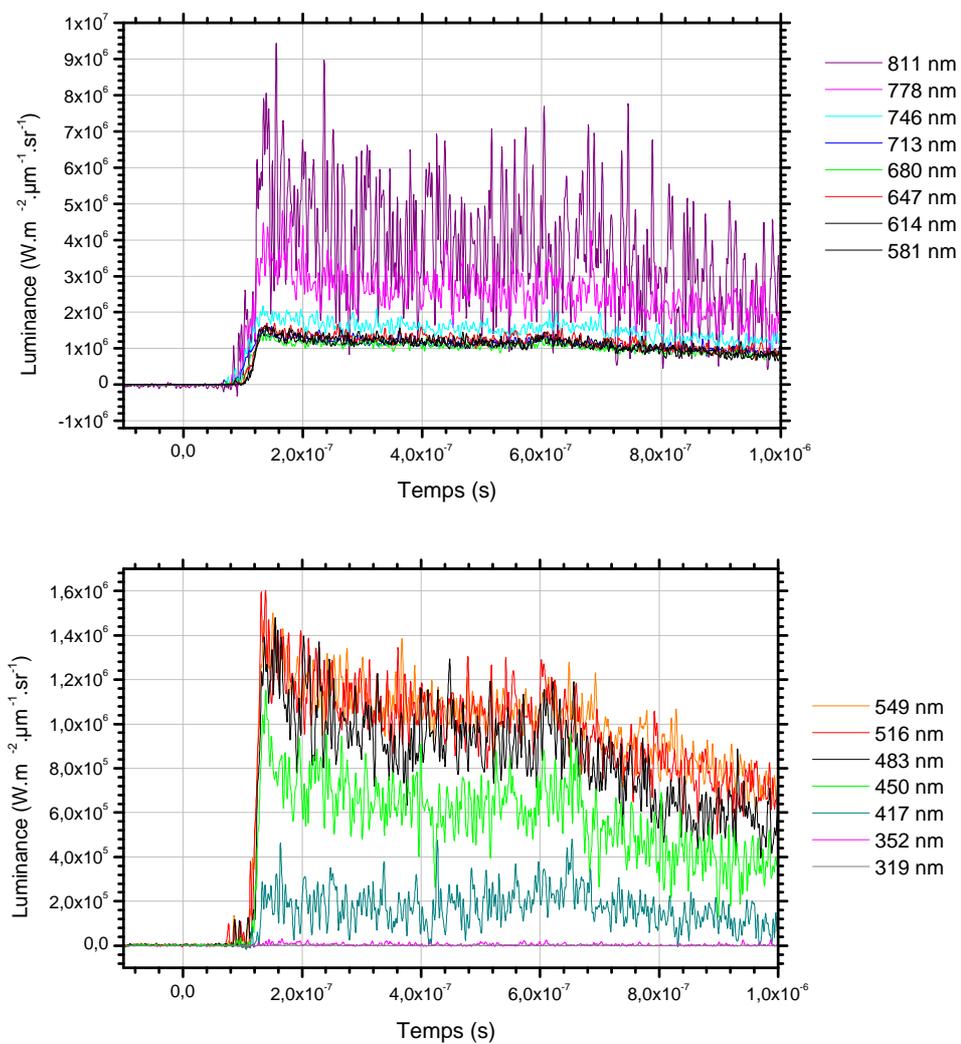


FIG. 8.41 - Profils de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors d'un tir sur une cible de 65% tétranitrométhane - 35% nitrobenzène de 4 mm d'épaisseur

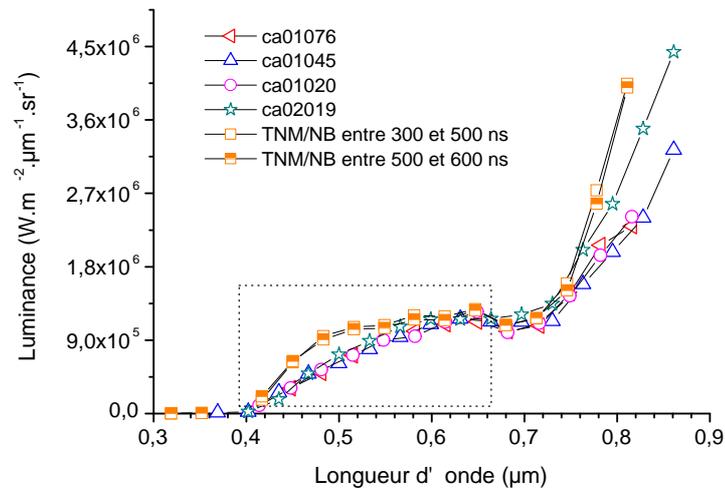


FIG. 8.42 - Comparaison des profils de luminance en fonction de la longueur d'onde en détonation établie lors d'essai sur le NM et le mélange 65% tétrani-trométhane - 35% nitrobenzène

8.4 Conclusion

Des mesures de spectroscopie d'émission dans le domaine 0,3-0,85 μm ont été réalisées lors de six essais d'impact plan à 8,6 GPa sur des cibles de 25 mm de NM. A chaque essai, 16 profils de luminance monochromatique sont enregistrés avec une résolution de 32 nm , chaque voie de mesure ayant une largeur spectrale de 26 nm . Les signaux obtenus sont reproductibles pour une même configuration de collecte de flux : les écarts sont inférieurs à 10%. L'écart entre les mesures avec une tête à doublets et une tête à miroirs est inférieur à 30% pour les longueurs d'onde supérieures à 0,7 μm et inférieur à 15% pour les longueurs d'onde inférieures.

L'étude temporelle des intensités émises met en évidence les phases de la TCD telles que décrites par Chaiken [17]. Le calcul de la température de luminance correspondante donne les valeurs de température minimale atteinte durant ces phases. Après l'entrée du choc, les fortes valeurs de température, de l'ordre de 2500 K , sont en accord avec les précédents travaux de pyrométrie. L'existence de réactions chimiques locales est donc possible.

L'analyse spectrale permet d'étudier l'évolution des caractéristiques optiques des milieux en présence lors de la TCD. Le NM qui a subi le choc reste transparent, les réactions chimiques locales ne provoquant qu'une élévation de température. Dès la formation de l'onde de superdétonation, des réactions chimiques provoquent l'appa-

rition d'une discontinuité dans le spectre d'intensité mesurée, discontinuité centrée à $0,7 \mu m$. L'étude des propriétés optiques des produits de réaction formés conduit à proposer qu'ils sont optiquement épais pour les longueurs d'ondes comprises entre $0,6$ et $0,85 \mu m$ et transparents pour les longueurs d'onde comprises entre $0,4$ et $0,6 \mu m$. Contrairement à l'interprétation de l'étude effectuée à 6 longueurs d'onde discrètes (pyrométrie) [50] qui concluaient sur une émissivité de surface et un comportement proche d'un corps noir à $3600 K$ de l'onde de détonation, nos mesures caractérisent un milieu semi-transparent dont le coefficient d'absorption est élevé mais qui ne correspond pas à un facteur de transmission nul. Les produits de détonation sont optiquement épais dans le domaine visible et le flux émis provient d'une couche de produits constante, d'épaisseur voisine de $5 mm$ à l'arrière du front de détonation.

Un modèle d'absorption a donc été étudié sur la base d'un mélange constitué de particules de carbone et de vapeur d'eau, seules espèces chimiques présentes qui absorbent dans le domaine visible. La comparaison du modèle proposé avec les mesures de spectroscopie aboutit à plusieurs conclusions :

- La diffusion des particules de carbone n'est pas négligeable et elle ne peut être représentée par un régime de diffusion Rayleigh indépendante. L'interaction des particules entre elles doit être prise en compte. De plus, il faut appliquer l'ETR complète qui tient compte de la diffusion du milieu, en plus de l'absorption et de l'émission.
- Des phénomènes d'émission autres que thermiques peuvent avoir lieu sous forme de chimiluminescence. L'équation de transfert radiatif utilisée pour le modèle n'exprime que des phénomènes d'émission thermique. L'explication de la chimiluminescence du dioxyde d'azote proposée par Gruzdkov [34] est à confirmer. De plus, l'étude de la fluorescence de N_2 et éventuellement du radical OH est à envisager.
- Une interrogation apparaît concernant la quantité de carbone dans les produits de réaction. En effet, le modèle proposé et l'essai sur un mélange tétranitrométhane/nitrobenzène ne certifient pas que la fraction volumique du carbone est comprise entre 6% à 9%, valeurs calculées par le code thermochimique CHEETAH pour les produits de détonation et de réaction.
- Le manque de données à hautes pressions et hautes températures est un problème majeur pour l'étude des caractéristiques optiques des milieux en détonation.

Quatrième partie

Détermination des profils de température

Introduction

La détermination des profils de température lors de la transition choc-détonation a fait l'objet d'une collaboration entre le LEEE/CEG et l'INRIA : le LEEE/CEG a présenté le problème physique à résoudre à l'INRIA qui a travaillé sur sa résolution mathématique. Il s'agissait de retrouver les profils de température à partir des 16 mesures spectrales de spectroscopie d'émission dans le domaine visible. Cette collaboration a conduit à l'élaboration d'un algorithme d'inversion de l'équation de transfert radiatif développé avec le logiciel MATLAB.

Dans le chapitre 9, après avoir expliqué quelles étaient les difficultés de l'inversion, liées en particulier à la méconnaissance du coefficient d'absorption, on explique la méthode mathématique qui est réalisée en deux étapes. La première consiste à effectuer l'analyse de sensibilité aux grandeurs température et coefficient d'absorption et la seconde, à minimiser un critère de moindres carrés. On termine par la présentation de différents cas simples de TCD à traiter avec la méthode inverse, qui permettront de valider la méthode.

Le chapitre 10 est consacré à l'analyse de sensibilité de chacun des cas présentés dans le chapitre précédent. Les différentes paramétrisations de la température et du coefficient d'absorption, paramétrisations fines et paramétrisations réduites, sont expliquées. On présente ensuite les résultats de l'analyse de sensibilité avec les paramétrisations les plus adaptées.

Les résultats obtenus par deux stratégies d'optimisation pour les différents cas sont expliqués dans le chapitre 11.



9 Méthode inverse pour la résolution de l'équation de transfert radiatif

9.1 Transfert radiatif appliqué à la TCD du NM

La section 1.3 décrivait l'ETR pour un volume de gaz homogène d'épaisseur donnée dont on rappelle ici l'expression 1.19 :

$$L_\lambda(x^*) = L_\lambda(x_0) \exp \left[- \int_{x_0}^{x^*} K_\lambda(x) dx \right] + \int_{x_0}^{x^*} K_\lambda(x') L_\lambda^0(T) \exp \left[- \int_{x'}^{x^*} K_\lambda(x) dx \right] dx' \quad (9.1)$$

avec les hypothèses suivantes :

- l'équilibre thermodynamique local est supposé atteint,
- l'effet de la diffusion des particules est négligé, c'est-à-dire qu'on considère un milieu gazeux avec des particules de carbone qui absorbe et émet uniquement,
- la propagation du rayonnement peut être considérée comme instantanée dans le cadre de notre étude.

La TCD du NM met en oeuvre plusieurs phénomènes qui font apparaître différents milieux au cours du temps. En reprenant les schémas 3.3 à 3.5 des différentes étapes de la TCD, on peut différencier quatre milieux liquides ou gazeux différents :

1. **le NM au repos, à l'état liquide**, dont le coefficient d'absorption K_λ^{NM} est connu.
2. **le NM choqué**, sous une pression de l'ordre de 10 *GPa* et une température de l'ordre de 1000 *K* dont le coefficient d'absorption K_λ^S n'est pas connu. Plusieurs auteurs [46, 50] ont considéré que l'absorption du NM choqué est la même que celle du NM pur et nous avons montré que le NM qui a subi le choc reste transparent (*cf* 8.3.3.3).
3. **les produits de réaction** qui apparaissent lors de l'explosion thermique et

durant la propagation de l'onde de superdétonation. La caractéristique optique du milieu, K_λ^{SD} , n'est pas connue.

4. **les produits de détonation**, qui ont également un coefficient d'absorption K_λ^D inconnu.

Les évolutions et la méconnaissance des milieux rencontrés et de leurs caractéristiques optiques rendent complexe la résolution de l'ETR : la température T dans l'ETR est successivement la température du NM sous choc, des produits de réaction et des produits de détonation. Il en est de même pour le coefficient d'absorption monochromatique K_λ .

Nous n'écrivons pas ici les différentes formes de l'ETR pour chaque étape de la TCD mais seulement pour la première étape, lorsque le choc se propage dans le NM (Fig. 9.1). Dans ce cas, la résolution de l'ETR par méthode inverse doit permettre de retrouver le profil de température dans le NM qui a subi le choc $T_S(t)$, ainsi que son coefficient d'absorption monochromatique K_λ^S .

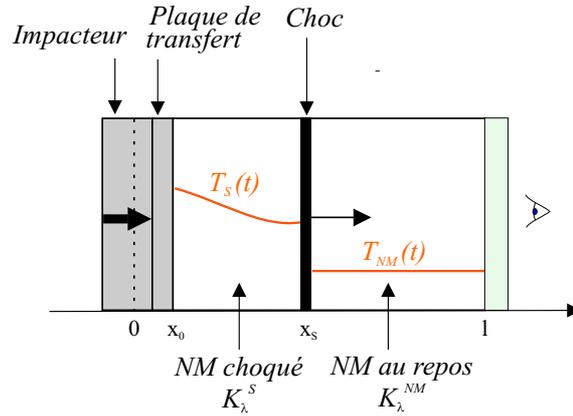


FIG. 9.1 - 1^{re} étape de la TCD : une onde de choc se propage dans le NM

$$L_\lambda(l) = L_\lambda^S(x_s) \exp \left[- \int_{x_s}^l K_\lambda^{NM}(x) dx \right] + \int_{x_s}^l K_\lambda^{NM}(x') L_\lambda^0(T_{NM}) \exp \left[- \int_{x'}^l K_\lambda^{NM}(x) dx \right] dx' \quad (9.2)$$

$$\text{avec } L_\lambda^S(x_s) = L_\lambda(x_0) \exp \left[- \int_{x_0}^{x_s} K_\lambda^S(x) dx \right] + \int_{x_0}^{x_s} K_\lambda^S(x') L_\lambda^0(T_S) \exp \left[- \int_{x'}^{x_s} K_\lambda^S(x) dx \right] dx' \quad (9.3)$$

$L_\lambda(x_0)$ représente l'émission du fond de la cellule, qui correspond ici à la plaque de transfert en cuivre. Nous avons montré dans la section 8.1.2 qu'elle pouvait être négligée devant l'émission de l'explosif sous choc.

Plusieurs approches de la résolution de l'ETR étaient possibles :

- la première consistait à diviser le problème en trois cas correspondant chacun aux trois phases de la TCD, l'entrée du choc, la formation de l'onde de superdétonation, la formation de l'onde de détonation,
- la seconde est une approche globale du problème, qui prend en compte les évolutions du milieu entre l'entrée du choc et l'interaction avec la fenêtre. C'est cette deuxième approche que nous avons choisie car elle n'est pas basée sur la théorie de la TCD telle que décrite par Chaiken. L'existence de la formation de la superdétonation n'est pas explicite et **nous ne voulons pas supposer le mécanisme de transition choc-détonation que nous cherchons à analyser.**

9.2 Résolution du problème inverse

La méthodologie a été développée par G. Chavent et F. Clément de l'équipe de recherche Estime à l'INRIA.

Les difficultés du problème de la résolution de l'ETR appliquée à la TCD du NM peuvent être résumées par les interrogations suivantes :

- quelle quantité d'information les mesures de luminance contiennent-elles sur le coefficient d'absorption $K_\lambda(x, t)$ et la température $T(x, t)$ qui sont les deux grandeurs recherchées ?
- quelle paramétrisation de K_λ et T choisir pour l'inversion ?

Il s'agit de trouver un compromis entre une paramétrisation «riche» (appelée par la suite paramétrisation fine) qui faciliterait l'interprétation physique des résultats mais qui risquerait de conduire à un problème d'inversion possédant plusieurs interprétations physiques possibles, et une paramétrisation «pauvre» avec moins de paramètres (appelée par la suite paramétrisation réduite) qui favoriserait l'unicité et la stabilité des résultats.

La méthodologie proposée est en deux étapes. La première étape est une analyse de sensibilité aux paramètres et la détermination d'indicateurs permettant de guider le choix des paramètres à estimer. La deuxième étape est la mise en oeuvre de l'identification (la minimisation étant obtenue par un algorithme des moindres carrés). Nous présentons ici la méthodologie de manière générale. Le détail de l'élaboration a été rédigé par G. Chavent et F. Clément dans un rapport [18].

9.2.1 Mise en équation du transfert radiatif

Soient $j = 1, \dots, N_j$ l'indice de longueur d'onde, $k = 1, \dots, N_k$ l'indice de temps, $i = 1, \dots, N_i$ l'indice d'espace. Il y a 16 longueurs d'onde pour les mesures de spectroscopie d'émission dans le domaine visible. Le pas de temps est de 20 ns, ce qui entraîne $N_k=200$ lorsque la durée est de 4 μs . Le pas d'espace est de 0,125 mm ce qui donne $N_i=200$ avec une cellule de 25 mm de profondeur.

Soient les longueurs d'onde $\lambda = \lambda_j$, les profils de température $T = (T^{k,i})$ et de coefficient d'absorption monochromatique $K = (K_j^{k,i})$, les luminances $L^{cal} = (L_j^{cal,k})$, solutions de l'équation du transfert radiatif.

L'ETR est résolue de façon exacte sur chaque maille avec le schéma numérique suivant :

Pour tout i, j et k :

$$\begin{aligned} L_j^{k,0} &= 0 \\ L_{0j}^{k,i} &= \frac{C_1}{\lambda_j^5 \left(\exp\left(\frac{C_2}{\lambda_j T^{k,i}}\right) - 1 \right)} \\ L_j^{k,i} &= L_{0j}^{k,i} + \exp\left(-\Delta x^k K_j^{k,i}\right) \left(L_j^{k,i-1} - L_{0j}^{k,i} \right) \\ L_j^{cal,k} &= L_j^{k,N_i} \end{aligned} \quad (9.4)$$

avec $\Delta x^k = (x_{N_i} - x_0^k) / N_i$ et $x_0^k = V_P \tau^k$.

La première équation du système est la condition aux limites représentant l'émission du fond qui est négligeable.

La seconde équation est le calcul de la luminance du corps noir.

La troisième équation représente l'ETR.

Enfin, la dernière équation indique que la luminance à l'extrémité de la cellule, à l'interface explosif/fenêtre d'observation correspond à la luminance qui est mesurée.

La forme intégrale de l'ETR est plus stable numériquement que la forme dérivée (équation 1.18) pour les valeurs de K_λ grandes. L'étude du coefficient d'absorption monochromatique dans la section 8.3.3 a montré que les produits de réaction formés pouvaient absorber le rayonnement à certaines longueurs d'onde.

9.2.2 Analyse de sensibilité

L'analyse de sensibilité a un rôle essentiel dans la mise en place du problème inverse. L'objectif est de choisir une représentation paramétrique optimale des quantités physiques non mesurées directement : coefficient d'absorption et température.

Elle consiste à estimer pour une méthode expérimentale et un niveau de bruit donnés, le nombre maximal de paramètres indépendants que l'on pourra obtenir de façon stable par identification.

Le problème peut être mis sous la forme d'une application φ que l'on cherche à inverser :

$$\varphi : \Theta^{fin} \longmapsto L^{cal} \quad (9.5)$$

Θ^{fin} est le vecteur des coefficients inconnus représentant de manière très générale la température et le coefficient d'absorption. Sa dimension est $npar^{fin}$.

La sensibilité de chaque mesure par rapport à chacun des paramètres de Θ^{fin} est donnée par la matrice jacobienne (ou matrice des sensibilités) de l'application φ , notée $\varphi' = \frac{dL^{cal}}{d\Theta^{fin}}$. Le nombre maximal de paramètres indépendants $npar_{est}^{fin}$ est obtenu à l'aide des valeurs singulières de φ' ¹.

Une différence de taille importante entre le nombre de paramètres indépendants $npar_{est}^{fin}$ et le nombre de paramètres recherchés $npar^{fin}$ ($npar_{est}^{fin} \ll npar^{fin}$) aura pour conséquence l'impossibilité d'estimer T et K_λ en fonction de la position x et du temps t , à partir des mesures disponibles, sans information a priori supplémentaire.

Les différents types de paramétrisations seront présentés dans le chapitre 10.

9.2.3 Optimisation-Inversion

L'objectif de cette étape est de mettre en oeuvre un algorithme de moindres carrés pour estimer le vecteur Θ^{opt} des paramètres d'optimisation choisis à l'issue de l'analyse de sensibilité. La méthode des moindres carrés consiste à minimiser le critère J évaluant l'écart entre les luminances mesurées et les luminances calculées avec l'ETR. Il est égal à :

$$J(L^{cal}) = \frac{1}{2} \sum_{k,j} \left(\frac{L_j^{mes,k} - L_j^{cal,k}}{\sigma_j^k} \right)^2 \quad (9.6)$$

avec

$$\sigma_j^k = L_j^{mes,k} \epsilon_j^{mes} + \sigma_j^{bruit} \quad (9.7)$$

ϵ_j^{mes} et σ_j^{bruit} sont respectivement l'erreur relative de mesure et le niveau de bruit. Une distribution normale du bruit est choisie. Ce sera le critère normalisé qui sera utilisé pour l'inversion, à savoir :

$$j(L^{cal}) = \frac{j(L^{cal})}{J(0)} \quad (9.8)$$

Ce qui permet de définir le pourcentage de mesures expliquées par :

$$P(L^{cal}) = 100 \left(1 - \sqrt{j(L^{cal})} \right) \quad (9.9)$$

¹La recherche des valeurs singulières est une généralisation de la recherche des vecteurs propres lorsque la matrice est rectangulaire. La décroissance des valeurs singulières permet alors d'estimer le nombre maximum de paramètres indépendants en fonction du niveau de bruit sur les données [53].

Afin d'intégrer le critère des moindres carrés à la routine `lsqcurvefit` (méthode de type Gauss-Newton) du logiciel MATLAB pour la norme euclidienne, il suffit de normaliser les luminances par un poids intégrant l'incertitude de mesure et le niveau de bruit. Ce poids s'exprime par :

$$W_j^k = \frac{1}{\sigma_j^k} \frac{1}{\left(\frac{1}{2} \sum_{k,j} \left(\frac{L_j^{mes,k}}{\sigma_j^k} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}}}, \quad k = 1, \dots, N_k, \quad j = 1, \dots, N_j \quad (9.10)$$

Les luminances normalisées sont ainsi calculées :

$$l^{cal} = W L^{cal} \quad (9.11)$$

La dimension de la luminance normalisée l^{cal} est $N_k N_j$.

L'étude des luminances normalisées permet de voir quelles sont les mesures qui apportent le plus d'information. Par exemple, en simulant la luminance émise par une détonation autonome stationnaire soutenue (c'est un des cas qui sera traité par la suite, cf 9.3.1), nous observons que les voies les plus bruitées ont les valeurs de luminances normalisées les plus faibles (Fig. 9.2 et 9.3). Ces voies correspondent aux deux voies toujours plus bruitées lors des mesures de spectroscopie d'émission, pour les longueurs d'onde supérieures à $0,8 \mu m$. Par conséquent, les mesures à ces deux longueurs d'onde apporteront peu d'information pour l'inversion.

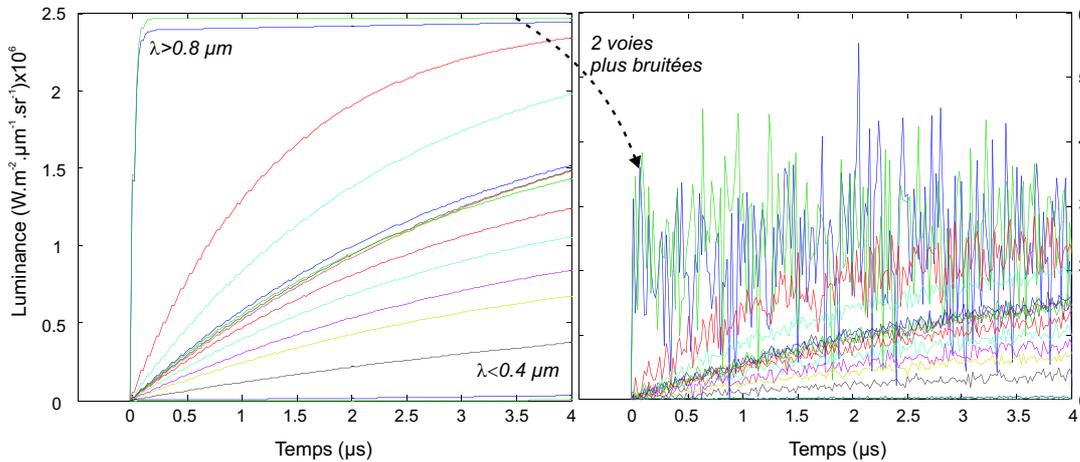


FIG. 9.2 - Profils de luminance non bruités et bruités calculés dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue pour 16 longueurs d'onde

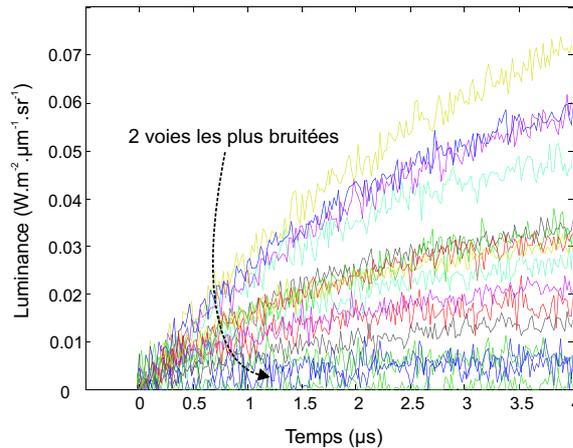


FIG. 9.3 - Profils de luminance monochromatique *normalisée* calculés dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue pour 16 longueurs d'onde

9.3 Présentation des cas simples à résoudre

Avant de traiter le cas expérimental de la TCD du NM, nous traitons des cas dits «simples» afin de réduire le nombre d'inconnues. L'inversion se fera sur des profils de luminance synthétique, calculés à partir de profils de température donnés (c'est le problème direct). Il est nécessaire pour ces calculs d'utiliser un modèle pour le coefficient d'absorption monochromatique. Ce modèle s'appuie sur l'allure du coefficient d'absorption monochromatique déterminé dans le paragraphe 8.3.3.1. Trois cas sont étudiés.

9.3.1 Détonation autonome stationnaire soutenue

Le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue par un piston est intéressant dans un premier temps car le nombre d'inconnues est restreint. C'est ce cas qui a été traité pour l'étude du coefficient d'absorption dans la partie précédente (paragraphe 8.3.3.1).

Le profil de température théorique est un créneau de température (Fig. 9.4) : à l'avant du front de l'onde de détonation, le NM se trouve au repos, à T_0 . A l'arrière du front, les produits issus de la détonation du NM sont à l'état idéal CJ (Chapman-Jouguet), à la température T_{CJ} .

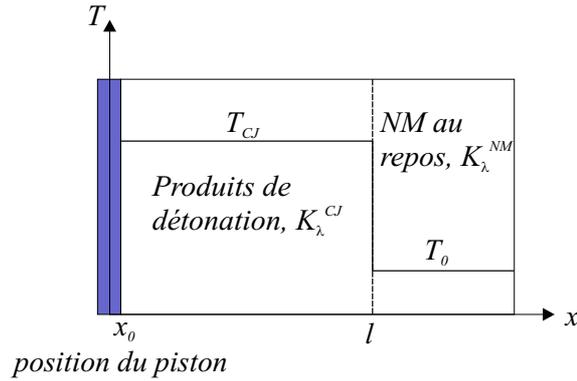


FIG. 9.4 - Profils de température dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue

9.3.2 Détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation

Le profil de température théorique est une discontinuité de température suivie d'une décroissance due à une détente (Fig. 9.5). La température diminue de T_{CJ} jusqu'à une température constante T_P , imposée par la vitesse du piston. Dans l'approximation polytropique pour les produits de détonation, le profil de la détente évolue au cours de la propagation de l'onde de détonation suivant la relation :

$$\frac{T}{T_{CJ}} = \left(\frac{(\gamma - 1) \frac{x}{D} + 1}{\gamma} \right)^2 = \left(\frac{\rho}{\rho_{CJ}} \right)^{\frac{2}{\gamma-1}}, \quad t = \frac{x_D}{D} \quad (9.12)$$

La courbure de la détente et la largeur de la détente varient avec la propagation du front.

9.3.3 Cas simplifié d'une superdétonation

La différence avec le cas précédent est une discontinuité liée au choc à l'avant de l'onde de détonation (Fig. 9.6). Le choc crée une discontinuité de température et impose un état constant T_S derrière son front. Une seconde discontinuité correspond à l'apparition de la superdétonation. Le profil à l'arrière de cette discontinuité est le profil du cas 2.

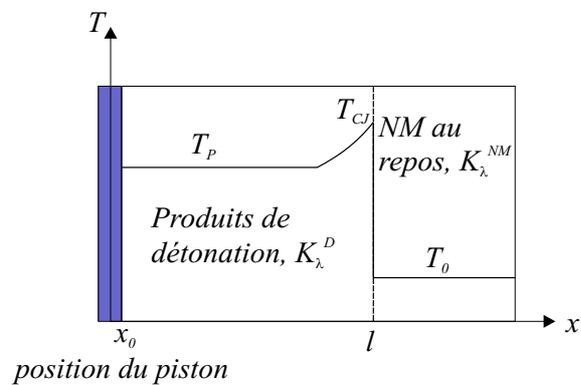


FIG. 9.5 - Profils de température dans le cas d'une détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation

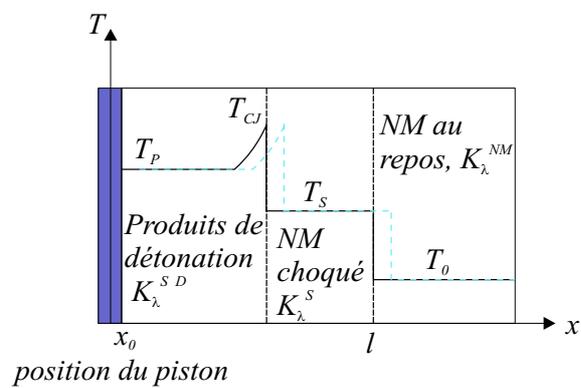


FIG. 9.6 - Profils de température dans le cas simple d'une superdétonation

10 Analyse de sensibilité

10.1 Paramétrisation

10.1.1 Représentations fines des grandeurs T et K normalisées

Etant données des valeurs de référence T_{ref} et K_{ref} , la température et le coefficient d'absorption sont évalués à partir des valeurs normalisées t et k par :

$$\begin{aligned} T &= T_{ref}t \\ et \\ K &= K_{ref}k \end{aligned} \tag{10.1}$$

La paramétrisation fine de T et K consiste à déterminer des valeurs $t^{k,i}$ et $k_j^{k,i}$ pour chaque i, j, k .

Cette paramétrisation n'impose aucune contrainte à la température et au coefficient d'absorption. Elle entraîne donc des problèmes théoriques, à savoir la présence possible de nombreux minima locaux, et pratiques, car les dimensions des matrices sont conséquentes : pour T , dimension de 40000 environ (dimension espace \times dimension temps) et pour K , 700000 environ (dimension espace \times dimension temps \times dimension longueur d'onde).

10.1.2 Paramétrisations réduites du coefficient d'absorption

La paramétrisation réduite consiste à rajouter des informations a priori, en imposant des contraintes à la température et au coefficient d'absorption.

Afin de pallier à la méconnaissance des différents coefficients d'absorption, l'INRIA suppose que le coefficient d'absorption à chaque instant et à chaque position dans la cellule $K_\lambda(x, t)$ est une fonction de la température $T(x, t)$ et de la longueur d'onde λ , ce qui permet de ne pas traiter les différentes phases de la TCD séparément. Le problème se réduit à une seule inconnue pour le coefficient d'absorption, le changement de milieu étant lié au changement de la température ($K_\lambda(T(x, t))$). Nous reviendrons sur cette description à la fin de ce paragraphe.

Nous avons fourni à l'INRIA une table de coefficients d'absorption monochromatiques normalisés $\hat{k} = (\hat{k}_j^l)$ pour différentes températures $\hat{t} = (\hat{t}^l)$, rangées par ordre croissant, table déduite des résultats expérimentaux (Fig. 8.18) et qui va constituer une grille (Fig.10.1). $j = 1, \dots, N_j$ est l'indice de longueur d'onde, $k = 1, \dots, N_k$ l'indice de temps, $i = 1, \dots, N_i$ l'indice d'espace et $l = 1, \dots, N_l$ l'indice de noeuds d'interpolation.

La paramétrisation réduite consiste à exprimer le coefficient d'absorption normalisé $k = (k_j^{k,i})$ à partir de $t = (t^{k,i})$ par interpolation linéaire aux noeuds \hat{t} de la grille ¹.

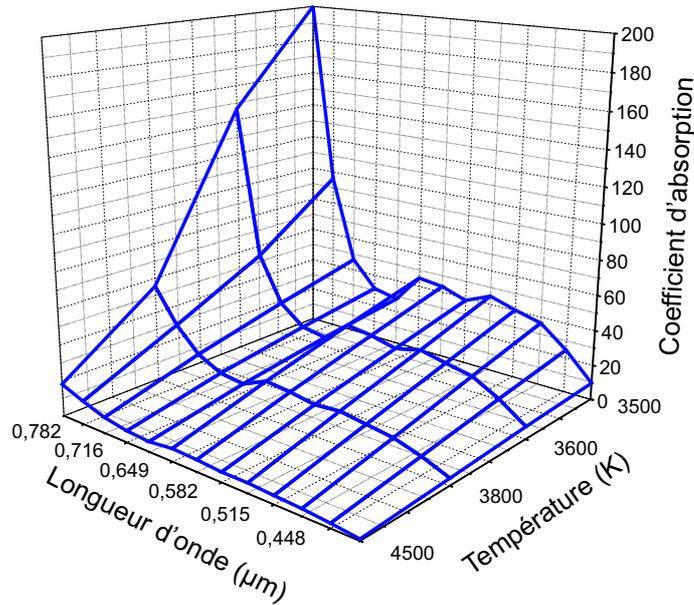


FIG. 10.1 - Grille des coefficients d'absorption normalisés fournie

On distingue trois niveaux de paramétrisation réduite :

- *Paramétrisation complète*

Toutes les valeurs aux noeuds de la grille \hat{k}_j^l sont supposées indépendantes. La grille peut se déformer.

¹L'interpolation linéaire est telle que, si $t^{k,i} \in [\hat{t}^l, \hat{t}^{l+1}]$:

$$k_j^{k,i} = \hat{k}_j^l + \left(\hat{k}_j^{l+1} - \hat{k}_j^l \right) \frac{t^{k,i} - \hat{t}^l}{\hat{t}^{l+1} - \hat{t}^l} \quad (10.2)$$

En dehors de l'intervalle $[\hat{t}^0, \hat{t}^{N_l}]$, les valeurs de k sont extrapolées aux valeurs aux bornes. Par hypothèse, \hat{t}^0 est la température au repos. Par conséquent, les valeurs \hat{k}_j^0 sont connues.

- *Paramétrisation par produit tensoriel*

Le coefficient d'absorption s'exprime comme étant le produit d'une fonction de λ et d'une fonction de T . Seules les valeurs sur les axes (bords de la grille) sont considérées indépendantes. Le nombre de paramètres est réduit.

- *Paramétrisation scalaire*

La forme sur les axes est imposée. Seule l'amplitude varie ce qui équivaut à une translation de la grille suivant l'axe vertical (Fig.10.1).

La différence entre la paramétrisation fine et la paramétrisation réduite est le nombre de paramètres mais aussi l'intégration d'informations. Les paramètres de la paramétrisation réduite sont moins nombreux mais chacun des paramètres contient plus d'informations que le même nombre de paramètres de la paramétrisation fine.

Le choix d'exprimer le coefficient d'absorption comme une grandeur qui ne dépend que de la température, elle-même fonction de la position et du temps, et de la longueur d'onde entraîne un problème dans l'interpolation. En effet, le schéma choisi relie alors le coefficient d'absorption monochromatique du NM à l'état au repos, au coefficient d'absorption des produits de réaction à une température bien supérieure, de l'ordre de 3500 °C (tracé 1, Fig. 10.2).

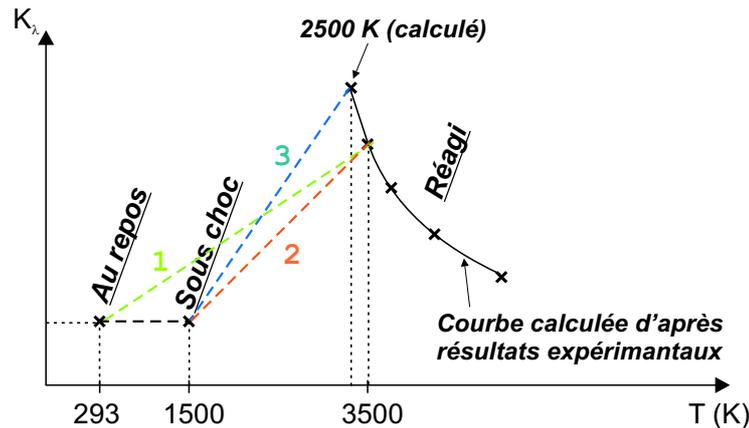


FIG. 10.2 - Résultat de l'interpolation des valeurs du coefficient d'absorption monochromatique en fonction de la température

Le coefficient d'absorption des produits de réaction en fonction de la température correspond à l'allure du coefficient d'absorption déterminée dans le paragraphe 8.3.3.1. Une précision est apportée qui prend en compte le coefficient d'absorption du NM choqué, égal à celui du NM au repos. La température maximum sous choc est choisie à 1500 K. L'interpolation est représentée ainsi par le tracé 2 sur la figure 10.2. Afin d'avoir plus d'informations entre ces deux points, un point à 2500 K a été calculé pour les produits de réaction (tracé 3). Il est peu probable que la variation du coefficient entre les deux points $T = 1500 K$ et $T = 2500 K$ soit linéaire mais

aucune donnée physique n'est disponible à ce jour. Il semble difficile de modifier la paramétrisation mais ayant connaissance de ce problème, il faudra en tenir compte dans l'exploitation des résultats.

L'erreur relative entre les différentes paramétrisations et la table fournie a été étudiée. A titre d'exemple, elle est inférieure à 2,5 % pour l'estimation par produit tensoriel des moyennes (Fig. 10.3).

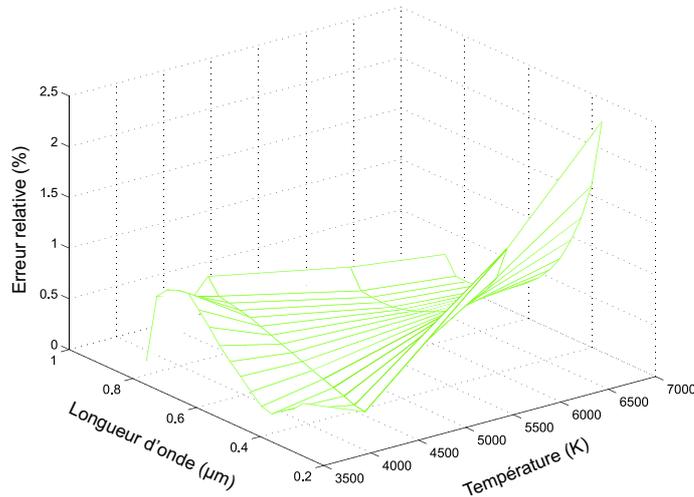


FIG. 10.3 - Erreur relative entre la table fournie et l'estimation par produit tensoriel des moyennes

10.1.3 Paramétrisations réduites de la température

D'après les cas présentés précédemment, les profils de température sont solutions de l'équation hyperbolique non-linéaire suivante ² :

$$\begin{aligned}
 T &= h_t(m_t) \\
 T(x, t = 0) &= T_0 \\
 T(x = 0, t) &= T_g \\
 \frac{\partial T}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} (f(T)) &= g(T) \\
 m_t &= (T_0, T_g, f, g)
 \end{aligned} \tag{10.3}$$

m_t représente les paramètres pour la température, T_0 est la température initiale (ou température du NM au repos), T_g est la température à gauche, à l'interface plaque de transfert, f et g sont des fonctions.

g , terme source, contrôle l'amplitude du profil de température. La fonction f définit les déplacements selon x . Par exemple, si la fonction f est linéaire, on observe une diffusion du front au cours du temps.

Une paramétrisation spécifique à chaque cas est nécessaire. Le tableau 10.1 recense le nombre de paramètres pour chaque cas. Les cas sont nommés cas 1, 2 et 3 correspondant respectivement au cas de la détonation autonome stationnaire soutenue, au cas de la détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation et au cas simplifié d'une superdétonation.

²Le schéma numérique de la paramétrisation réduite de T est le suivant :

$$\begin{aligned}
 t^{1,i} &= t_1^i, i = 1, \dots, N_i \\
 t^{k,1} &= t_g^k, k = 2, \dots, N_k \\
 t^{k,i} &= t^{k-1,i} + \Delta\tau^{k-\frac{1}{2}} \left[g(t^{k-1,i}) - \frac{f(t^{k-1,i}) - f(t^{k-1,i-1})}{\Delta x^{k-1}} \right] \\
 & \quad i = 2, \dots, N_i, k = 2, \dots, N_k
 \end{aligned}$$

$t_1 = (t_1^i)$, condition initiale, $t_g = (t_g^k)$, condition à gauche, g et f sont des fonctions. Suivant la forme approchée de t_1 , t_g , g , f , les profils des différents cas peuvent être reproduits de façon approchée.

$g(t^{k-1,i})$ est le terme source et $\frac{f(t^{k-1,i}) - f(t^{k-1,i-1})}{\Delta x^{k-1}}$, le terme de transport.

Cas	m_t	Description des paramètres
Cas 1	1	T_{CJ}
Cas 2	3	T_{CJ}, T_P , détente
Cas 3	5	T_{CJ}, T_P, T_S , détente, vitesse de l'onde de détonation

TAB. 10.1 - *Nombres de paramètres pour la paramétrisation réduite de la température*

10.2 Résultats de l'analyse de sensibilité pour les différents cas

L'INRIA a procédé à la décomposition en valeurs singulières de la matrice jacobienne $\frac{dL^{cal}}{d\Theta^{fin}}$ pour les sept paramétrisations suivantes :

- paramétrisation fine de T et paramétrisation fine de K ,
- paramétrisation fine de T et paramétrisation complète de K ,
- paramétrisation fine de T et paramétrisation par produit tensoriel de K ,
- paramétrisation fine de T et paramétrisation scalaire de K ,
- paramétrisation réduite de T et paramétrisation complète de K ,
- paramétrisation réduite de T et paramétrisation par produit tensoriel de K ,
- paramétrisation réduite de T et paramétrisation scalaire de K .

Pour les paramétrisations fines de T et K , la dimension est conséquente ($N_k = 400$, $N_i = 100$, $N_j = 16$) et le temps de calcul de la décomposition « explose ». Les résultats ne semblent pas être fiables pour les cas limites des possibilités de MATLAB. Pour tous les cas avec la paramétrisation fine de la température, seules quelques valeurs singulières sont évaluées par une méthode itérative. Par contre, pour les paramétrisations réduites, la dimension reste raisonnable (de quelques dizaines à quelques unités suivant le cas) et toutes les valeurs singulières peuvent être déterminées.

La décroissance des valeurs singulières est représentée sur les figures 10.4 et 10.5 en échelle logarithmique pour les cas 1, 2 et 3. Les valeurs singulières sont normalisées par la première. Le niveau de bruit peut être représenté par une droite horizontale. Pour un niveau de bruit donné, le nombre de valeurs singulières supérieures à ce bruit indique le nombre maximal de paramètres identifiables.

Dans tous les cas, les luminances mesurées contiennent relativement beaucoup d'informations sur les paramètres recherchés car les 20 premières valeurs singulières de la paramétrisation fine sont presque toutes identiques (courbes noires près de l'axe supérieur des abscisses).

Dans le cas 1 (Fig. 10.4), la comparaison des paramétrisations complètes (courbes bleue et ciel) et par produit tensoriel (courbes verte et jaune) du coefficient d'absorption montre que les premières valeurs singulières sont les mêmes ; donc la paramétri-

sation par produit tensoriel (moins de paramètres) est judicieuse. On détermine 16 valeurs singulières pour un total de 20 paramètres initiaux alors que dans le cas de la paramétrisation complète, on en détermine 20 pour un total de 100 paramètres. Si nous comparons, pour une paramétrisation du coefficient d'absorption donnée, la paramétrisation fine et la paramétrisation réduite de la température, il y a peu de différences entre les courbes, sauf pour la paramétrisation scalaire du coefficient d'absorption. On perd donc très peu d'information lorsque le nombre de paramètres est réduit. La température a donc très peu de paramètres indépendants et la paramétrisation fine n'est pas utile. De même pour le coefficient d'absorption, car il dépend de la température.

Cette analyse de sensibilité montre que pour la résolution du cas 1, il n'est pas nécessaire de choisir une paramétrisation fine. La paramétrisation réduite de T et la paramétrisation par produit tensoriel de K semblent un bon compromis.

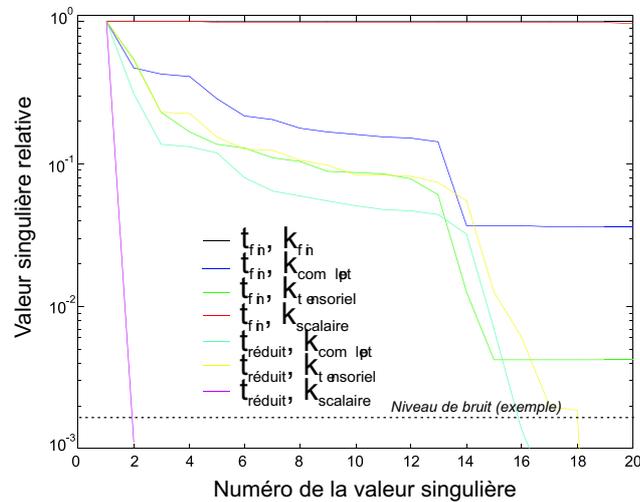


FIG. 10.4 - Valeurs singulières pour les différentes paramétrisations dans le cas 1

Pour les cas 2 et 3, les résultats de l'analyse de sensibilité sont semblables (Fig. 10.5). Les valeurs singulières de la paramétrisation fine de T avec les paramétrisations fine (courbe noire), complète (courbe bleue) et scalaire (courbe rouge) de K sont superposées. Comme dans le cas 1, il y a peu de différence entre les paramétrisations fine et réduite de T pour la paramétrisation par produit tensoriel de K (courbes verte et jaune). La paramétrisation fine n'étant pas envisageable à cause de la dimension trop importante du vecteur des paramètres, seule la paramétrisation réduite de T sera étudiée. Les résultats montrent que cette paramétrisation associée aux différentes paramétrisations réduites du coefficient d'absorption apporte suffisamment d'information pour espérer pouvoir résoudre l'inversion de l'ETR.

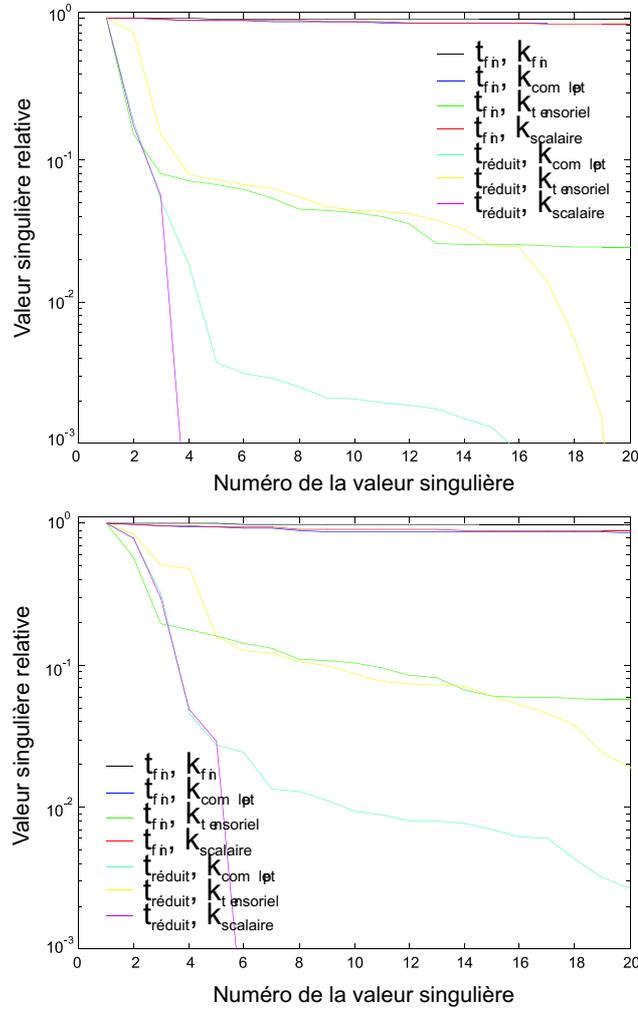


FIG. 10.5 - Valeurs singulières pour les différentes paramétrisations dans le cas 2 (en haut) et le cas 3 (en bas)

11 Optimisation

11.1 Tracés du critère des moindres carrés

L'analyse de sensibilité est une analyse locale, réalisée autour du point que l'on souhaite inverser. Elle repose sur une linéarisation du problème. Elle ne renseigne donc que sur le comportement local de l'ETR. En aucun cas une bonne sensibilité ne garantit cependant que l'on puisse trouver la solution du critère des moindres carrés J sans rencontrer de minimum local. La non-linéarité du problème ne peut être appréhendée que par la mise en oeuvre de l'algorithme de minimisation. Néanmoins, un premier indicateur de la non-linéarité est le tracé du critère des moindres carrés sur un segment reliant un point initial à la solution.

Nous donnons un exemple du tracé du critère pour le cas 1. La figure 11.1 représente les tracés du critère normalisé $j(L^{cal})$ pour deux segments rejoignant deux points initiaux X_0 à la solution X_1 , pour trois couples de paramétrisation de la température et du coefficient d'absorption. La vraie valeur de température est $3600 K$. Les deux points initiaux sont $3850 K$ (Fig. 11.1, graphe du haut) et $4500 K$ (Fig. 11.1, graphe du bas). Pour le premier point initial, il ne semble pas y avoir de minimum local. Par conséquent, l'inversion devrait permettre de retrouver facilement la solution. Par contre, avec le second point initial, il y a des minima locaux qui devraient poser plus de difficultés pour l'optimisation du critère. En ajoutant du bruit, les courbes sont seulement translatées. Les valeurs du critère normalisé j sont donc plus élevées.

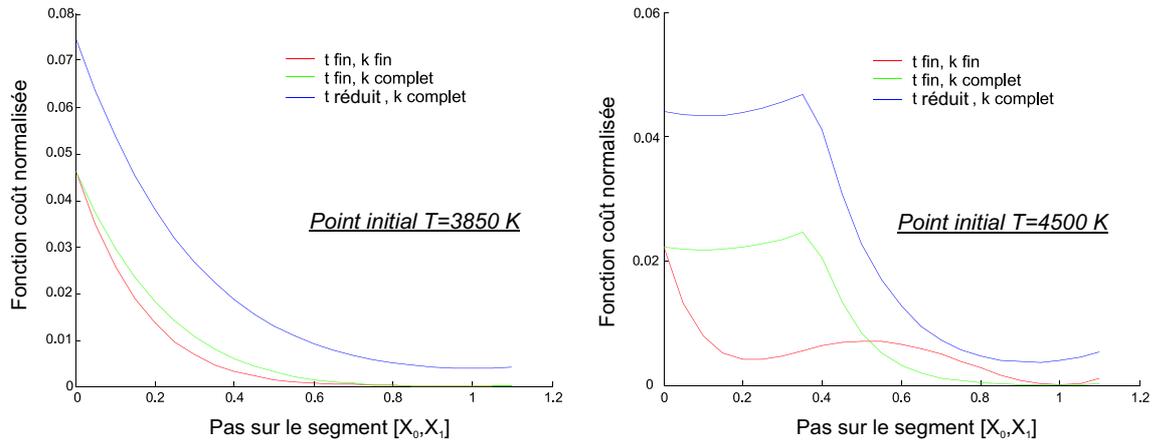


FIG. 11.1 - Tracés de la fonction coût normalisée $j(L^{cal})$ sur un segment ayant servi à calculer les mesures dans le cas 1 avec un point initial de 3850 K (en haut) et un point initial de 4500 K (en bas)

11.2 Résultats de l'inversion de l'ETR

11.2.1 Stratégies d'optimisation de la fonction coût

C'est la paramétrisation réduite de la température qui est choisie puisque l'analyse de sensibilité a montré qu'elle était suffisante. Deux stratégies sont utilisées compte tenu des paramétrisations réduites du coefficient d'absorption (Fig. 11.2) :

- une stratégie dite «directe» qui utilise la paramétrisation complète du coefficient d'absorption, et qui détermine donc tous les noeuds de la grille,
- une stratégie dite «hiérarchique» qui consiste à ouvrir progressivement les degrés de libertés des noeuds de la grille. Elle débute par la paramétrisation scalaire (l'amplitude de la grille varie). Le résultat de l'optimisation est utilisé comme point initial de l'optimisation avec la paramétrisation par produit tensoriel. La nouvelle solution est alors utilisée pour l'optimisation avec la paramétrisation complète. Les trois niveaux sont appelés h1, h2 et h3.

Le diagramme 11.3 récapitule les étapes de la résolution.

Pour la validation de la méthode inverse, les profils de luminance synthétique à inverser sont calculés avec l'ETR à partir de profils de température et de coefficients d'absorption connus. En utilisant un point initial (T, K_λ) , une stratégie d'optimisation, et après minimisation du critère $j(L_{cal})$, la solution est obtenue et comparée aux profils de départ.

Nous présentons les résultats d'inversion pour chacun des cas.

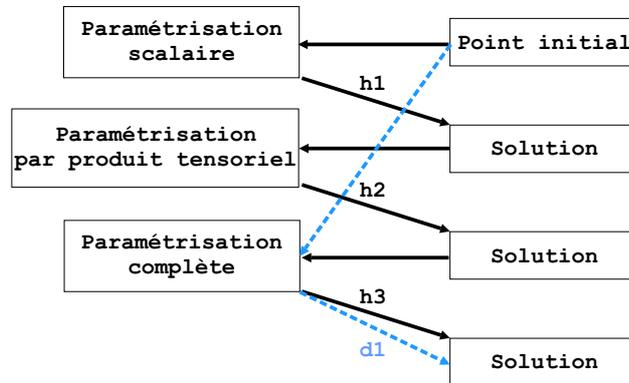


FIG. 11.2 - Diagramme des stratégies d'optimisation directe (d1) et hiérarchique (h1-2-3)

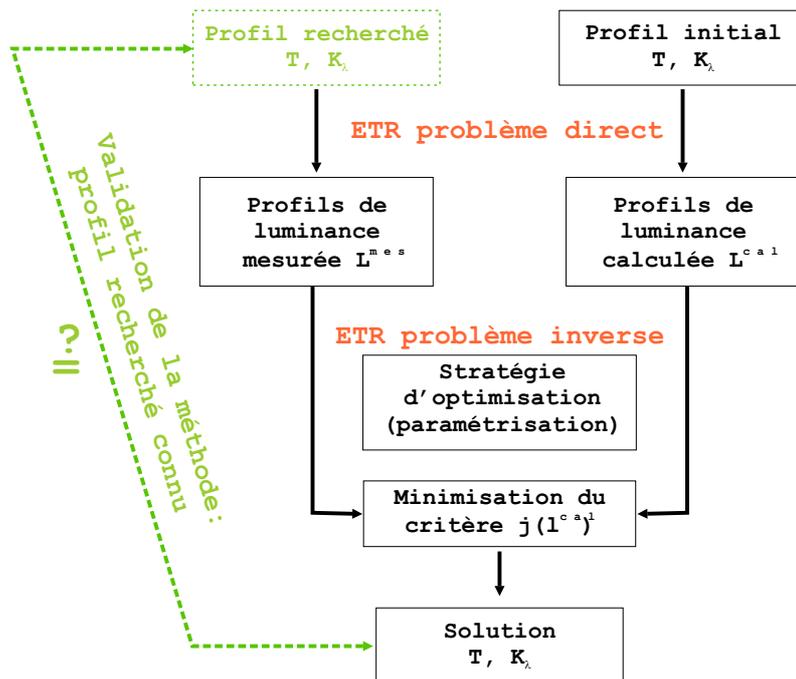


FIG. 11.3 - Diagramme des étapes de la résolution inverse

11.2.2 Résultats d'inversion pour le cas 1

La figure 11.4 donne les profils de température et de coefficient d'absorption recherchés à plusieurs instants, la valeur du profil de température étant de 3600 K.

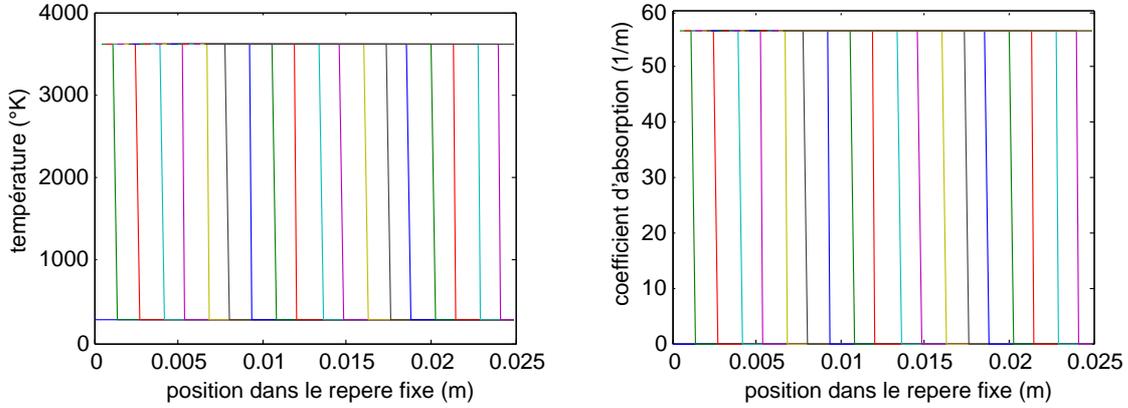


FIG. 11.4 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption recherchés en fonction du temps dans le cas 1, $T=3600K$

Les résultats des deux stratégies d'optimisation sont regroupés dans le tableau 11.1, pour deux points initiaux (T , K_λ). Seule la valeur de T est donnée dans ce tableau. Le pourcentage indiqué correspond au pourcentage de mesures expliquées $P(L_{cal})$. Plus il est élevé, plus le critère j est réduit.

Stratégie	Point initial		Solution	
	T (K)	$P(L_{cal})$ (%)	T (K)	$P(L_{cal})$ (%)
d1	3000	49	3592	99
h1	3000	49	3601	83
h2	3601	83	3601	98
h3	3601	98	3600	99
d1	4500	49	3599	99
h1	4500	-172	3782	84
h2	3782	84	3600	99
h3	3600	99	3599	99

TAB. 11.1 - Résultats de l'inversion dans le cas 1

Le pourcentage de mesures expliquées tient compte à la fois de la température et du coefficient d'absorption. Si la température est bien égale à la valeur recherchée et que $P(L_{cal})$ est égal à 99 %, c'est que le coefficient d'absorption n'est pas retrouvé exactement. Mais un pourcentage de 99% de mesures expliquées est très acceptable.

Les figures 11.5, 11.6 et 11.7 représentent respectivement les profils de température, les profils de coefficient d'absorption pour une longueur d'onde donnée et la grille de coefficients d'absorption pour le point initial à 3000 K et pour les résultats de la stratégie directe et hiérarchique (la grille de coefficients d'absorption est tracée à titre d'information). Le profil recherché est bien retrouvé donc la méthode est validée pour le cas 1. Les pics obtenus pour certains profils du coefficient d'absorption obtenus par l'optimisation hiérarchiques sont liés à l'interpolation des noeuds de la grille du coefficient d'absorption. Avec un point initial plus éloigné de la solution, par exemple $T = 4500K$, l'inversion retrouve également les profils recherchés.

L'inversion de profils de luminance bruités a également été réalisée. Les résultats sont présentés dans le tableau 11.2. Le pourcentage de mesures expliquées est de l'ordre de 92 %, ce qui s'explique par le bruit.

Stratégie	Point initial		Solution	
	T (K)	$P(L_{cal})$ (%)	T (K)	$P(L_{cal})$ (%)
d1	3000	49.2	3601	92.1
h1	3000	49.2	3843	85
h2	3843	85	3640	91.5
h3	3640	91.5	3604	92

TAB. 11.2 - Résultats de l'inversion de profils bruités dans le cas 1

L'inversion est donc satisfaisante pour la recherche d'un profil de température constante, avec une seule discontinuité, représentatif d'une détonation autonome stationnaire et soutenue.

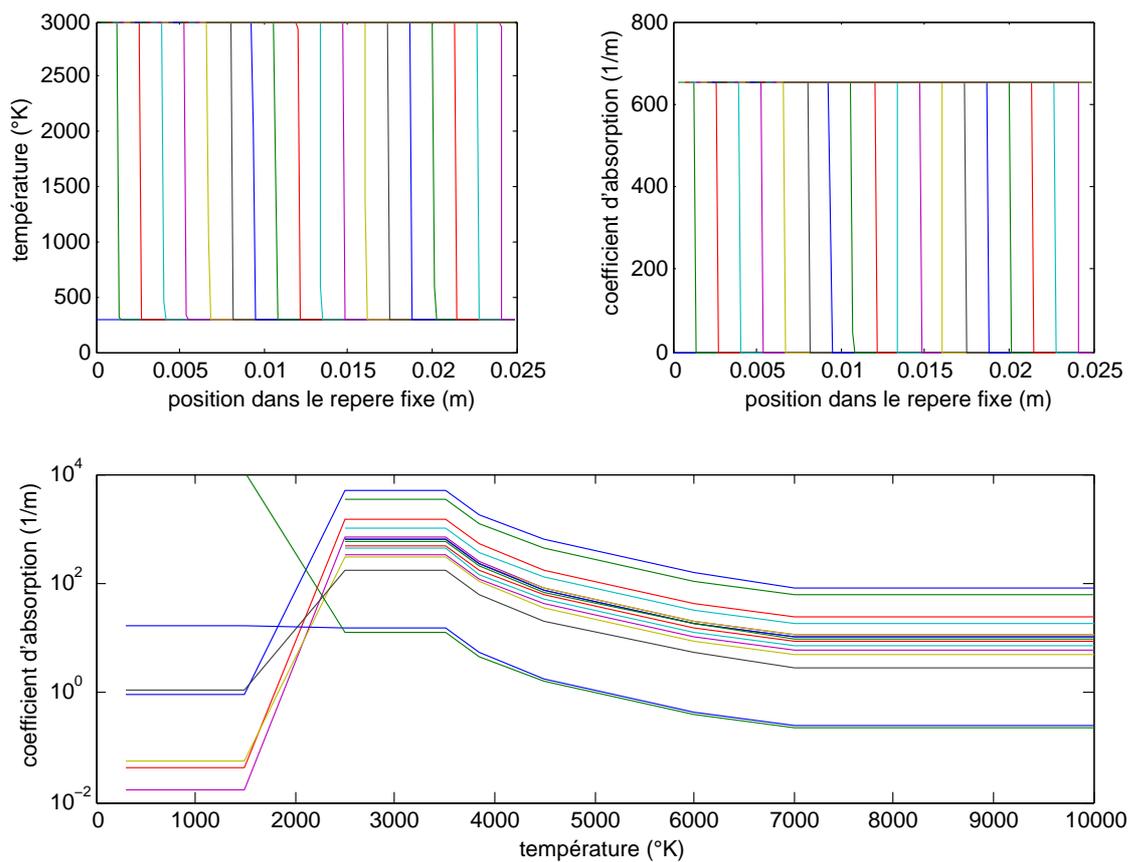


FIG. 11.5 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption initiaux dans le cas 1

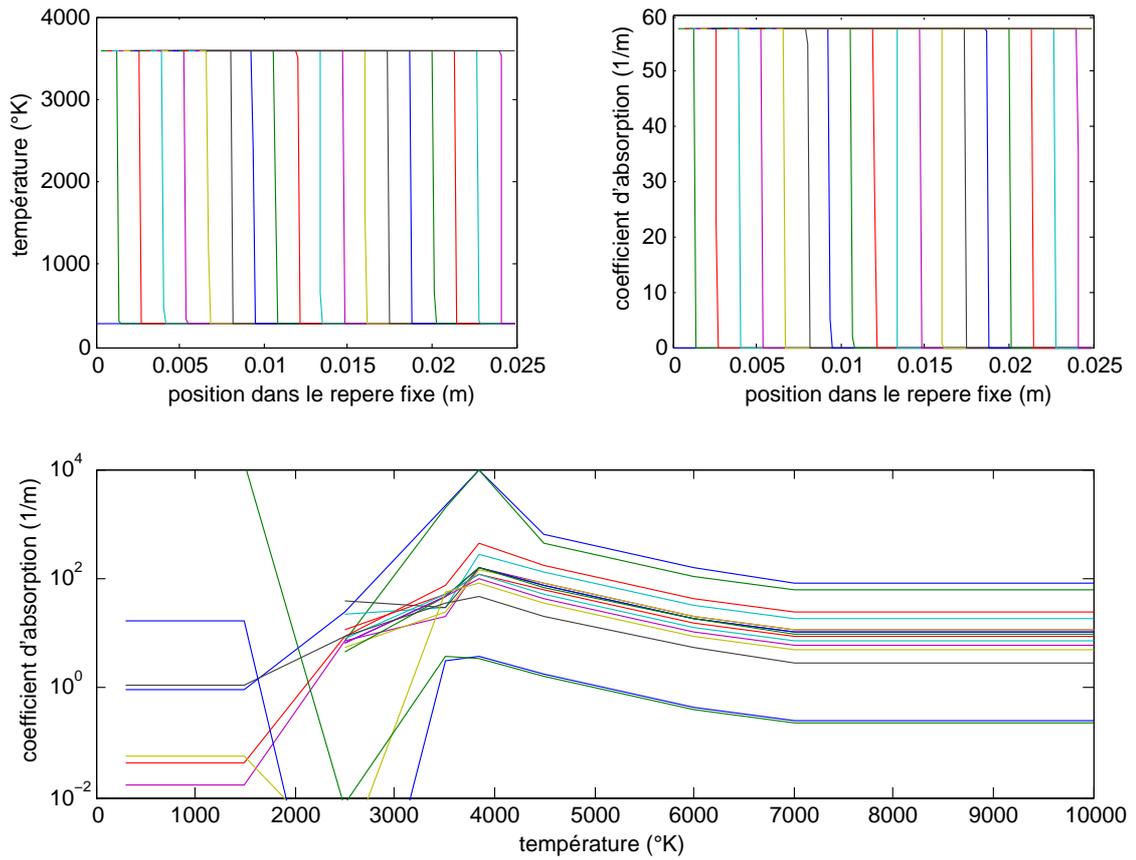


FIG. 11.6 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation directe dans le cas 1

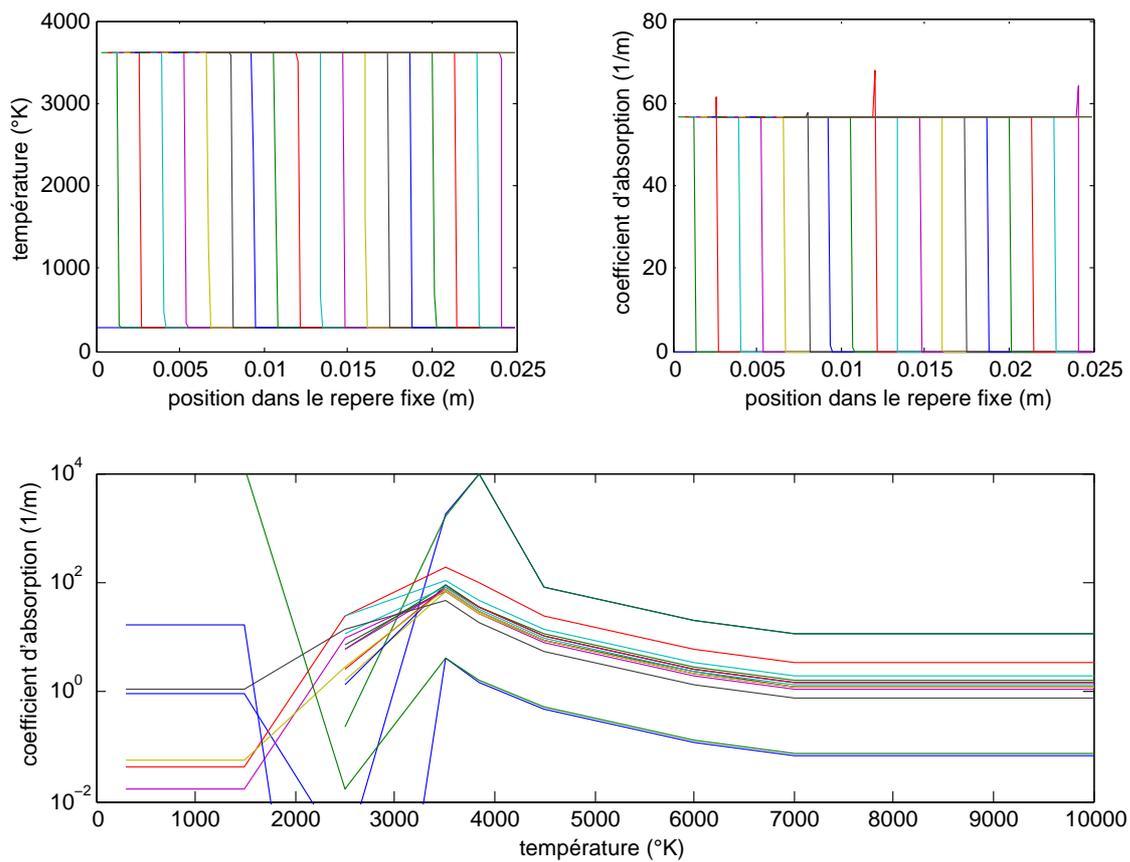


FIG. 11.7 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 1

11.2.3 Résultats d'inversion pour le cas 2

Il y a plus de grandeurs à déterminer que dans le cas 1 puisque le profil de température est maintenant défini par T_{CJ} , T_P et la détente (voir Fig. 9.5). Les vraies valeurs sont : $T_{CJ} = 3530K$, $T_P = 3000K$. La détente s'étend sur $0,4 \mu m$:

- si on calcule la détente avec l'équation 9.12 (profil exact), la largeur de la détente augmente au cours du temps et sa valeur moyenne est 0,4,
- si elle est calculée avec l'équation hyperbolique 10.3 (profil modélisé), sa largeur est constante.

. Les deux types de profils sont représentés sur les figures 11.8 et 11.9. Dans le cas des profils modélisés, la discontinuité a tendance à s'élargir légèrement en fonction du temps, ce qui est caractéristique de la représentation par l'équation hyperbolique.

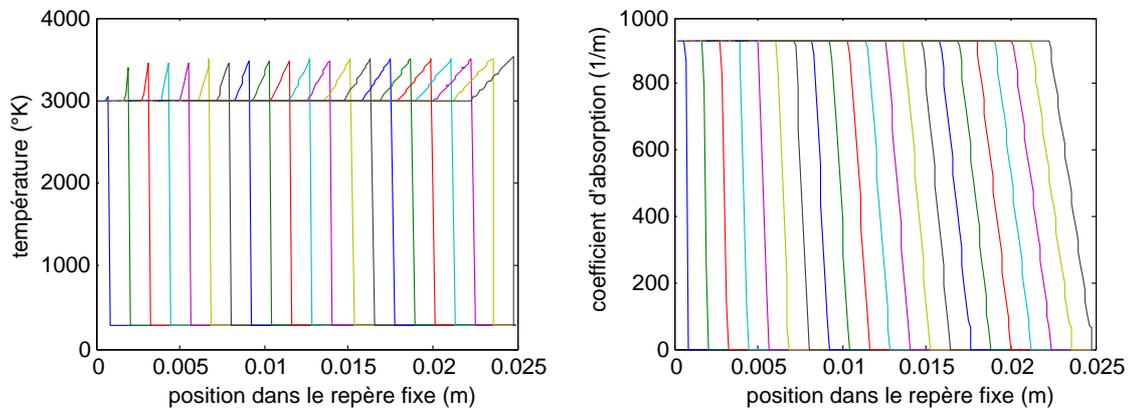


FIG. 11.8 - Tracés des *profils exacts* de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 2

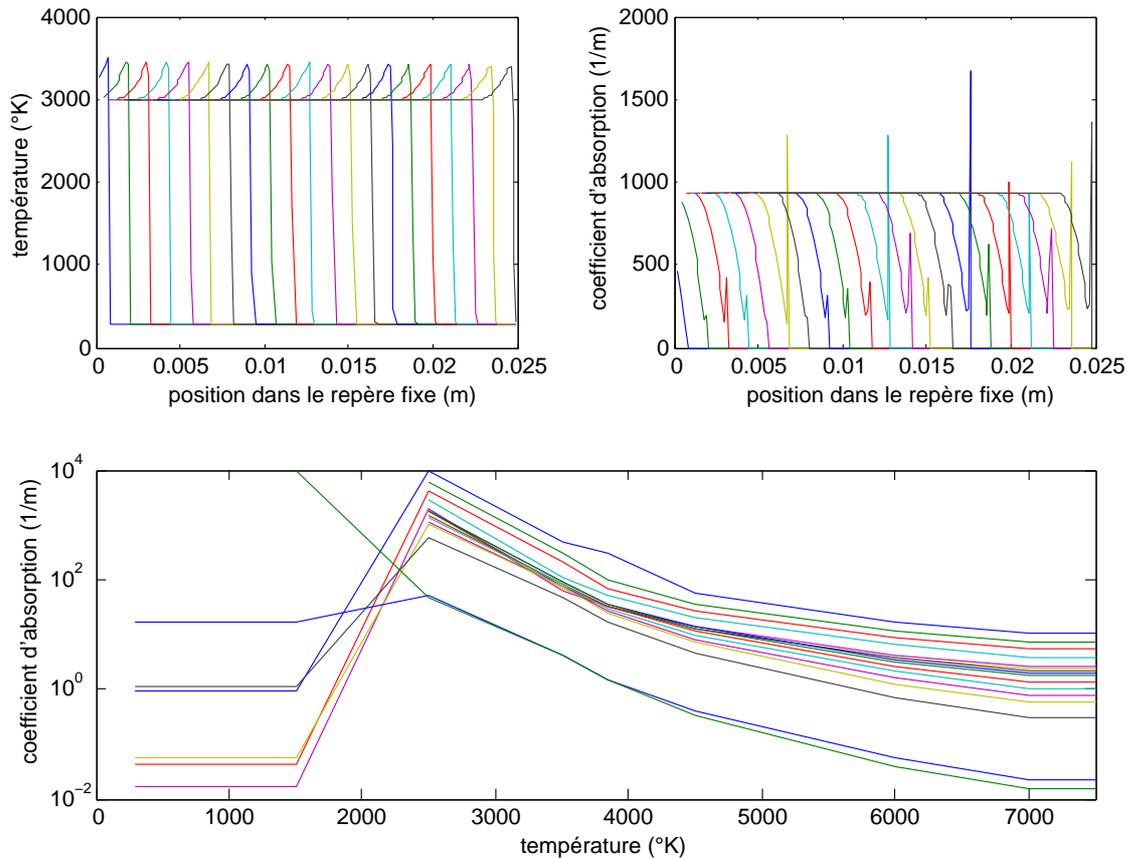


FIG. 11.9 - Tracés des **profils modélisés** de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 2, et la grille en 2D des coefficients d'absorption

L'inversion est réalisée sur les profils de luminance synthétique calculées avec les deux détentes. On distingue le profil exact et le profil modélisé. Les résultats sont résumés dans le tableau 11.3.

Lorsque l'on inverse le profil modélisé, le profil de température est retrouvé (Fig. 11.11). Ceci est normal car la paramétrisation de la température correspond au profil recherché. Par contre, pour le profil exact, dont la détente n'est pas calculée de la même façon que dans la paramétrisation, seule la valeur de T_P est retrouvée (Fig. 11.10). La solution est donc sensible à la paramétrisation de la température et il y a une difficulté à reproduire par modélisation, et à retrouver par inversion, des profils vrais de température.

Si le point initial est plus éloigné, $T = 4500K$, l'inversion permet seulement de retrouver les profils modélisés.

Stratégie	Point initial				Solution			
	T_{CJ} K	T_P K	Détente μs	$P(L_{cal})$ %	T_{CJ} K	T_P K	Détente μs	$P(L_{cal})$ %
Inversion du profil exact								
h1-2-3	3700	3200	0,6	72	3682	2984	0,89	98
d1	3700	3200	0,6	72	3635	3079	0,3	92,6
Inversion du profil modélisé								
h1-2-3	3700	3200	0,6	66	3530	3000	0,4	100
d1	3700	3200	0,6	66	3530	3000	0,4	100

TAB. 11.3 - Résultats de l'inversion dans le cas 2

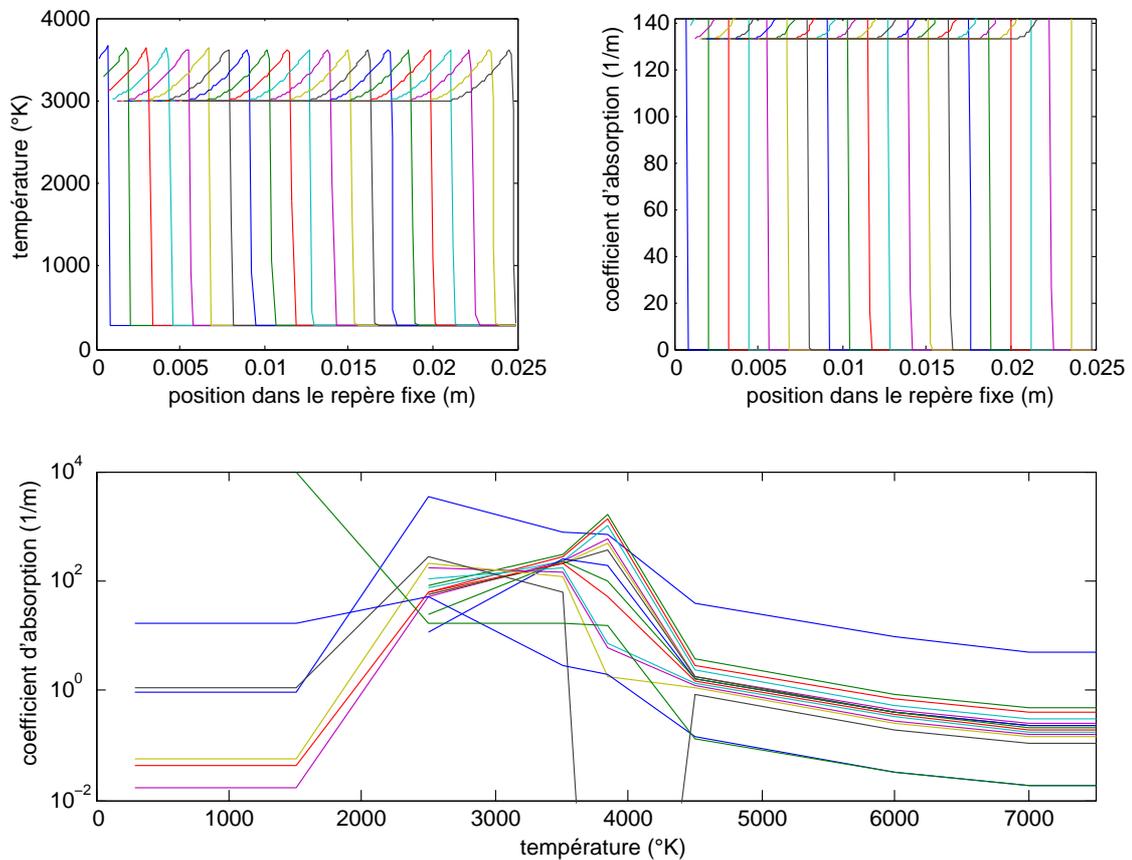


FIG. 11.10 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 2 pour la recherche des **profils exacts**

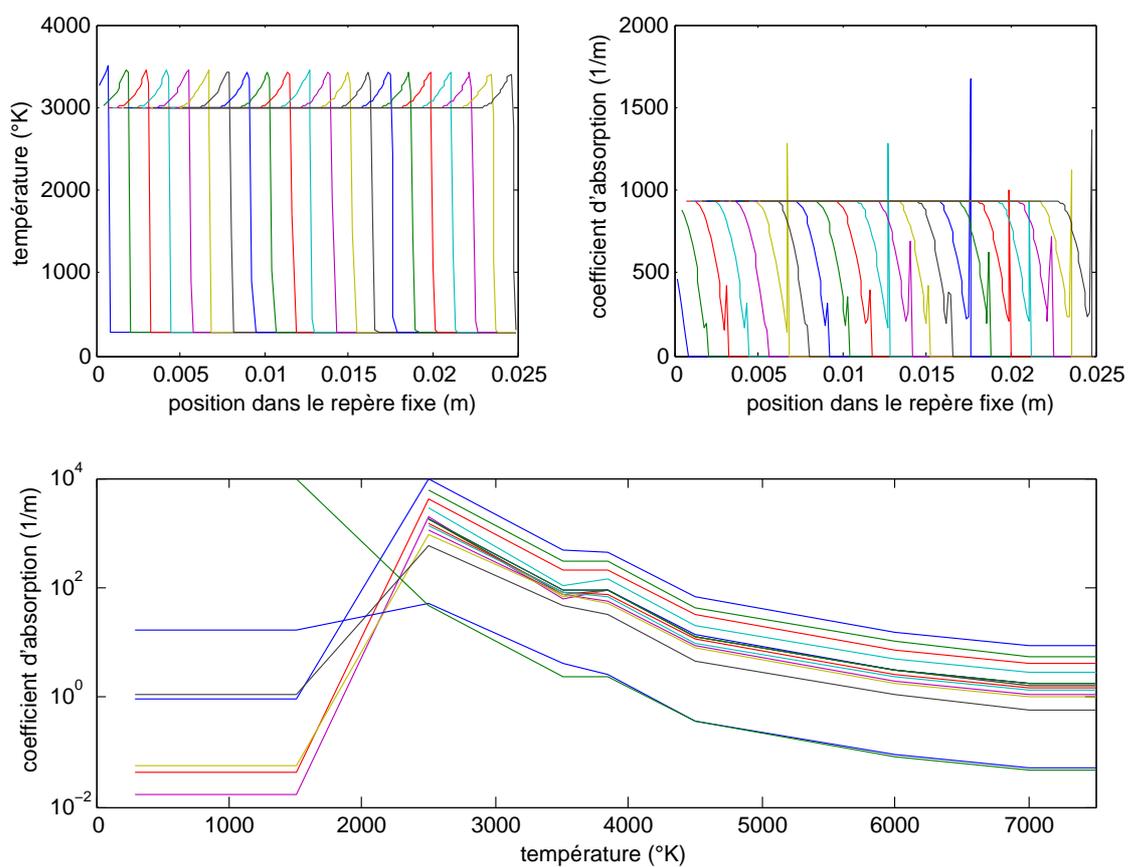


FIG. 11.11 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 2 pour la recherche des **profils modélisés**

11.2.4 Résultats d'inversion pour le cas 3

Il y a maintenant 5 paramètres à déterminer (voir tableau 10.1) : T_{CJ} , T_P , T_S , détente, vitesse de l'onde de détonation D . De même que dans le cas 2, on distingue le profil exact (détente calculée avec l'équation 9.12) et le profil modélisé (détente calculée avec l'équation 10.3).

Les valeurs à retrouver sont :

- pour le profil exact :
 - $T_{CJ} = 4650K$, $T_P = 3000K$, $T_S = 1336K$, détente variable, $D = 8290m/s$
- pour le profil modélisé :
 - $T_{CJ} = 4650K$, $T_P = 3000K$, $T_S = 1336K$, détente de $0,25\mu m$, $D = 8290m/s$

Les figures 11.12 et 11.13 représentent les profils recherchés.

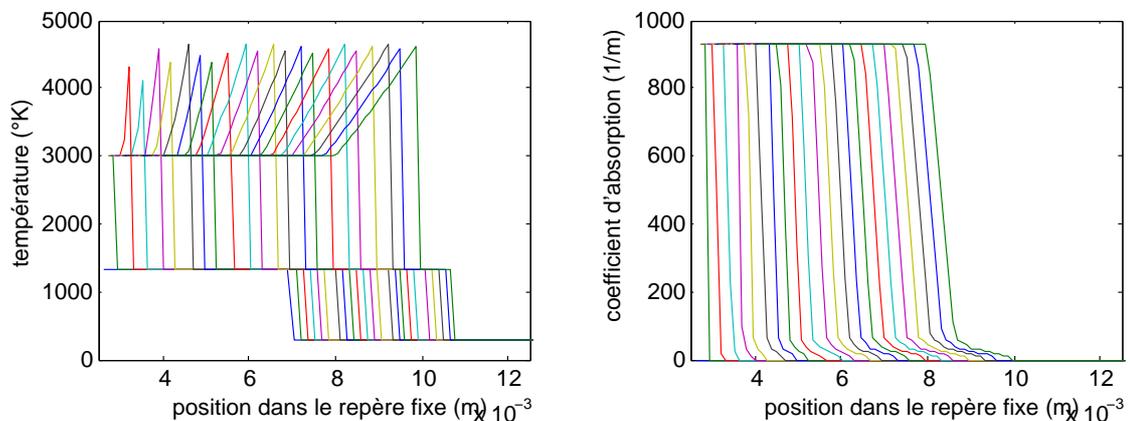


FIG. 11.12 - Tracés des **profils exacts** de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 3

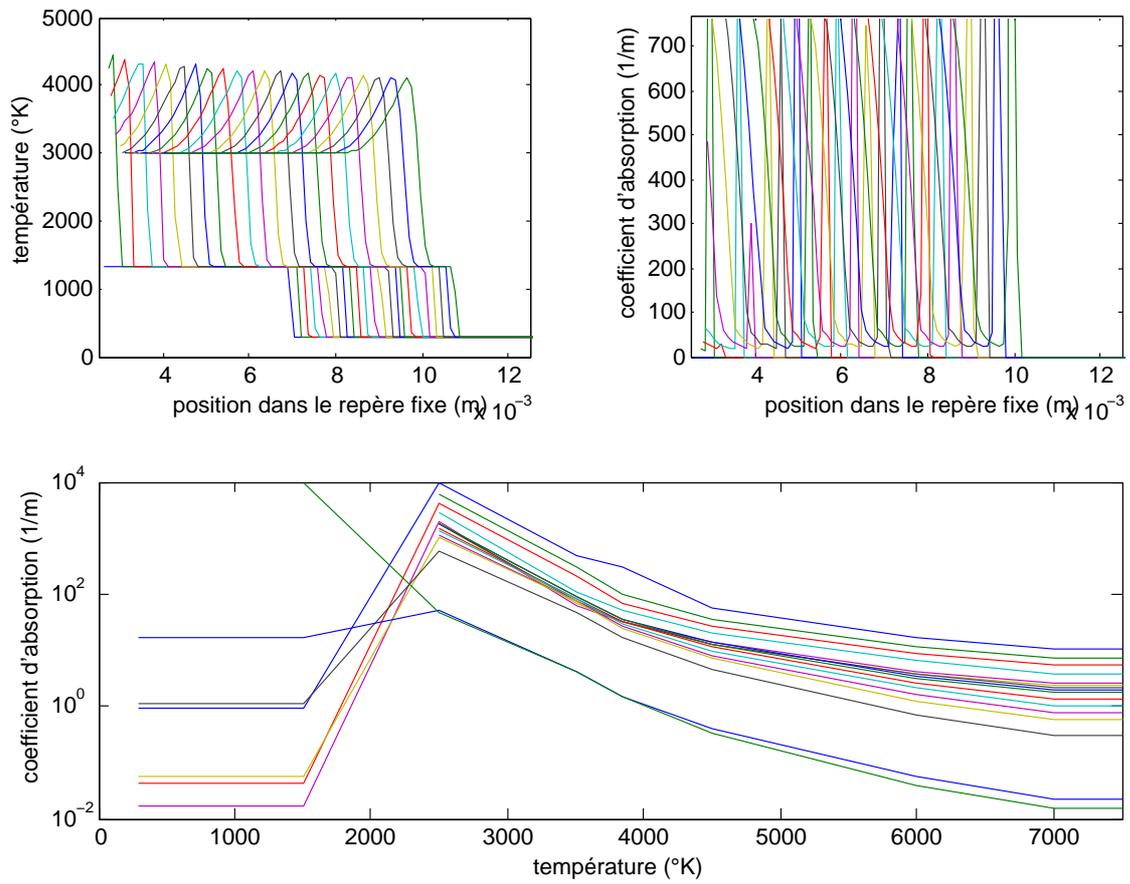


FIG. 11.13 - Tracés des **profils modélisés** de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 3 et la grille en 2D des coefficients d'absorption

L'inversion est réalisée pour le cas exact et le cas modélisé avec comme point initial :

$$- T_{CJ} = 4800K, T_P = 3200K, T_S = 1400K, \text{détente}=0,5, D = 8500m/s$$

Les résultats d'inversion sont récapitulés dans le tableau 11.4. Pour la recherche du profil exact, les deux stratégies ont été utilisées. Par contre, pour la recherche du profil modélisé, seule l'optimisation directe a été mise en oeuvre ; une inversion a été réalisée pour la détermination de chaque grandeur. Les pourcentages de mesures expliquées ne sont pas indiqués dans le tableau dans ce cas.

Stratégie	Solution					
	T_{CJ} K	T_P K	T_S K	Détente μs	D m/s	$P(L_{cal})$ %
Inversion du profil exact						
h1-2-3	3603	3202	1500	$7,02 \cdot 10^{-5}$	8600	97
d1	4743	2948	1404	0,339	8430	94
Inversion du profil modélisé Recherche séparée de chaque grandeur						
d1	4650	3000	1336	0,25	8490	-

TAB. 11.4 - Résultats de l'inversion dans le cas 3

Comme dans le cas 2, l'inversion retrouve bien les profils modélisés (Fig. 11.14) mais pas les profils exacts. Dans ce cas, le résultat de l'optimisation directe semble le plus proche de la solution pour ce qui est des valeurs de la température soutenue T_P et de la température sous choc T_S . Par contre, la vitesse de l'onde de détonation ainsi que la température T_{CJ} sont encore éloignées de la solution.

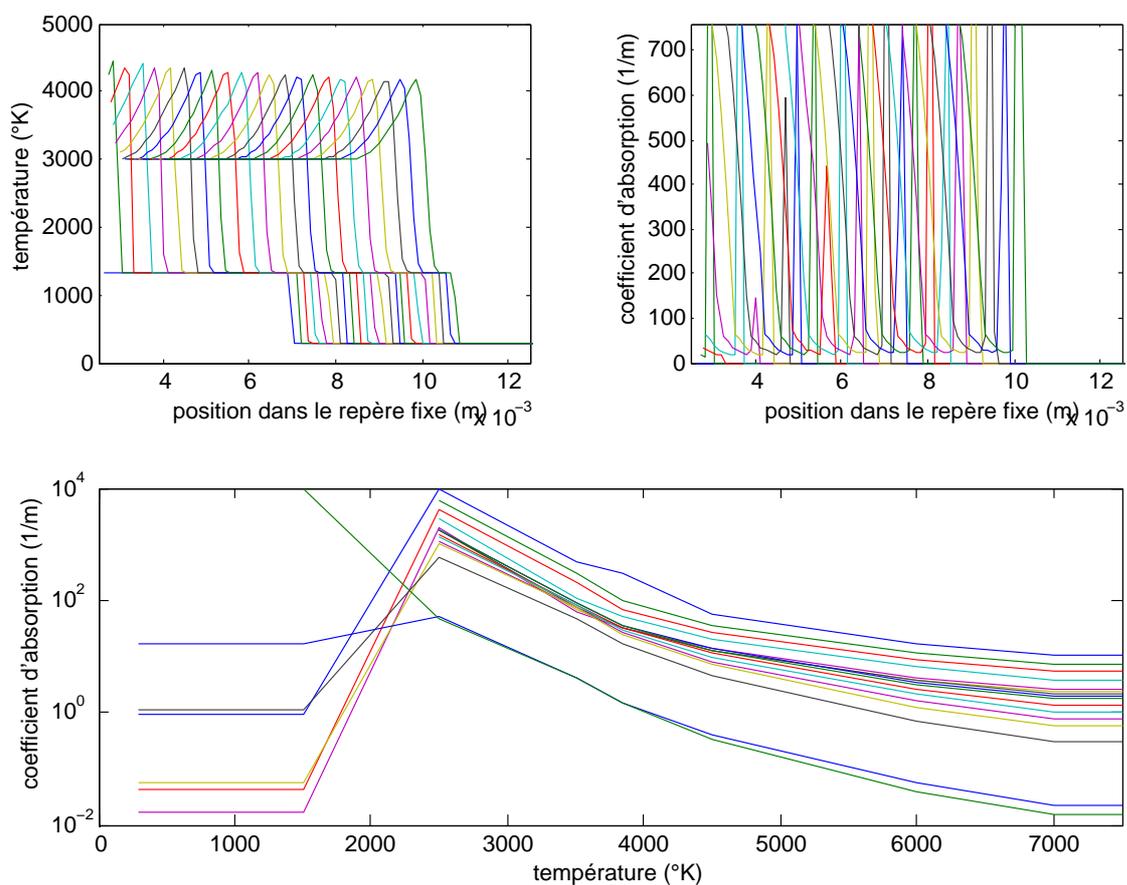


FIG. 11.14 - Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation directe dans le cas 3 pour la recherche des **profils modélisés**

11.3 Conclusion

La détermination des profils de température a fait l'objet d'une collaboration entre le LEEE, le CEG et l'INRIA. Il s'agissait d'inverser l'équation de transfert radiatif appliquée à la transition choc-détonation du NM, pour des milieux dont nous avons montré qu'ils étaient semi-transparents.

L'INRIA a développé un algorithme d'optimisation permettant de résoudre en première approche des cas simples de détonation : le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue (cas 1), le cas d'une détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation (cas 2) et le cas simplifié d'une superdétonation (cas 3). Les profils de luminance sont synthétiques et non expérimentaux.

La première étape de la méthodologie proposée, l'analyse de la sensibilité de la luminance aux deux inconnues, température et coefficient d'absorption monochromatique, a permis de choisir les paramétrisations de T et K_λ les plus adaptées : la température est représentée par une équation hyperbolique et le coefficient d'absorption par une interpolation linéaire de valeurs issues d'une grille en fonction de la température et du coefficient d'absorption calculée d'après les mesures de spectroscopie.

L'inversion a été réalisée sur les trois cas :

1. Pour le cas 1, la seule grandeur à déterminer est la température des produits de détonation. L'inversion des profils de luminance non bruités et bruités permet de retrouver les profils de température et de coefficient d'absorption recherchés avec un pourcentage de mesures expliquées de 99% sans le bruit et de 92% avec le bruit.
2. Pour le cas 2, le profil recherché est défini par 3 paramètres : la température du front de détonation, la détente et la température lorsque la détonation est soutenue. L'inversion des profils de luminance issus de profils de température modélisés avec l'équation hyperbolique est satisfaisante (100% de mesures expliquées). Par contre, dans le cas où la détente n'est pas exactement représentée par l'équation hyperbolique, seule la valeur de la température «soutenue» est retrouvée.
3. Pour le cas 3, la température sous choc et la vitesse de l'onde de détonation s'ajoutent aux paramètres du cas 2. Les résultats sont les mêmes que dans le cas 2.

L'inversion de profils «simples» de détonation n'est pas aisée. Il semble que si le profil recherché est trop éloigné de la représentation paramétrique de la température, l'inversion ne permet pas pour le moment de retrouver la solution. La principale difficulté réside dans la représentation paramétrique de la température. La méconnaissance du coefficient d'absorption des produits de réaction et de détonation est là

aussi un obstacle à la résolution. Une plus grande connaissance des caractéristiques otiques permettrait de préciser la paramétrisation de K_λ .

Avant de traiter le cas expérimental, le programme sera testé sur des profils de température calculés avec un modèle plus sophistiqué implanté dans GODLAG99, logiciel de calcul lagrangien unidimensionnel hydroréactif [7]. Ce cas modélise l'apparition de l'onde de superdétonation au cours du temps puis la formation de l'onde de détonation au moyen d'un modèle réactif basé sur la théorie des états de transition. A $t = 0$, le choc entre dans le NM à la position $x = 19 \text{ mm}$. Le premier profil représenté ici est pour $t = 0,85 \mu\text{s}$, les profils suivants sont toutes les $0,05 \mu\text{s}$ (Fig. 11.15).

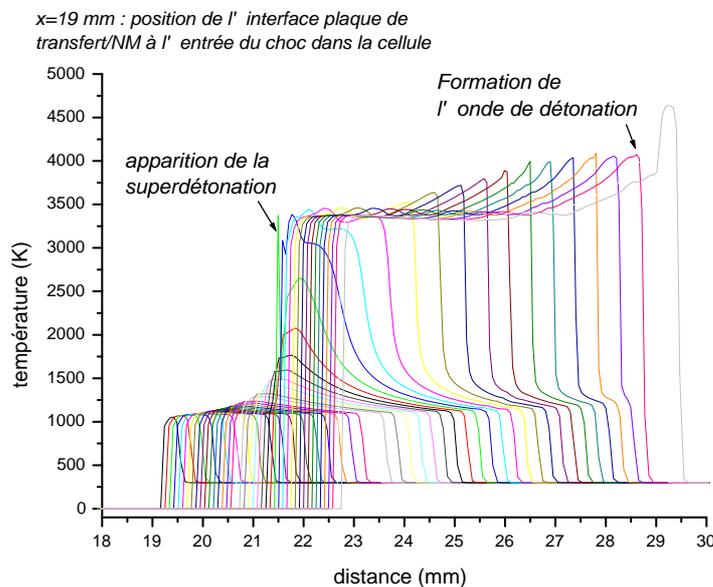


FIG. 11.15 - Profils de température obtenus avec GODLAG99 (logiciel de calcul lagrangien unidimensionnel hydroréactif) lors de la transition choc-détonation du NM.

Ce cas regroupe les particularités des trois cas étudiés. La validation de la méthode inverse sur ce cas doit garantir une bonne inversion des cas expérimentaux.

Conclusions... et perspectives

L'objectif des travaux présentés dans ce mémoire était de contribuer à la connaissance des mécanismes d'amorçage et de détonation du nitrométhane (NM), explosif liquide écolo, semi-transparent. Il s'agissait de mettre en oeuvre une technique de spectrométrie d'émission afin de réaliser l'analyse spectrale du NM puis de déterminer les profils de température durant la transition choc-détonation. La température est en effet un paramètre majeur pour la validation des modèles théoriques, l'élaboration de lois d'état et la connaissance des cinétiques chimiques.

La spectrométrie d'émission a été choisie suite à des études de pyrométrie optique à 6 longueurs d'onde discrètes [50], pour vérifier et préciser les interprétations sur l'émissivité des différents milieux présents lors de la transition choc-détonation. La plupart des articles portant sur la pyrométrie spectrale ont conduit à établir que l'onde de détonation avait un comportement optique proche d'un corps noir (température comprise entre 3400 et 3800 K) [46, 47, 50]. Cependant, des incertitudes demeurent quant aux propriétés optiques des produits formés entre l'amorçage et la formation de la détonation. La nécessité d'avoir plus de mesures spectrales a justifié le choix de la spectroscopie d'émission.

L'une des principales difficultés de la détermination de la température dans le domaine de la détonique repose essentiellement sur la méconnaissance des propriétés optiques des milieux rencontrés à très hautes températures (3000-4500 K) et très hautes pressions (15-30 GPa). Les bases de données actuelles [66, 44] permettent de modéliser les spectres d'émission de nombreuses espèces pour des températures maximales de l'ordre de 3000 K et des pressions maximales de l'ordre de 0,1 GPa . La validation expérimentale de ces spectres est généralement réalisée sur des essais de combustion. Le couplage hautes pressions, hautes températures est alors difficilement accessible et seuls des essais de détonation permettent d'atteindre ces états thermodynamiques.

Le dispositif de spectroscopie d'émission a été mis au point pour l'étude du domaine visible 0,3-0,85 μm . Il permet l'obtention de 16 mesures spectrales (largeur de bande de 26 nm) avec une résolution spectrale de 32 nm et une résolution temporelle de 1 ns . Le système s'adapte au dispositif de détonation du CEG grâce à une tête optique qui collecte le flux émis durant la transition choc-détonation et le trans-

met au monochromateur par une fibre optique. Les essais de détonation consistent en des impacts plans d'un projectile sur une cible contenant l'explosif liquide. Des mesures de spectrométrie d'émission ont été réalisées lors de 6 essais d'impact plan à 8,6 *GPa* sur des épaisseurs de 25 *mm* de NM. Les températures de luminances minimales obtenues sont égales à 1500 *K*.

L'utilisation de divers moyens métrologiques (aiguilles de chronométrie, détecteur large bande, électrode de polarisation), associés au spectromètre, a permis de mettre en évidence les différentes phases de la transition choc-détonation telles que décrites par Chaiken [17] : l'entrée du choc dans le NM, la formation d'une onde de détonation dans le NM comprimé par le choc appelée superdétonation, le rattrapage du choc par la superdétonation puis la formation de la détonation établie. Le calcul des profils de température de luminance - ou température apparente - température minimale, a montré que la température de luminance du NM choqué est comprise entre 1500 *K* et 2500 *K*. Cette augmentation importante de la température serait la conséquence de réactions chimiques localisées à l'interface plaque de transfert/NM [49].

L'analyse spectrale de l'intensité émise, couplée à l'analyse temporelle permet de suivre les évolutions des caractéristiques optiques des milieux durant la transition choc-détonation. L'apparition d'une discontinuité centrée à 0,7 μm dès la formation de la superdétonation précise les mesures de pyrométrie effectuées à des longueurs d'onde discrètes qui n'avaient pas enregistré cette particularité. Elle s'expliquerait par la formation des produits de réaction. L'interprétation des mesures a conduit aux conclusions suivantes :

- L'exploitation des profils de luminance corrélée à des essais de réverbération sous choc du NM réalisés au CEG [4], montre que le NM reste transparent sous choc et confirme l'existence de réactions chimiques locales.
- Les produits de réactions qui apparaissent à la formation de l'onde de superdétonation sont semi-transparents. Pour les longueurs d'onde comprises entre 0,4 et 0,6 μm , ils sont transparents. Par contre, pour les longueurs d'onde comprises entre 0,6 et 0,85 μm , ils sont optiquement épais ; le rayonnement émis provient alors d'une couche de produits de réaction d'épaisseur constante à l'arrière de l'onde de superdétonation.
- Les produits de détonation, à l'arrière de l'onde de détonation sont aussi semi-transparents et optiquement épais dans le domaine visible 0,4-0,85 μm . C'est une couche d'épaisseur finie, d'au moins 5 *mm* qui émettrait à l'arrière du front. Par conséquent, l'hypothèse de corps noir ou gris couramment utilisée dans les études de pyrométrie optique ne peut être appliquée. Le coefficient d'absorption monochromatique des produits de détonation est en effet élevé mais il dépend de la longueur d'onde et ne correspond pas à l'émissivité d'un corps noir.

Un modèle d'absorption a été étudié pour expliquer la discontinuité des spectres de luminances en superdétonation et en détonation. Dans le domaine 0,3-0,85 μm ,

les espèces chimiques en proportion relative majoritaire (la composition chimique est calculée par le code thermochimique CHEETAH) susceptibles d'émettre sont le carbone et la vapeur d'eau. Nous avons donc proposé une étude basée sur la diffusion Rayleigh des particules de carbone dont la taille est estimée à 50\AA [85] et sur une représentation large bande des raies d'émission de l'eau (modèle exponentiel de Edwards [58]). La comparaison des simulations avec les mesures expérimentales durant les phases de superdétonation et de détonation établie aboutit à plusieurs conclusions.

- Le modèle choisi entraîne que les particules de carbone dont la fraction volumique est comprise entre 6% et 9% (valeurs calculées par le code thermochimique CHEETAH pour les produits de détonation et de réaction) émettent comme un corps noir, ce qui est incompatible avec nos mesures. On peut donc s'interroger sur la validité des calculs du code. De plus, la diffusion des particules de carbone n'est sûrement pas négligeable et elle ne peut être représentée par un régime de diffusion Rayleigh indépendante. L'interaction des particules entre elles doit être prise en compte. Il faut donc utiliser la forme complète de l'équation de transfert radiatif, qui prend en compte l'émission, l'absorption et la diffusion du milieu.
- Des phénomènes d'émission autres que thermiques peuvent avoir lieu sous forme de chimiluminescence. L'équation de transfert radiatif utilisée pour le modèle n'exprime que des phénomènes d'émission thermique. Il se peut que la formation du dioxyde d'azote lors de la décomposition du NM provoque une émission fluorescente pendant toute la durée de la détonation jusqu'à l'interaction avec la fenêtre. Mais la proportion relative dans les produits de réaction de NO_2 est négligeable. D'autres espèces peuvent donc être à l'origine d'un phénomène de fluorescence, N_2 en particulier.
- Le manque de données à hautes pressions et hautes températures est un problème majeur pour l'étude des caractéristiques optiques des milieux en détonation.

La détermination des profils de température a fait l'objet d'une collaboration entre le LEEE, le CEG et l'INRIA. L'INRIA a développé un algorithme d'optimisation de l'équation de transfert radiatif d'un milieu semi-transparent homogène qui émet et absorbe uniquement. Pour une première approche du problème, des cas simples ont été traités : le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue, le cas d'une détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation et le cas simplifié d'une superdétonation. La première étape de la méthodologie proposée, l'analyse de la sensibilité de la luminance aux deux inconnues, température et coefficient d'absorption monochromatique, a permis de choisir les représentations paramétriques de T et K_λ les plus adaptées : la température est représentée par une équation hyperbolique et le coefficient d'absorption par une interpolation linéaire de valeurs issues d'une grille en fonction de la température et du coefficient

d'absorption, interpolation linéaire calculée d'après les mesures de spectroscopie. L'algorithme a été validé dans le premier cas uniquement sur des profils de luminance non bruités et bruités, avec un pourcentage de mesures expliquées supérieur à 92 %. Pour les deux autres cas, l'inversion d'un profil de luminance caractéristique d'un profil de température qui n'est pas représenté exactement par l'équation hyperbolique, ne permet pas de retrouver toutes les caractéristiques du profil.

L'inversion de profils «simples» de détonation n'est donc pas aisée. Il semble que si le profil recherché est trop éloigné de la représentation paramétrique de la température, l'inversion ne permet pas pour le moment de retrouver la solution. Comme cette représentation a été choisie pour traiter un cas générique plus représentatif du cas expérimental, on peut espérer que l'inversion donne alors des résultats plus proches de la solution. La méconnaissance du coefficient d'absorption des produits de réaction et de détonation est là aussi un obstacle majeur à la résolution.

La spectrométrie d'émission dans le domaine 0,3-0,85 μm a apporté de nombreux résultats concernant les caractéristiques optiques des milieux durant la transition choc-détonation. Afin de compléter ce travail, plusieurs voies expérimentales peuvent être développées. La première consiste à mettre au point la spectroscopie dans le domaine infrarouge, où le NM présente des raies d'absorption et est opaque à partir de 2,1 μm . Les espèces chimiques formées, en particulier la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone sont en effet susceptibles d'émettre dans le domaine 2-4 μm [80]. Des caméras infrarouge rapides pourraient permettre d'explorer cette région spectrale, l'épaisseur de NM devant être limitée à quelques centaines de microns afin de pallier à son opacité. Nous avons montré dans cette thèse la difficulté des mesures dans le proche infrarouge à cause du faible flux émis et de la limite de détectivité des détecteurs. On peut espérer que les développements technologiques des capteurs InGaAs pour les caméras permettent de répondre à ce problème. L'utilisation d'une caméra à balayage de fente dans le domaine visible permettrait d'améliorer la résolution des mesures. Le perfectionnement de la technique de la spectroscopie d'émission (méthode dite passive) doit être complétée de mesures dites actives, notamment des mesures de transmission. L'étude de rayonnements pulsés lasers de quelques picosecondes se réfléchissant sur la plaque de transfert et traversant le milieu en détonation permettrait de connaître l'absorption des espèces à une longueur d'onde discrète. Enfin, la mise au point d'un dispositif d'impact plan pour effectuer des mesures optiques par l'arrière de la cellule d'explosif complèterait les mesures effectuées dans la direction de la propagation des ondes de détonation.

L'inversion mathématique de l'équation de transfert radiatif appliquée à la transition choc-détonation, nouvelle approche pour la détermination des profils de température, est à poursuivre. La précision de l'optimisation est liée à l'obtention de données sur le coefficient d'absorption monochromatique à hautes pressions et hautes

températures. Il est possible d'envisager de développer une méthode d'optimisation qui intègre à la fois l'équation de transfert radiatif et les équations relatives à la détonation (équations d'Euler réactives et lois hydrodynamiques). Ceci devrait permettre de diminuer le nombre de paramètres inconnus et d'accéder plus précisément aux profils de température. Enfin, notre étude ayant montré que la diffusion des particules de carbone ne pouvait être négligée, l'inversion de l'équation de transfert radiatif prenant en compte la diffusion des particules sera à développer.

Bibliographie

- [1] « Rapport d'essai du LNE : assistance technique pour le calcul d'incertitudes relatives à des mesures de luminances effectuées au moyen d'un pyromètre multi-longueurs d'onde » – 1997.
- [2] D. BAILLIS et J.-F. SACADURA – « Thermal radiation properties of dispersed media : theoretical prediction and experimental characterization », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **67** (2000), p. 327–363.
- [3] R. D. BARDO – « Calculated reaction pathways for nitromethane and their role in the shock initiation process », 8th symposium on detonation, 1985.
- [4] G. BAUDIN, R. SERRADEILL, C. LE GALLIC et P. BOUINOT – « Comportement sous choc du nitrométhane liquide », Tech. report, Document technique T2002-00040/CEG, 2002.
- [5] — , « Modèle d'amorçage par choc du nitrométhane : aspect cinétique chimique », Tech. report, Document technique CEG, 2002.
- [6] G. BAUDIN – « Modélisation numérique des couplages thermiques, mécaniques et chimiques dans les écoulements industriels », Tech. report, CEG, 2000, Cours école d'été CNRS-SFT.
- [7] G. BAUDIN et Y. LAGARDE – « GODLAG-99, logiciel de calcul lagrangien unidimensionnel hydroréactif basé sur le schéma de Godunov au second ordre », Tech. report, CEG, 2000, Document technique D2000-00008/CEG/NC.
- [8] N. C. BLAIS, R. ENGELKE et S. A. SHEFFIELD – « Mass spectroscopy study of the chemical reaction zone in detonating liquid nitromethane », *Journal of Physical Chemistry A* **101** (1995), p. 8285–8295.
- [9] E. BLANCO – « Température et émissivité des matériaux sous choc - Etude expérimentale par pyrométrie optique à travers un matériau fenêtre », Thèse, Université Paris X, 1997.
- [10] R. BOURIANNES, M. MOREAU et J. MARTINET – « Un pyromètre rapide à plusieurs couleurs », *Revue de Physique Appliquée* **12** (1977), p. 893–899.
- [11] V. BOUYER – « Spectroscopie d'émission dans le visible. Description du système et mise en oeuvre », Tech. report, 2002, Document technique D2002-00004/CEG/NC.

-
- [12] V. BOUYER, G. BAUDIN, C. LE GALLIC et P. HERVÉ – « Emission spectroscopy applied to shock to detonation transition in nitromethane », APS Topical Group Meeting on Shock Compression of Condensed Matter, Atlanta, GA, USA, 2001.
- [13] —, « Spectroscopie d'émission appliquée à l'étude des mécanismes de transition choc-détonation du nitrométhane », Congrès Français de Thermique, SFT 2001, Nantes, 2001.
- [14] K. R. BROWER, L. L. DAVIS, D. L. NAUD et J. WANG – « Static and dynamic pressure effects on the thermolysis of nitroalkanes in solution », 11th symposium on detonation, 1998.
- [15] G. BRUHAT – *Cours de physique générale*, Masson, 1992.
- [16] A. M. CAMPBELL, W. C. DAVIS et J. R. TRAVIS – « Shock initiation of detonation in liquid explosives », *Physics of fluids* **4** (1961), p. 498–510.
- [17] R. F. CHAIKEN – « Comments on hypervelocity wave phenomena in condensed explosive », *Journal of Chemical Physics* **33** (1960), p. 760–768.
- [18] G. CHAVENT et F. CLÉMENT – « à paraître », Tech. report, CEG, 2002.
- [19] P. CHELIN, V. PINA et P. HERVÉ – « Etude des propriétés radiatives de la vapeur d'eau à haute pression par spectroscopie d'émission : application aux turboréacteurs et statoréacteurs », Congrès Français de Thermique, SFT 2001, Nantes, 2001.
- [20] P. B. COATES – « The least-squares approach to multi-wavelength pyrometry », *High Temperatures - High Pressures* **20** (1988), p. 433–441.
- [21] C. CONSTANTINOU et Y. M. GUPTA – « The UV/visible absorption spectra of shocked nitromethane - amine mixtures », AIP Conference Proceedings, vol. 309, 1994.
- [22] J. COSTERASTE et M. PEREZ – « Etude d'un pyromètre optique pour la mesure de transitoires de températures de matériaux soumis à un choc intense », Tech. report, CEG, 1987.
- [23] S. COURTECUISSÉ, F. CANSELL, D. FABRE et J.-P. PETITET – « A Raman spectroscopy study of nitromethane up to 350°C and 35 GPa », *Journal de Physique IV* **5** (1995).
- [24] J. CRABOL – *Transfert de chaleur*, Masson, 1989.
- [25] A. DELPUECH et A. MENIL – « Raman scattering temperature measurement behind a shock wave », *Shock compression of condensed matter*, Elsevier, 1983.
- [26] A. N. DREMIN et S. D. SAVROV – « Emission spectrum of a detonation wave in nitromethane », *Zhurnal prikladnooi mekhaniki i technicheskooi fisiki* (1965), no. 1, p. 103–105.

- [27] A. N. DREMIN – *Toward detonation theory*, Springer, 1999.
- [28] R. ENGELKE et S. A. SHEFFIELD – « High-pressure shock compression of solid III », ch. 4 : Initiation and propagation of detonation in condensed-phase high explosive, Springer, 1997.
- [29] W. FICKETT et W. C. DAVIS (éds.) – *Detonation*, University of California Press, 1979.
- [30] L. FRIED, W. HOWARD et P. SOUERS – « Cheetah 2.0, user's manual », Tech. report, Lawrence Livermore National Laboratory, 1998, Rev. 5.
- [31] J. L. GARDNER, T. P. JONES et M. R. DAVIES – « A six-wavelength radiation pyrometer », *High Temperatures - High Pressures* **10** (1981), p. 459–466.
- [32] F. C. GIBSON, M. L. BOWSER, C. R. SUMMERS, F. SCOTT et C. M. MASON – « Use of an electro-optical method to determine detonation temperature in high explosive », *Journal of Applied Physics* **29** (1958), no. 4, p. 628–632.
- [33] F. GRISCH, A. BRESSON, P. BOUCHARDY et al – « Métrologie avancée pour la combustion », *Source inconnue. Travail effectué à l'ONERA*.
- [34] Y. A. GRUZDKOV et Y. M. GUPTA – « Emission and fluorescence spectroscopy to examine shock-induced decomposition in nitromethane », *Journal of Physical Chemistry A* **102** (1998), no. 43, p. 8325–8332.
- [35] Y. M. GUPTA – « Progress in understanding shock deformation in condensed materials at the atomic/molecular level : Recent experimental developments », *Shock compression of condensed matter*, Elsevier, 1991.
- [36] O. HABLOT – « Etude microscopique de l'amorçage du nitrométhane sous choc », Thèse, Université Paris VII, juin 2002.
- [37] J. HADLICK – *Métrologie des propriétés thermophysiques des matériaux*, Masson, 1990.
- [38] D. R. HARDESTY – « An investigation of the shock initiation of liquid nitromethane », *Combustion and Flame* **47** (1976), p. 229–251.
- [39] — , « On the index of refraction of shocked-compressed liquid nitromethane », *Journal of Applied Physics* **47** (1976), no. 5, p. 1994–1998.
- [40] M. HENRY – « Optique quantitative - photométrie, colorimétrie, spectrométrie », *Techniques de l'ingénieur*, A192 (1982).
- [41] P. HERVÉ – « Mesure de l'émissivité », *Techniques de l'ingénieur*, R2737 (1989).
- [42] G. HERZBERG – *Molecular spectra and molecular structure*, vol. III Electronic spectra and electronic structure of polyatomic molecules, Masson, 1992.
- [43] J. M. HOLLAS – *Spectroscopie*, Dunod, 1998.

-
- [44] N. JACQUINET-HUSSON, E. ARIÉ, J. BALLARD et *et al.* – « The 1997 spectroscopic GEISA databank », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **62** (1999), p. 205–254.
- [45] Y. KATO – « Contribution à l'étude des détonations des mélanges hétérogènes de nitrométhane et d'aluminium », Thèse, Université de Poitiers, 1978.
- [46] Y. KATO, R. BOURIANNES et C. BROCHET – « Mesure de la température de luminance des détonations d'explosifs transparents et opaques », Symposium HPD, 1978.
- [47] Y. KATO, N. MORI, H. SAKAI, K. TANAKA, T. SAKURAI et T. HIKITA – « Detonation temperature of nitromethane and some solid high explosives », 8th symposium on detonation, 1985.
- [48] M. D. KNUDSON, K. A. ZIMMERMAN et Y. M. GUPTA – « Picosecond time-resolved electronic spectroscopy in plate impact shock experiments : experimental development », *Review of scientific instruments* **70** (1999), no. 3, p. 1743–1750.
- [49] B. LÉAL, G. BAUDIN, J. C. GOUTELLE et H.-N. PRESLES – « An optical pyrometer for time resolved temperature measurements in detonation wave », 11th symposium on detonation, 1998.
- [50] B. LÉAL-CROUZET – « Application de la pyrométrie optique à la mesure de température des produits de réaction d'explosifs condensés en régime d'amorçage et de détonation », Thèse, Université de Poitiers, 1998.
- [51] B. LÉAL-CROUZET, G. BAUDIN et H. N. PRESLES – « Shock initiation of detonation in nitromethane », *Combustion and Flame* **122** (1998), p. 463–473.
- [52] N. LAMOUREUX, C. MATIGNON, M.-O. STURTZER, D. DESBORDES et H.-N. PRESLES – « Interprétation de la double structure observée dans l'onde de détonation du nitrométhane gazeux », *Compte-rendu de l'Académie des Sciences t.* **329** (2001), no. Série II b, p. 687–692.
- [53] P. LASCAUX et R. THÉODOR – *Analyse numérique appliquée à l'art de l'ingénieur. 1. méthodes directes*, Masson, 1998.
- [54] C. LE GALLIC, C. MABIRE, P. BOUINOT et G. BAUDIN – « Temperature measurement in material submitted to plate impact : infrared optical pyrometer », 51st ARA Meeting, 2000.
- [55] S. C. LEE et C. L. TIEN – « Effect of soot shape on soot radiation », *Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer* **29** (1983), p. 259–265.
- [56] C. L. MADER – *Numerical modeling of detonations*, University of California Press, 1979.
- [57] P. J. MILLER, G. J. PIERMARINI et S. BLOCK – « An FT-IR microspectroscopic method for kinetic measurements at high temperatures and high pressures », *Applied Spectroscopy* **38** (1984), no. 5, p. 680–686.

- [58] M. F. MODEST – *Radiative heat transfer*, McGraw-Hill, 1993.
- [59] D. S. MOORE et S. C. SHMIDT – « Experimental molecular spectroscopy in shock compressed materials », *Shock compression of condensed matter*, Elsevier, 1987.
- [60] E. D. PALICK – *Handbook of optical constants of solids II*, Academic Press Inc, 1991.
- [61] G. I. PANGILINAN et Y. M. GUPTA – « Molecular processes in a shocked explosive : time-resolved spectroscopy of liquid nitromethane », *High-Pressure Shock Compression of Solids III*, Springer, 1998.
- [62] P. A. PERSSON et T. SJOLIN – « Light emission during initiation of liquid explosives », 19th International Symposium on Shock Waves, vol. 3, Springer, 1993.
- [63] G. J. PIERMARINI, S. BLOCK et P. J. MILLER – « Effect of pressure on the thermal decomposition kinetics and chemical reactivity of nitromethane », *Journal of Physical Chemistry* **93** (1989), p. 457–462.
- [64] H.-C. PUJOLS et B. POULIGNY – « On the validity of the thermal explosion model in shock wave initiated nitromethane », *Propellants, Explosives, Pyrotechnics* **21** (1996), p. 19–23.
- [65] A. M. RENLUND et W. M. TROTT – « Spectroscopic studies of shocked and detonating explosives », *Shock compression of condensed matter*, Elsevier, 1987.
- [66] L. S. ROTHMAN, C. P. RINSLAND, A. GOLDMAN et *et al.* – « The HITRAN molecular spectroscopic database and HAWKS : 1996 edition », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **60** (1996), no. 5, p. 665–710.
- [67] F. ROUESSAC et A. ROUESSAC – *Analyse chimique. Méthodes et techniques instrumentales modernes*, Dunod, 2000.
- [68] J. F. SACADURA – « Les méthodes de mesures des propriétés radiatives », Colloque SFT, Nantes, 1990.
- [69] R. SAINT-LOUP, P. MICHAUX, M. CHAPUIS, F. CHAUSSARD et H. BERGER – « Mise au point et utilisation d’une cellule de diffusion Raman stimulée pour l’étude des gaz présents dans les combustions », 3ème Forum de Technologie des Hautes Pressions, Collonges la Rouge, 2002.
- [70] M. SELLAM, H. N. PRESLES et C. BROCHET – « Characterization of strong detonation waves in nitromethane », 8th symposium on detonation, 1985.
- [71] F. G. SMITH (éd.) – *Atmospheric propagation of radiation*, SPIE Optical Engineering Press, 1993.
- [72] L. SOULARD et S. BERNARD – « Processus élémentaires de la décomposition du nitrométhane sous choc », *Revue scientifique et technique de la Direction des Applications Militaires* (2000), no. 23.

-
- [73] E. M. SPARROW et R. D. CESS – *Radiation heat transfer*, Brooks/Cole Publishing Company, 1970.
- [74] J. TAINE et J.-P. PETIT – *Transferts thermiques, mécanique des fluides anisothermes*, Dunod, 1998.
- [75] J. TAYLOR – *Incertitudes et analyse des erreurs dans les mesures physiques*, Dunod, 2000.
- [76] J. THOUVENIN – *Détonique*, Eyrolles, 1997.
- [77] C. L. TIEN et B. L. DROLEN – « Thermal radiation in particulate media with dependent and independent scattering », *Annual review of numerical fluid mechanics and heat transfer*, vol. 1, Hemisphere, NY, 1987.
- [78] J. R. TRAVIS, A. M. CAMPBELL, W. C. DAVIS et J. B. RAMSAY – « Shock initiation of explosives III. Liquid explosives », *Les ondes de détonation*, Colloque international du CNRS, Paris, 1962.
- [79] P. A. URTIEW – « Brightness temperature of detonation wave in liquid explosives », *Acta Astronautica* **3** (1976), p. 555–566.
- [80] W. G. VON HOLLE et C. TARVER – « Temperature measurement of shocked explosives by time-resolved infrared radiometry. A new technique to measure shock-induced reaction », 7th symposium on detonation, 1981.
- [81] J. M. WINEY, G. E. DUVAL, M. D. KNUDSON et Y. M. GUPTA – « Equation of state and temperature measurements for shocked nitromethane », *Journal of Chemical Physics* **113** (2000), no. 17, p. 7492–7501.
- [82] J. M. WINEY et Y. M. GUPTA – « Shock-induced chemical changes in neat nitromethane : use of time-resolved raman spectroscopy », *Journal of Physical Chemistry B* **101** (1997), p. 10733–10743.
- [83] — , « UV-visible absorption spectroscopy to examine shock-induced decomposition in neat nitromethane », *Journal of Physical Chemistry A* **101** (1997), no. 49, p. 9333–9340.
- [84] J. M. WINEY, Y. M. GUPTA et K. G. CASEY – « Shock-induced changes in the absorption spectrum of nitromethane », AIP Conference Proceedings, vol. 309, 1994.
- [85] N. W. WINTER et F. H. REE – « Stability of the graphite and diamond phases of finite carbon clusters », 11th symposium on detonation, 1998.
- [86] H. XIANCHU, H. CHANGBUNG et K. SHUFONG – « The measurement of detonation temperature of condensed explosives with two colour-optical fiber pyrometer », 8th symposium on detonation, 1987.
- [87] C. S. YOO, N. C. HOLMES et P. C. SOUERS – « Detonation in shocked homogeneous high explosives », Materials Research Society Symposium proceeding, vol. 418, 1996.

- [88] E. ZOTOV et al – « Limiting condition of a propagation of a detonation in liquid solutions of nitrobenzene in tetranitromethane and fluronitroform », *Combustion explosion and shock waves* **16** (1980), no. 1, p. 104.
- [89] J. A. ZUKAS et W. P. WALTER (éds.) – *Explosive effects and applications*, Springer, 1998.

Table des figures

1.1	Domaines du spectre électromagnétique (extrait de [9])	6
1.2	Intensité d'une source dans une direction donnée	7
1.3	Courbes de Planck pour différentes températures	8
1.4	Emission/Absorption d'un élément de volume de gaz	11
1.5	Processus d'absorption et d'émission entre deux niveaux d'énergie . .	13
1.6	Spectre du CO_2 à pression et température ambiantes (source NIST Chemistry Webbook)	13
1.7	Régimes de diffusion pour la diffusion indépendante et dépendante [77]	16
2.1	Propagation de l'onde de détonation dans un explosif au repos	22
2.2	Courbe de Crussard et droites de Rayleigh dans le modèle CJ	23
2.3	Profil de l'onde idéale selon le modèle CJ	24
2.4	Courbes d'Hugoniot et droites de Rayleigh dans le modèle ZND	26
2.5	Profil de l'onde idéale selon le modèle ZND	26
3.1	Schéma du dispositif d'amorçage par impact plan	30
3.2	Modèle classique de la TCD selon Chaiken	30
3.3	Schéma de la 1 ^{re} étape de la TCD dans le NM	32
3.4	Schéma de la 2 ^e étape de la TCD dans le NM	32
3.5	Schéma de la 3 ^e étape de la TCD dans le NM	33
5.1	Schéma de principe des essais de détonation	47
5.2	Propriétés optiques du LiF (fournisseur OPA)	48
5.3	Dispositif expérimental d'impact plan sur une cible de NM	49
5.4	Montage de la cible à l'extrémité du lanceur	49
6.1	Spectre de transmission du NM pour une épaisseur de 25 mm	51
6.2	Spectre de transmission du NM pour différentes épaisseurs	53
6.3	Chaîne de mesure de spectroscopie d'émission	56
6.4	Schéma de la tête à doublets achromatiques	57
6.5	Schéma de la tête à miroirs à une sortie de fibre	58
6.6	Photo de la tête à miroirs et des embouts à 1 ou 2 fibres	58

6.7	Courbe d'efficacité du réseau blasé à $0,5 \mu m$	59
6.8	Photo du photomultiplicateur multianodes	60
6.9	Courbe de réponse du photomultiplicateur multianodes	60
6.10	Dispositif de spectroscopie d'émission	61
6.11	Banc d'étalonnage du dispositif de spectroscopie d'émission	62
6.12	Cartographie de l'erreur relative de la tension mesurée en fonction de la température et de la longueur d'onde lors de la calibration	63
6.13	Cartographie de l'erreur relative de la luminance mesurée en fonction de la température et de la longueur d'onde	64
6.14	Cartographie de l'erreur relative de la température de luminance en fonction de la température et de la longueur d'onde lors de la calibration	65
6.15	Courbe d'efficacité du réseau blasé à $1,4 \mu m$	66
6.16	Courbe de réponse de la barrette de détecteurs HgCdZnTe entre 2 et $11 \mu m$	66
6.17	Courbe de réponse du détecteur InGaAs	67
6.18	Dispositif de spectroscopie d'émission avec les détecteurs InGaAs	68
6.19	Signaux obtenus par spectroscopie d'émission avec les détecteurs InGaAs lors d'un essai d'impact plan à $8,6 GPa$	68
7.1	Spectre de transmission du NM dans le domaine visible pour une épaisseur de 25 mm	75
7.2	Profils de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01045 à $8,6 GPa$ sur une cible de NM de 25 mm	78
7.3	Profils de température de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01045 à $8,6 GPa$ sur une cible de NM de 25 mm	80
7.4	Profils de température de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors du tir CA01020 à $8,6 GPa$ sur une cible de NM de 25 mm	80
7.5	Comparaison des temps caractéristiques obtenus lors de différents essais d'impact plan sur des cibles de NM	81
7.6	Profils de luminance obtenus par pyrométrie lors du tir CA97019 à $8,6 GPa$ sur une cible de 25 mm de NM [50]	82
7.7	Profils de température de luminance obtenus par pyrométrie lors du tir CA97019 à $8,6 GPa$ sur une cible de 25 mm de NM [50]	83
8.1	Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir CA01020 à $8,6 GPa$ sur une cible de 25 mm de NM en fonction du temps et de la longueur d'onde	86
8.2	Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir CA01020 à $8,6 GPa$ sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour différents instants caractéristiques (SD, superdétonation)	87

8.3	Spectres de température de luminance obtenus par spectrométrie d'émission lors du tir <i>CA01020</i> à 8,6 <i>GPa</i> sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour différents instants caractéristiques	88
8.4	Spectres de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour chaque essai à 8,6 <i>GPa</i> sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour la détonation établie	89
8.5	Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour plusieurs essais à 8,6 <i>GPa</i> à différents instants de la TCD	90
8.6	Profils de luminance obtenus par spectrométrie d'émission pour plusieurs essais à 8,6 <i>GPa</i> à différents instants de la TCD	91
8.7	Profils de luminance obtenus par pyrométrie multi-longueurs d'onde et par spectrométrie d'émission lors des tirs <i>CA97019</i> et <i>CA00076</i> à 8,6 <i>GPa</i> sur une cible de 25 mm de NM en fonction de la longueur d'onde pour la détonation établie	92
8.8	Spectre d'émission du NM soumis à un choc de 16,7 <i>GPa</i> , 600 <i>ns</i> après l'entrée du choc. Extrait de [34]	93
8.9	Spectre d'émission du lors de la TCD du NM à 8,5 <i>GPa</i> (amorçé par une charge de NM pour deux épaisseurs de plaque de transfert 25 et 75 <i>mm</i>). Extrait de [62]	94
8.10	Position des principales raies d'absorption des espèces présentes dans les produits de détonation [58, 42]	95
8.11	Spectre de transmission de H_2O à pression et température ambiantes, modélisé avec la base de données HITEMP. Résolution 10 <i>nm</i>	95
8.12	Comparaison des spectres de luminance avant et après l'interaction de l'onde de détonation avec la fenêtre	97
8.13	Schéma de la détonation établie se propageant dans la cellule lorsque le coefficient d'absorption provient d'une couche d'épaisseur constante à l'arrière du front	97
8.14	Détonation établie se propageant dans la cellule	98
8.15	Influence de la valeur du coefficient d'absorption monochromatique sur la luminance d'une détonation autonome stationnaire soutenue, la température étant fixée à 3600 <i>K</i>	100
8.16	Calcul du rapport $\frac{L_{\lambda, mesure}(l)}{L_{\lambda}^0(T)}$ ou émissivité apparente pour plusieurs températures	100
8.17	Calcul de l'épaisseur optique en détonation établie à différentes températures	101
8.18	Calcul du coefficient d'absorption en détonation établie à différentes températures	102

8.19	Onde de superdétonation se propageant dans la cellule, à l'arrière du front de choc	103
8.20	Origine du flux mesuré lors de la propagation de l'onde de superdétonation	104
8.21	Calcul du coefficient d'absorption lors de la superdétonation à différentes températures	104
8.22	Mesures pyrométriques lors d'un essai de réverbération de chocs sur une épaisseur de 2 mm de NM	106
8.23	Transmission du NM pour des épaisseurs de 2, 5 et 10 mm	106
8.24	Provenance du flux suivant le domaine de longueurs d'onde	107
8.25	Indice complexe de réfraction des particules de suies pour différentes études : 1 - Lee and Tien (polystyrène et plexiglas, 2 - Stull and Plass (carbone amorphe), 3 - Dalzell et Sarofim (propane), 4 - Howarth <i>et. al</i> (pyrographite à 300 K), 5 - Felske <i>et. al</i> (propane) [58]	109
8.26	Coefficient d'extinction pour des particules de carbone cylindriques et sphériques [58]	109
8.27	Coefficient d'absorption des particules de carbone dont la fraction volumique varie, d'après le modèle de Rayleigh	110
8.28	Coefficient d'absorption des particules de carbone d'après le modèle empirique $K_\lambda = \frac{Cf_v}{\lambda^a}$, $C = 2$, a varie	111
8.29	Coefficient d'absorption des particules de carbone cylindriques et sphériques de différents diamètres d'après les calculs de Lee et Tien, de fraction volumique 0.06	111
8.30	Luminances calculées avec le coefficient d'absorption des particules de carbone déduit du modèle de Rayleigh	112
8.31	Forme des bandes d'absorption du modèle exponentiel large bande	114
8.32	Variation des paramètres du modèle exponentiel large bande pour une raie symétrique	114
8.33	Calcul du coefficient d'absorption de l'eau avec les raies entre 0,65 et 0.98 μm	115
8.34	Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0.98 μm , $C = 10$	116
8.35	Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0.98 μm , $C = 1000$	117
8.36	Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0.98 μm , $C = 1$	117
8.37	Luminances calculées avec le coefficient d'absorption de l'eau avec des raies entre 0,65 et 0.98 μm , $C = 10$ et le coefficient d'absorption du carbone selon le modèle de Rayleigh, $f_v = 6.10^{-6}$	118

8.38	Comparaison des mesures de spectroscopie en détonation établie avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de détonation de 17 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T=3600 K$)	120
8.39	Comparaison des mesures de spectroscopie après la formation de la superdétonation avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de réaction de 8 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T=3200 K$) .	121
8.40	Comparaison des mesures de spectroscopie après la formation de la superdétonation avec les luminances synthétiques pour une épaisseur de produits de réaction de 8 mm ($C = 10$, $f_v = 6.10^{-6}$, $T=3500 K$) .	122
8.41	Profils de luminance obtenus par spectroscopie d'émission lors d'un tir sur une cible de 65% tétranitrométhane - 35% nitrobenzène de 4 mm d'épaisseur	126
8.42	Comparaison des profils de luminance en fonction de la longueur d'onde en détonation établie lors d'essai sur le NM et le mélange 65% tétranitrométhane - 35% nitrobenzène	127
9.1	1 ^{re} étape de la TCD : une onde de choc se propage dans le NM	134
9.2	Profils de luminance non bruités et bruités calculés dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue pour 16 longueurs d'onde	138
9.3	Profils de luminance monochromatique normalisée calculés dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue pour 16 longueurs d'onde	139
9.4	Profils de température dans le cas d'une détonation autonome stationnaire soutenue	140
9.5	Profils de température dans le cas d'une détonation stationnaire avec détente des produits issus de la détonation	141
9.6	Profils de température dans le cas simple d'une superdétonation . . .	141
10.1	Grille des coefficients d'absorption normalisés fournie	144
10.2	Résultat de l'interpolation des valeurs du coefficient d'absorption monochromatique en fonction de la température	145
10.3	Erreur relative entre la table fournie et l'estimation par produit tensoriel des moyennes	146
10.4	Valeurs singulières pour les différentes paramétrisations dans le cas 1	149
10.5	Valeurs singulières pour les différentes paramétrisations dans le cas 2 (en haut) et le cas 3 (en bas)	150
11.1	Tracés de la fonction coût normalisée $j(L^{cal})$ sur un segment ayant servi à calculer les mesures dans le cas 1 avec un point initial de 3850 K (en haut) et un point initial de 4500 K (en bas)	152

11.2	Diagramme des stratégies d'optimisation directe (d1) et hiérarchique (h1-2-3)	153
11.3	Diagramme des étapes de la résolution inverse	153
11.4	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption recherchés en fonction du temps dans le cas 1, $T=3600K$	154
11.5	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption initiaux dans le cas 1	156
11.6	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation directe dans le cas 1	157
11.7	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 1	158
11.8	Tracés des profils exacts de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 2	159
11.9	Tracés des profils modélisés de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 2, et la grille en 2D des coefficients d'absorption	160
11.10	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 2 pour la recherche des profils exacts	161
11.11	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation hiérarchique dans le cas 2 pour la recherche des profils modélisés	162
11.12	Tracés des profils exacts de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 3	163
11.13	Tracés des profils modélisés de température et de coefficient d'absorption recherchés dans le cas 3 et la grille en 2D des coefficients d'absorption	164
11.14	Tracés des profils de température et de coefficient d'absorption solution de l'optimisation directe dans le cas 3 pour la recherche des profils modélisés	166
11.15	Profils de température obtenus avec GODLAG99 (logiciel de calcul lagrangien unidimensionnel hydroréactif) lors de la transition choc-détonation du NM.	168

Liste des tableaux

1.1	Unités usuelles des différents termes de la formule de Planck et valeurs des constantes C_1 et C_2	8
2.1	Propriétés du nitrométhane utilisé (marque FLUKA)	21
2.2	Composition chimique des produits de réaction issus d'une détonation autonome stationnaire du NM calculée avec CHEETAH et l'équation BKWC. P en GPa , T en K et v en cm^3/g	25
3.1	Température du front de détonation du NM d'après des résultats expérimentaux. Résultats tirés de [47, 49].	34
3.2	Température du front de détonation du NM d'après des résultats théoriques. Résultats tirés de [47, 49].	35
3.3	Températures sous choc du NM : T_A température calculée avec C_v et $\gamma\rho = cte$, T_B avec $C_v = f(T)$ et $\gamma\rho = cte$, T_C selon modèle de Winey, T_D avec $C_v = f(T)$ et $(\delta P/\delta T)_v = cte$	35
7.1	Caractéristiques des essais de détonation pour différentes mesures optiques : 1-pyrométrie 6 longueurs d'onde, 2-spectroscopie d'émission dans le visible, d-tête à doublets, m-tête à miroirs. Le tir de référence de la thèse de Léal-Crouzet est le CA97019.	76
8.1	Températures pour différents instants de la transition choc-détonation	87
8.2	Positions et intensité des raies d'absorption de la vapeur d'eau dans le domaine visible-proche infrarouge	113
8.3	Composition chimique des produits de réaction issus d'une détonation autonome stationnaire d'un mélange 65% tétranitrométhane 35% nitrobenzène, calculée avec CHEETAH et l'équation BKWC. P en GPa , T en K et v en cm^3/g	124
10.1	Nombres de paramètres pour la paramétrisation réduite de la température	148
11.1	Résultats de l'inversion dans le cas 1	154

11.2 Résultats de l'inversion de profils bruités dans le cas 1	155
11.3 Résultats de l'inversion dans le cas 2	161
11.4 Résultats de l'inversion dans le cas 3	165