



HAL
open science

Effet des paramètres physiques et d'additifs sur l'allumage du n-décane par claquage laser non résonant

Nabil Mokrani

► **To cite this version:**

Nabil Mokrani. Effet des paramètres physiques et d'additifs sur l'allumage du n-décane par claquage laser non résonant. Autre. Université d'Orléans, 2016. Français. NNT : 2016ORLE2062 . tel-01713092

HAL Id: tel-01713092

<https://theses.hal.science/tel-01713092v1>

Submitted on 20 Feb 2018

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.

**ÉCOLE DOCTORALE
ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS**

LABORATOIRE PRISME

THÈSE présentée par :
Nabil MOKRANI

soutenue le : [09 Décembre 2016]

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline/ Spécialité : **Energétique**

**Effet des paramètres physiques et d'additifs sur
l'allumage du n-décane par claquage laser non
résonant**

THÈSE dirigée par :

Philippe GILLARD Professeur, Université d'Orléans

RAPPORTEURS :

Arnaud BULTEL Maître de Conférences HDR, Université de Rouen

Marc BELLENOUE Professeur, ISAE-ENSMA

JURY :

Fabien HALTER Professeur, Université d'Orléans

Luis LE MOYNE Professeur, Université de Bourgogne et directeur de l'ISAT

Steve RUDZ Maître de Conférences, Université d'Orléans

Avant-Propos

Ce travail de thèse a été financé grâce à une bourse de la région Centre–Val de Loire et un support pour le fonctionnement fourni par le Labex Caprysses.

Remerciements

La présente étude n'aurait pas été possible sans les fonds de la Région Centre, le Laboratoire PRISME, l'université d'Orléans et encore le soutien de ma famille et certaines personnes. Cependant, je voudrais les prier d'accueillir ici tous mes sentiments de gratitude qui viennent du fond de mon cœur, en acceptant mes remerciements.

Mes premiers remerciements vont à mon directeur de thèse, le professeur Philippe GILLARD, qui m'a accompagné tout au long de ces trois années. Merci infiniment Philippe pour l'attention que vous avez portée sur l'encadrement de ma thèse. Je remercie aussi les membres de mon jury pour avoir fait le déplacement de loin, merci de m'avoir prodigué d'utiles conseils sur mon sujet d'étude et sur mon rapport de thèse. Mes remerciements vont aussi à tous mes collègues fonctionnaires, doctorants, docteurs, maîtres de conférences et professeurs, d'une manière ou d'une autre ils ont joué un rôle certain dans l'accomplissement de ce travail.

J'adresse un retentissant hommage à ma famille, le premier c'est à mon père Ali, qui entre autres, s'est déplacé de loin avec ma sœur Nadjià pour assister à ma présentation de soutenance, et encore à ma mère Tassadit, pour avoir consolidé ma vie d'amour, de bravoure et de vivacité au travail. Un grand merci à ma sœur Lila pour m'avoir épaulé pendant les moments difficiles sans oublier de remercier mon frère Djamel et mes sœurs Baya, Ouiza, Nouara, Saida et Horia pour leurs encouragements.

Mes remerciements vont encore à tous mes profs d'universités, de lycée, de collège et de primaire et aussi à tous mes amis.

Merci beaucoup.

TABLE DES MATIERES

Contexte et objectif de la thèse	1
Plan de thèse	4
Bibliographie	6
Chapitre (I) : Combustion : applications, définitions fondamentales et techniques expérimentales	
Avant-propos	11
1 Combustion	11
2 Applications industrielles du phénomène	13
2.1 Industrie (transformer l'énergie, sûreté, fonderie, procédé de transformation)	14
2.2 Propulsion terrestre et maritime	15
2.3 Propulsion aérienne et spatiale	17
2.4 Gaz à effet de serre	20
2.5 Directives de contrôle de la pollution	22
3 Technologies de baisse de consommation et de dépollution	26
3.1 Recirculation des gaz EGR	26
3.2 Système turbocompresseur	28
3.3 Systèmes anti-pollution	30
3.3.1 Catalyseurs	30
3.3.2 Filtre à particules (FAP)	35
4 Systèmes d'amorçage pour mélanges réactifs	37
4.1 Amorçage par auto inflammation	37
4.2 Amorçage par bougie électrique	39
4.3 Amorçage par torche plasma	46
4.4 Décharge micro-onde/RF.	48
4.5 Amorçage par laser	49
4.5.1 Allumage par claquage résonant (R L I S)	50
4.5.2 Allumage par claquage non-résonant (L I S)	51
4.5.3 Allumage photochimique par laser	52
4.5.4 Allumage par thermalisation laser	53
5 Physique des flammes en régime laminaire	53
5.1 Flamme de pré mélange	54
5.2 Vitesse de flamme laminaire	55
5.3 Epaisseur de flamme	58
5.4 Limites d'inflammabilité des mélanges réactifs	60
5.5 Energie minimale d'inflammation	62
5.6 Rayon critique d'allumage	63
5.7 Flamme de diffusion	64
6 Technique de détection, de diagnostic et de mesure en combustion	65
6.1 Visualisation directe par camera rapide (non intrusive)	66
6.2 Visualisation par fluorescence induite par laser (PLIF) (non intrusive)	67
6.3 Incandescence Induite par Laser (LII) (diagnostic des suies)	70
6.4 Visualisation par les techniques de gradient (ombroscopie, Schlieren...)	71
6.5 Spectroscopie (LIBS) et détection des espèces	73
6.6 Temps d'induction chimique	74

6.7	Mesure de température	74
6.8	Mesure de la pression	76
6.9	Mesure de l'intensité lumineuse de la flamme	77
6.10	Techniques physico chimiques	79
7	Conclusion	80
	Bibliographie (I)	81
	Table des Figures (I)	86
	Table des Tableaux (I)	88

Chapitre (II) : Allumage par focalisation laser et plasma

	Avant-propos	93
1	Composants optiques	94
1.1	Miroirs	95
1.2	Lentilles	96
1.3	Aberrations optiques	96
1.3.1	Aberrations géométriques	98
1.3.2	Aberrations chromatiques	98
2	Laser	98
2.1	Modèle mathématique des pulses lasers ultracourts	101
2.2	Profil spatial du faisceau laser	102
2.3	Caractéristiques d'un faisceau laser	102
2.4	Focalisation d'un faisceau laser Gaussien	104
2.5	Volume focal	105
2.6	Effet des grandeurs physiques sur l'irradiance focale (λ, M^2, f, d)	106
3	Interaction champ laser intense - matière	108
3.1	Ablation laser (solides et liquides)	109
3.2	Claquage laser d'un gaz	110
3.3	Processus et physique d'un claquage laser	111
3.3.1	Régime impulsif	112
3.3.2	Transition plasma	118
3.3.3	Régime de relaxation (régime thermique)	119
3.4	Pertes d'énergie pendant les différents régimes (L_e)	120
4	Génération de l'onde de choc et expansion	123
4.1	Taille du plasma créé par laser (onde plasma)	125
4.2	Détachement de l'onde hydrodynamique	126
4.3	Effondrement du choc et allumage	128
5	Quelques effets influençant le claquage et l'expansion	132
5.1	Effet de la nature des mélanges (gaz/liquide)	132
5.2	Effet de l'énergie déposée sur l'expansion du choc	133
5.3	Délai de claquage, effet de la température et de la distance focale	134
5.4	Effets du type de gaz et de la pression sur la vitesse d'expansion	135
5.5	Observation d'un claquage laser par spectroscopie d'émission	135
5.6	Influence de la durée de l'impulsion laser	137
5.7	Effet de la pression sur le profil de pulse transmis	138
6	Conclusion	140
	Bibliographie (II)	141
	Table des figures (II)	145

Chapitre (III) : Etude expérimentale des effets des paramètres physiques et thermodynamiques sur l'allumage laser

Avant-propos	152
1 Dispositif expérimental et expérimentations	152
1.1 Banc expérimental (LIQUIM)	152
1.1.1 Chambre de combustion	154
1.1.2 Laser ND-YAG 360 mJ	155
1.1.3 Pompe à vide	155
1.1.4 L'instrumentation de mesure	156
1.2 Plan d'expérience et protocole expérimental	159
2 Résultats des expériences (effets des conditions initiales)	160
2.1 Claquages et taux d'absorption du $C_{10}H_{22}/(N_2+O_2)$	160
2.1.1 Influence de la pression sur l'absorption laser	161
2.1.2 Influence de la pression et la richesse sur le seuil de claquage	162
2.1.3 Influence de la pression sur la transmission laser	163
2.1.4 Loi de Beer Lambert et atténuation du faisceau laser	164
2.1.5 Effet de la composition du mélange sur l'absorption	167
3 Statistique sur les claquages et les allumages laser	170
3.1 Effets de la composition des mélanges sur les statistiques de claquage	170
3.1.1 Loi statistique en en énergie incidente	171
3.1.2 Loi statistique en en énergie absorbée	172
3.2 Effet de la focale et la richesse sur l'Allumage laser ($C_{10}H_{22}/N_2+O_2$)	173
3.2.1 Statistiques sur l'énergie incidente	173
3.2.2 Statistiques sur l'énergie absorbée	174
4 Statistiques sur l'effet de la pression sur le claquage et l'allumage laser	174
4.1.1 Mélange pauvre ($\phi = 0,65$ et $f = 100$ mm)	175
4.1.2 Mélange proche stœchiométrie ($\phi = 1,1$ et $f = 100$ mm)	177
5 Energie minimale d'allumage par laser (MIE)	180
5.1.1 Etude (MIE) avec focale 150 mm	180
5.1.2 Etude (MIE) avec focale 100 mm	181
5.2 Energie seuil d'allumage mélanges pauvres et proche stœchiométrie	182
6 Analyse des signaux de pression de combustion (n-décane/ N_2+O_2)	184
6.1 Effet de la richesse ($P_0=1$ bar, $T=347$ K et $f = 100$ mm)	185
6.1.1 Pressions maximales de combustion	185
6.1.2 Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)	186
6.1.3 Gradients de pressions maximaux et temps caractéristiques	187
6.2 Effets de la pression initiale ($T = 347$ K, $\phi = (0,65$ et $1,1)$)	188
6.2.1 Pressions de combustion maximales	188
6.2.2 Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)	189
6.2.3 Valeurs des gradients maximaux de pressions	189
6.2.4 Moyennes de pressions maximales et des gradients maximaux	190
6.3 Modèle de Bradley et vitesse de flamme laminaire (S_L)	191
6.3.1 Effet de la richesse ($P_0 = 1$ bar $T = 347$ K et $f = 100$ mm)	193
6.3.2 Effet de la Pression sur la vitesse de flamme	193

7	Signaux de photodiodes de la combustion (n-décane/N ₂ +O ₂)	194
7.1	Estimation des délais d'allumage par signaux de photodiodes	196
7.2	Effet de la richesse sur l'émission de la flamme (mesures photodiodes)	198
8	Spectroscopie des claquages et des flammes de (n-décane/N ₂ +O ₂)	199
8.1	Estimation des délais d'induction par spectroscopie d'émission	200
8.2	Spectroscopie de claquage et de la flamme	201
8.2.1	Espèces ionisées de claquage	202
8.2.2	Estimation de la température électronique	202
8.2.3	Espèces radicalaires et émission de la flamme	204
8.3	Effet de la richesse sur la spectroscopie de la flamme	205
9	Visualisations Schlieren par caméra rapide (E _{inc} = 100 mJ)	207
9.1	Effet de richesse (P ₀ = 1 bar, E _{inc} = 100 mJ)	207
9.2	Effet de la pression (ϕ = 1.1, E _{inc} = 100 mJ)	209
10	Conclusion	211
	Bibliographie (III)	213
	Table des figures (III)	215
	Table des tableaux (III)	217

Chapitre (IV) : Effets des additifs H₂O et Ar sur l'allumage du C₁₀H₂₂, C₂H₆O et allumage laser de quelques familles de combustibles

	Avant-propos	219
1	Introduction	219
2	Plan des expériences	220
3	Résultats des Expériences	221
3.1	Spectroscopie de l'argon et de la vapeur d'eau	221
3.2	Signaux de photodiode à l'échelle du nanomètre	223
3.3	Signaux de photodiode aux temps de claquage laser.	225
3.4	Signaux photodiode des allumages laser	226
3.5	Délais d'allumage : effet de l'argon	226
3.6	Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau H ₂ O	227
3.6.1	Statistiques paramétrées en énergie incidente	227
3.6.2	Statistiques paramétrées en énergie absorbée (C ₁₀ H ₂₂ +N ₂ +O ₂)	229
3.6.3	Effet des impuretés de C ₁₀ H ₂₂ et de la qualité du comburant	230
3.7	Effets de la vapeur d'eau (H ₂ O+C ₁₀ H ₂₂ +N ₂ +O ₂)	232
3.7.1	Statistiques paramétrées en énergie incidente	232
3.7.2	Statistiques paramétrées en énergie absorbée	233
3.8	Effet de l'argon et effet combiné avec H ₂ O sur un alcool (C ₂ H ₆ O)	233
3.8.1	Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente	234
3.8.2	Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée	236
3.9	Effets de la vapeur d'eau seule (H ₂ O+C ₂ H ₆ O+N ₂ +O ₂)	237
3.9.1	Statistiques paramétrées en énergie incidente	237
3.9.2	Statistiques paramétrées en énergie absorbée	237
3.10	Allumage laser de quelques combustibles (effet de la liaison)	238
3.10.1	Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente	239
3.10.2	Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée	241
4	Conclusion	242
	Bibliographie (IV)	244

Table des figures (IV)	245
Table des tableaux (IV)	245

Chapitre (V) : Influence de la vapeur d'eau et de l'argon sur la cinétique chimique de combustion de C₁₀H₂₂

Avant-propos	253
1 Cinétique chimique	253
2 Mécanisme réactionnel	254
2.1 Processus d'amorçage	254
2.2 Processus de ramification (Chain branching)	255
2.3 Processus de propagation	255
2.4 Processus de terminaison	257
3 Construction d'un schéma cinétique	257
4 Modèles d'oxydation du n-décane	259
5 Calculs 0D sur quelques schémas cinétiques du C ₁₀ H ₂₂	260
5.1 Chemkin Pro et procédures de simulation	260
5.2 Données cinétiques	261
5.3 Mécanisme squelette de Chang (BT et HT)	262
5.4 Mécanisme de Honnet (BT et HT)	262
5.5 Mécanisme de Dagaut (HT)	262
5.6 Mécanisme de (Sarathy et al., 2011) (BT et HT)	262
6 Cinétique de l'oxydation du C ₁₀ H ₂₂ à travers les 4 schémas	263
6.1 Effet de la richesse sur l'oxydation du n-décane à 1000 K	263
6.2 Effet de la richesse sur la vitesse de flamme laminaire	265
7 Influence de la vapeur d'eau à travers la cinétique chimique du n-décane	266
7.1 Effet sur les délais d'allumage (T ₀ =1000 K)	266
7.2 Effet sur la vitesse de flamme (500 K)	268
7.3 Effet sur la pression et la température maximale	268
8 Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau	270
8.1 Effet sur les délais d'allumage	270
8.2 Effets combinés sur la pression et la température maximale	271
9 Conclusion	272
Bibliographie (V)	273
Table des figures (V)	274
Table des tableaux (V)	274

Chapitre (VI)	277
CONCLUSION	278
PERSPECTIVES	281

Autres

ANNEXE	283
CV de Nabil MOKRANI	285

Contexte et objectif de la thèse

Contexte et objectif de la thèse

Les obstacles économiques et environnementaux représentent une problématique généralisée à l'échelle mondiale (COP21). De ce fait, des règles de plus en plus strictes sont imposées par les instances protégeant la nature en matière de consommation des ressources fossiles (entre autres les carburants) et d'émissions de polluants (gaz d'échappement). Les polluants proviennent de diverses industries utilisant des fours industriels et sont pour la majorité d'entre eux émis par le secteur des transports. Ceux qui proviennent des moteurs des véhicules terrestres et maritimes et des moteurs du secteur aérien (Moteurs à Combustion Interne et Externe) causant divers types de pollution de l'air (CO_2 , SO_x , NO_x , THC, suies, particules, etc.) sont particulièrement visés.

À l'heure actuelle, la recherche se concentre de plus en plus sur les nouvelles technologies de moteurs fonctionnant avec des mélanges pauvres et proches des conditions stœchiométriques avec recirculation des gaz d'échappement EGR (Lilley, 2003). L'utilisation des turbocompresseurs est mise à contribution pour maximiser l'efficacité et la puissance développée par les moteurs. Par ailleurs, il est nécessaire de prendre en main la combustion en la contrôlant à l'aide de plusieurs techniques. On peut citer par exemple l'accélération des réactions de combustion en utilisant diverses solutions, telles que des catalyseurs (oxydation catalytique) (Roberto Fiorenza et al, 2016)(Holbrook et al., 2011)(Monteiro et al., 2015) ou l'injection et la création des radicaux à haute énergie tels que O_3^* (F. Foucher et al, 2013) OH^* , CH^* et les NO^* . Ces radicaux peuvent également être produits par le claquage laser multipoint à haute intensité ou par des bougies d'allumages électriques multipoint. Le préchauffage et l'augmentation de la pression d'admission peuvent aussi être des points sur lesquels on peut se concentrer en considérant les mélanges pauvres et en utilisant des systèmes de recirculation de la chaleur (Lilley, 2003). Ces systèmes peuvent améliorer l'efficacité thermique en réalisant une combustion stable des mélanges pauvres et en faisant augmenter les limites d'inflammabilité des mélanges dans le but de diminuer la consommation et les émissions de polluants et de gaz à effet de serre.

Plusieurs études dans la littérature présentent les concepts laser et leurs utilisations. La première étude a été réalisée en 1960 par Maiman (Maiman, 1960). Cette étude porte le titre "Generation of coherent radiation by photoexcited ruby". Juste après cette étude, en 1963, une première étude a été réalisée sur le claquage laser dans l'air (Meyerland & Haught, 1963). Par la suite, cette technologie a été développée pour plusieurs applications en physique, en chimie et en

mécanique. La plus importante qui nous intéresse et qui concerne notre thématique de recherche est la possibilité de son utilisation comme système d'allumage des mélanges réactifs utilisés pour la propulsion terrestre et aérienne (Steven A. O'Briant et al, 2016)(Céline Cardin et al, 2013)(Morsy, 2012)(Kumar Srivastava et al, 2009). Toutes les études ont montré que l'allumage par claquage laser facilite une meilleure caractérisation et un bon contrôle de la combustion grâce à la focalisation d'un faisceau laser intense de durée de pulse de l'ordre de la nanoseconde. Cette focalisation offre des intensités d'irradiance de l'ordre de 10^{10} à 10^{12} W/cm² permettant de claquer n'importe quelle substance à l'état gazeux. De ce fait, cette technique offre la possibilité d'examiner facilement le comportement de plusieurs mélanges gazeux inertes et réactifs sur le taux d'absorption de l'énergie laser. Elle permet de montrer l'influence des différents paramètres thermodynamiques (*pression, température*), physiques (*taille du volume focal, énergie incidente de la source laser et énergie absorbée par le mélange gazeux*) sur l'aptitude du mélange à absorber les photons laser et à conduire à la formation d'un plasma froid amorceur de combustion si il y a suffisamment de radicaux primaires créés et si le mélange est réactif.

D'un autre côté, l'allumage par bougie électrique ne permet pas une caractérisation exacte de la phase d'allumage (S. P. Moffett et al, 2007). Ce système se distingue par la présence de pertes thermiques colossales qui ne peuvent pas être évaluées rigoureusement pour quantifier l'énergie de claquage transférée au mélange gazeux (TERNEL, 2006). En conséquence, lorsque des bougies d'allumage sont utilisées pour l'étude des effets de certains paramètres liés au claquage et à la phase d'allumage, on retrouve des difficultés telles que des perturbations et des grandes fluctuations des valeurs mesurées de plusieurs paramètres (délai d'allumages, vitesse de flamme laminaire, spectroscopie de claquage...).

L'allumage par laser offre aussi la possibilité de montrer l'influence des impuretés comprises dans l'air et dans le combustible, même avec de faibles concentrations (nous le verrons avec ~6% dans le n-décane, à partir de 0.5% dans l'air. Voir les Chapitres III et IV). La même chose peut être faite du point de vue de la cinétique chimique, en considérant des additifs comme de la vapeur d'eau et de l'argon.

Ce système a été utilisé dans plusieurs études expérimentales en laboratoire pour déterminer les effets des paramètres optiques tels que la focale, la longueur d'onde, le temps d'impulsion ou l'influence du profil de faisceau laser (Tran X. Phuoc, 1999). Il a également été utilisé pour examiner l'influence de la vitesse d'écoulement et de la température sur l'allumage laser du gaz naturel (J. Griffith et al, 2015). Dans les travaux de Griffiths et al, deux principaux paramètres

initiaux ont été explorés, à savoir les effets de la température et l'effet de la richesse sur l'allumage par claquage laser.

L'objectif de notre étude expérimentale est d'évaluer la sensibilité de quelques mélanges gazeux, principalement du n-décane (composant principal du kérosène)/air, vis-à-vis des claquages laser amorceurs et non amorceurs de combustion. Pour cela, nous ferons varier les paramètres initiaux comme la pression, la focale et la composition du mélange en jouant sur la concentration du combustible et sur la concentration des additifs considérés dans l'étude. Ceci sera réalisé afin de caractériser la phase d'allumage et la combustion en fonction de l'énergie incidente et de l'énergie absorbée par chaque mélange. L'ensemble des résultats portés par cette thèse constitue une base de données sur le carburant $C_{10}H_{22}$ pour les scientifiques travaillant sur la cinétique chimique et les institutions évaluant les risques d'explosion en prenant en considération les valeurs des énergies minimales d'inflammation du n-décane. Certains résultats de la thèse peuvent répondre aux attentes des industriels de la filière motoriste en montrant l'effet de la pression et son influence sur les valeurs des délais d'allumages mesurés de plusieurs façons mais aussi l'influence des additifs courants et naturels sur la combustion du mélange n-décane dans l'air sec ou avec additifs Ar et vapeur d'eau ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2+H_2O+Ar$).

Plan de thèse

Partie 1: Cette partie englobe deux chapitres (Chapitre I et Chapitre II) qui sont consacrés aux définitions et à la bibliographie des deux phénomènes étudiés pendant ces trois années de thèse, à savoir la combustion et ses applications, le contexte énergétique que celle-ci représente à travers le monde, ainsi que les contraintes et les restrictions en termes de directives de contrôle. Le premier chapitre présente les technologies nouvelles intégrant les moteurs en circulation et les différents systèmes d'amorçage de combustion. Il donne une base généraliste de la physique des flammes laminaires. Ce dernier se finalise en présentant des techniques expérimentales de mesures et de visualisation appliquées à la combustion et aux milieux réactifs en général. Le Chapitre II est dédié à la phénoménologie de la focalisation laser, aux plasmas de claquage laser, à leurs caractérisations et aux effets des paramètres physiques influençant le plasma et les phénomènes de propagation, aussi bien le développement que la naissance des fronts de flammes primaires. Ces deux chapitres contiennent une base bibliographique solide permettant d'appréhender les deux champs scientifiques plasma et combustion.

Partie 2 : Cette partie concerne le Chapitre III qui présente le dispositif expérimental, le plan des expériences et le protocole expérimental utilisé durant tous les essais qui se sont étalés sur 3 années. Ce dernier présente aussi la partie résultat qui montre l'influence de la composition du mélange sur le claquage et l'allumage laser. Les autres paramètres physiques, à savoir la focale et la pression seront examinés au regard de leur influence sur les caractéristiques des phases allumage et de combustion (probabilité de claquage/allumage, MIE, seuil d'énergie d'allumage, délai d'allumage, pression de combustion, vitesse de flamme laminaire). Des diagnostics complémentaires comme la spectroscopie de claquage et de la flamme et la visualisation Schlieren du phénomène d'allumage laser seront également mis à contribution.

Partie 3 : Cette partie englobe les deux chapitres (Chapitre IV + Chapitre V). Le premier, i.e. le chapitre IV, présente un deuxième plan d'expériences consacré à montrer l'influence des impuretés et des deux additifs Ar et H₂O, seuls ou combinés. Des mesures spectroscopiques et des mesures par photodiode sont effectuées avec

différentes échelles temporelles pour enregistrer les émissions lumineuses des phénomènes plasmas et combustions. Ce chapitre présente l'influence de ces additifs sur les probabilités d'allumage, en prenant en compte une étude stochastique sur les allumages réussis en fonction de l'énergie incidente et de l'énergie absorbée. Une partie des expériences est réalisée pour montrer l'influence de quelques liaisons chimiques et de la longueur de la chaîne carbonée du combustible sur l'allumage laser. Le chapitre V complète le quatrième chapitre d'un point de vue cinétique chimique en s'intéressant à 4 mécanismes cinétiques du n-décane en regardant les résultats en réacteur homogène donnés par chacun de ces mécanismes et en incorporant la vapeur d'eau et l'argon comme oxydants dans le réactif lorsque cela est possible. Des résultats de l'influence des additifs H₂O et Ar sur les délais d'allumage et les caractéristiques adiabatiques finales de combustion sont donnés. L'effet de la vapeur d'eau sur la vitesse de flamme laminaire est aussi présenté en considérant deux mécanismes.

Bibliographie

- Céline Cardin et al. (2013). Experimental analysis of laser-induced spark ignition of lean turbulent premixed flames. *Comptes Rendus Mécanique*, 341(1–2), 191–200. <http://doi.org/10.1016/j.crme.2012.10.019>
- F. Foucher et al. (2013). Influence of ozone on the combustion of n-heptane in a HCCI engine. *Proceedings of the Combustion Institute*, 34(2), 3005–3012. <http://doi.org/10.1016/j.proci.2012.05.042>
- Holbrook, B.-P. M., Baylet, A., Retailleau, L., Boreave, A., Vernoux, P., Figueras, F., & Giroir-Fendler, A. (2011). Sulphated TiO₂ for selective catalytic reduction of NO_x by n-decane. *Catalysis Today*, 176(1), 48–55. <http://doi.org/10.1016/j.cattod.2011.03.065>
- J. Griffith et al. (2015). Effect of flow velocity and temperature on ignition characteristics in laser ignition of natural gas and air mixtures. *Optics and Lasers in Engineering*, 66, 132–137. <http://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2014.09.002>
- Kumar Srivastava et al. (2009). Characterisation of laser ignition in hydrogen–air mixtures in a combustion bomb. *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(5), 2475–2482. <http://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2008.11.117>
- Lilley, D. G. (2003). *High temperature Air Combustion*. (Ashwani K. Gupta, Ed.) (High tempe). Björn Karlsson and James G. Quintiere.
- Maiman, T. H. (1960). Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby. *PhysRevLett*.4.564, 4(11), 564–566. <http://doi.org/10.1103/PhysRevLett.4.564>
- Meyerland & Haught. (1963). GAS BREAKDOWN AT OPTICAL FREQUENCIES. *Phys.Rev.Lett*.11,401(1963), (9), 401–403.
- Monteiro, R. a R., Miranda, S. M., Rodrigues-Silva, C., Faria, J. L., Silva, A. M. T., Boaventura, R. a R., & Vilar, V. J. P. (2015). Gas phase oxidation of n-decane and PCE by photocatalysis using an annular photoreactor packed with a monolithic catalytic bed coated with P25 and PC500. *Applied Catalysis B: Environmental*, 165, 306–315. <http://doi.org/10.1016/j.apcatb.2014.10.026>
- Morsy, M. H. (2012). Review and recent developments of laser ignition for internal combustion engines applications. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 16(7), 4849–4875. <http://doi.org/10.1016/j.rser.2012.04.038>
- Roberto Fiorenza et al. (2016). A comparison between photocatalytic and catalytic oxidation of 2-Propanol over Au/TiO₂–CeO₂ catalysts. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 415, 56–64. <http://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.molcata.2016.01.025>
- S. P. Moffett et al. (2007). Investigation of Statistical Nature of Spark Ignition, 1–19.
- Steven A. O’Briant et al. (2016). Review: laser ignition for aerospace propulsion. *Propulsion and Power Research*, 5(1), 1–21. <http://doi.org/10.1016/j.jprr.2016.01.004>
- TERNEL, C. (2006). *Contribution au développement de l’allumage par laser pour les moteurs à combustion interne*. PHD. FACULTE DES SCIENCES DE L’UNIVERSITE DE ROUEN.
- Tran X. Phuoc. (1999). Laser-Induced Spark Ignition of CH₄ / Air Mixtures, 2180(99), 203–216.

CHAPITRE I

COMBUSTION : APPLICATIONS, DEFINITIONS FONDAMENTALES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

TABLE DES MATIERES (I)

<i>Avant-propos</i>	11
<i>1 Combustion</i>	11
<i>2 Applications industrielles du phénomène</i>	13
2.1 <i>Industrie (transformer l'énergie, sûreté, fonderie, procédé de transformation)</i>	14
2.2 <i>Propulsion terrestre et maritime</i>	15
2.3 <i>Propulsion aérienne et spatiale</i>	17
2.4 <i>Gaz à effet de serre</i>	20
2.5 <i>Directives de contrôle de la pollution</i>	22
<i>3 Technologies de baisse de consommation et de dépollution</i>	26
3.1 <i>Recirculation des gaz EGR</i>	26
3.2 <i>Système turbocompresseur</i>	28
3.3 <i>Systèmes anti-pollution</i>	30
3.3.1 <i>Catalyseurs</i>	30
3.3.2 <i>Filtre à particules (FAP)</i>	35
<i>4 Systèmes d'amorçage pour mélanges réactifs</i>	37
4.1 <i>Amorçage par auto inflammation</i>	37
4.2 <i>Amorçage par bougie électrique</i>	39
4.3 <i>Amorçage par torche plasma</i>	46
4.4 <i>Décharge micro-onde/RF</i>	48
4.5 <i>Amorçage par laser</i>	49
4.5.1 <i>Allumage par claquage résonant (RLIS)</i>	50
4.5.2 <i>Allumage par claquage non-résonant (LIS)</i>	51
4.5.3 <i>Allumage photochimique par laser</i>	52
4.5.4 <i>Allumage par thermalisation laser</i>	53
<i>5 Physique des flammes en régime laminaire</i>	53
5.1 <i>Flamme de pré mélange</i>	54

5.2	<i>Vitesse de flamme laminaire</i>	55
5.3	<i>Epaisseur de flamme</i>	58
5.4	<i>Limites d'inflammabilité des mélanges réactifs</i>	60
5.5	<i>Energie minimale d'inflammation</i>	62
5.6	<i>Rayon critique d'allumage</i>	63
5.7	<i>Flamme de diffusion</i>	64
6	<i>Technique de détection, de diagnostic et de mesure en combustion</i>	65
6.1	<i>Visualisation directe par camera rapide (non intrusive)</i>	66
6.2	<i>Visualisation par fluorescence induite par laser (PLIF) (non intrusive)</i>	67
6.3	<i>Incandescence Induite par Laser (LII) (diagnostic des suies)</i>	70
6.4	<i>Visualisation par les techniques de gradient (ombroscopie, Schlieren...)</i>	71
6.5	<i>Spectroscopie (LIBS) et détection des espèces</i>	73
6.6	<i>Temps d'induction chimique</i>	74
6.7	<i>Mesure de température</i>	74
6.8	<i>Mesure de la pression</i>	76
6.9	<i>Mesure de l'intensité lumineuse de la flamme</i>	77
6.10	<i>Techniques physico chimiques</i>	79
7	<i>Conclusion</i>	80
	<i>Bibliographie (I)</i>	81
	<i>Table des Figures (I)</i>	86
	<i>Table des Tableaux (I)</i>	88

Avant-propos

Ce chapitre traite de manière globale le phénomène de combustion en présentant quelques applications industrielles associées. Les contraintes environnementales seront brièvement discutées tout en présentant quelques solutions qui existent pour y faire face. Cette partie traite aussi des différents systèmes d'amorçage en combustion. Elle présente quelques caractéristiques fondamentales comme la vitesse de flamme laminaire et d'autres paramètres physiques et thermodynamiques. Par la suite, on présentera quelques techniques de mesures utilisées dans les écoulements de mélanges réactifs.

1 Combustion

Le dictionnaire Français la définit comme étant l'action de brûler entièrement, de décomposer une quantité de matière sous l'action du feu.

Scientifiquement, la combustion est définie comme étant une réaction chimique où des molécules complexes (organiques : gaz, pétrole, bois, charbon, ..., poudres métalliques : aluminium..., poudres en alliages : titane...) sont décomposées en molécules plus simples, plus petites et plus stables en suivant un réarrangement des liaisons soit entre molécules soit entre atomes. La cinétique chimique de la combustion est une composante majeure de la chimie qui implique essentiellement des réactions radicalaires.

Le processus se réalise en associant trois conditions qui représentent le triangle du feu (Voir *Figure I. 1*)

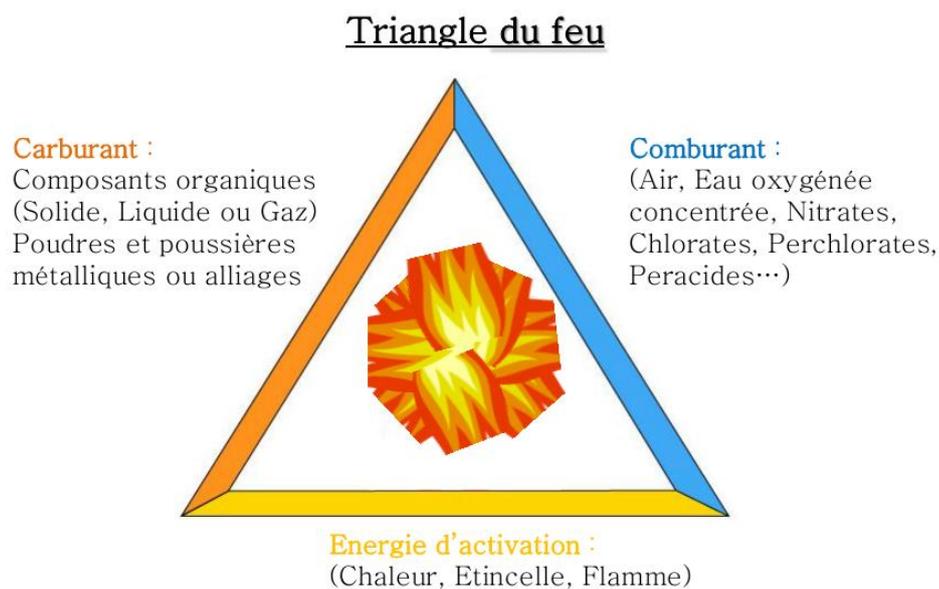


Figure I. 1: Triangle du feu

L'énergie d'allumage correspond à une quantité d'énergie portant le combustible à sa température d'inflammation. Pour les composants organiques, deux produits principaux résulteront d'une combustion correcte (stœchiométrique) après une réaction exothermique : du dioxyde de carbone (CO₂) et de l'eau (H₂O). On définit aussi deux types de combustions : une combustion en excès d'air, une combustion en défaut d'air.

En excès d'air, cette combustion est caractérisée par la présence de l'oxygène dans les produits de combustion. Cela induit directement une augmentation des pertes par les fumées et une baisse de rendement, ce qui peut accroître les dépenses énergétiques. L'air en excès s'appelle le taux d'aération (F_a).

$$F_a = \left[\frac{V_a + V_{EA}}{V_a} \right] \quad (\text{EQ I.1})$$

Avec : V_a : Pouvoir comburivore [m³d'air / unité de combustible]

V_{EA} : Volume d'air en excès [m³d'air en excès / unité de combustible]

Le pourcentage d'excès d'air EA% est donné par l'Eq 2:

$$EA\% = 100 * (F_a - 1) \quad (\text{EQ I.2})$$

La qualité de la combustion d'une installation ou d'un système se caractérise par le diagramme d'OSTWALD (Figure I. 2) en mesurant les taux des rejets de CO₂ et d'O₂ dans les fumées d'échappements.

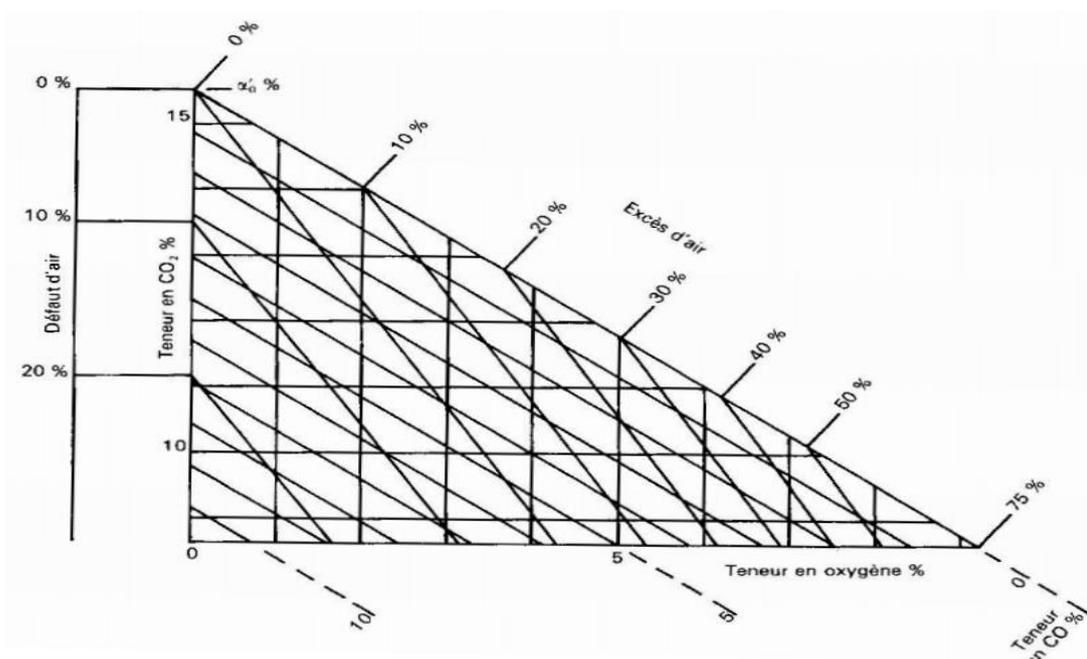


Figure I. 2: Diagramme d'OSTWALD (ROMP, 1937).

Le diagramme permet d'obtenir en fonction du taux de CO₂ mesuré et du taux d'O₂ mesuré :

- Le type de combustion réelle
- L'excès d'air ou le défaut d'air (%)
- Les taux de CO

Il est défini pour un combustible donné, l'axe des abscisses représente le taux d'O₂ et celui des ordonnées représente le taux de CO₂. Il contient :

- Une droite des combustions oxydantes (taux CO = 0%) graduée en excès d'air,
- Une graduation en défaut d'air portée sur l'axe vertical (taux O₂=0%),
- Un point représentatif de la combustion neutre (taux O₂=0% et taux CO = 0%) pour un taux CO_{2max},
- Des droites d'égale teneur en CO (taux CO = cte) parallèle à la droite des combustions oxydantes,
- Des droites d'égale excès ou défaut d'air

Les diagrammes d'OSTWALD sont applicables aux différents combustibles, ils sont insensibles aux teneurs en eau et en cendres des combustibles solides, mais ne sont pas utilisables si la teneur en imbrûlés solides dépasse 3%. Les diagrammes sont limités à leur partie utile (taux O₂ <21%).

2 Applications industrielles du phénomène

Les humains ont fait une utilisation pratique de la combustion depuis des millénaires. La cuisson des aliments et le chauffage des maisons ont longtemps été deux principales applications de la réaction de combustion. Avec le développement de la machine à vapeur par Denis Papin, Thomas Savery, Thomas Newcomen, puis d'autres au début du dix-huitième siècle, une nouvelle utilisation pour la combustion a été trouvée pour réaliser des travaux ou des transformations d'énergie. Ces premiers moteurs employaient une combustion d'un matériau, habituellement du charbon, pour produire de la chaleur qui était utilisée pour faire bouillir l'eau. La vapeur produite était alors capable de déplacer des pistons pour l'entraînement des machines. Ce concept est essentiellement le même que celui utilisé aujourd'hui pour exploiter des centrales électriques à combustible fossile.

Longtemps avant, les inventeurs ont trouvé des moyens d'utiliser les machines à vapeur dans les transports, en particulier dans les moteurs de chemin de fer et des navires à vapeur. Cependant, il a fallu attendre la découverte d'un nouveau type de carburant tel que l'essence et les autres dérivés du pétrole, pour qu'émerge le nouveau moteur qu'est le moteur à combustion interne. La

technologie du moteur moderne pour le transport a été bien réussie et bien atteinte. Aujourd'hui, la plupart des formes de transport dépendent du type de fuel tel que l'essence, le kérosène ou le carburant diesel pour produire l'énergie qui actionne des systèmes amovibles pour déplacer les véhicules dont la société moderne dépend.

2.1 Industrie (transformer l'énergie, sûreté, fonderie, procédé de transformation)

La combustion est un procédé utilisé dans les centrales thermiques utilisant des combustibles fossiles comme le charbon, le gaz naturel et le pétrole, mais aussi des combustibles dit renouvelables comme par exemple les déchets agricoles, les ordures ménagères et les différents produits issus de la biomasse. Le principe est de transformer une partie de leur pouvoir calorifique en chaleur qui servira à faire tourner des turbines sur lesquelles des alternateurs sont couplés pour produire de l'électricité.

La combustion est utilisée aussi dans la sûreté nucléaire pour enflammer les excès d'hydrogène issus de l'oxydation des métaux dans la cuve. Ces derniers sont causés par le rayonnement Gamma intense. Les études réalisées notamment dans le cadre des études probabilistes de sûreté de niveau 2 (EPS2) montrent que la formation d'un mélange hydrogène/oxygène susceptible de conduire à des accélérations locales de flamme en tout point de l'enceinte de confinement et à tout instant et quel que soit le scénario accidentel de fusion du cœur considéré est possible (l'hydrogène est généré plus par la réaction du zircaloy avec l'eau)(Jaszczur, et al, 2016)(Choi, et al, 2015). Pour remédier à ce problème, des systèmes produisant des arcs électriques ou des catalyseurs (alumina-supported-bimetallic-catalysts) équipent les cuves pour éviter l'accumulation de cet agent H₂ détonant dans certaines conditions (Morfin, Sabroux, & Renouprez, 2004).

La métallurgie est une filière qui dépend aussi de la combustion pour transformer les différents minerais en métal. La combustion peut aussi servir pour purifier et traiter thermiquement des métaux ou pour des transformations de laminage ou de forgeage. Dans ce domaine, l'énergie électrique peut être une alternative écologique à ce procédé.

La fabrication du ciment demande énormément d'énergie et utilise aussi la combustion. Dans le but d'élever le mélange qui va produire le clinker à plus de 1450 °C (Qian, Li, & Shen, 2016), cette énergie est apportée par la combustion d'une grande variété de combustibles tels le gaz, le fuel et les déchets (huiles usagées, pneumatiques broyés, résidus d'épuration de station d'épuration des eaux).

2.2 Propulsion terrestre et maritime

La propulsion des véhicules terrestres et maritime est habituellement obtenue au moyen de moteurs thermiques, utilisant des dispositifs mécaniques capables de convertir l'énergie chimique d'un combustible en énergie mécanique directement (MCI : moteur à combustion interne) en utilisant les gaz de combustion comme fluides de travail. La première génération de moteurs à combustion externe (MCE) permettait de convertir l'énergie chimique en énergie thermique puis en énergie mécanique et équipait la plupart des bateaux de première génération et les premières rames ferroviaires à charbon. Dans le cas de ce moteur, la combustion est obtenue dans une chambre séparée, appelée habituellement brûleur.

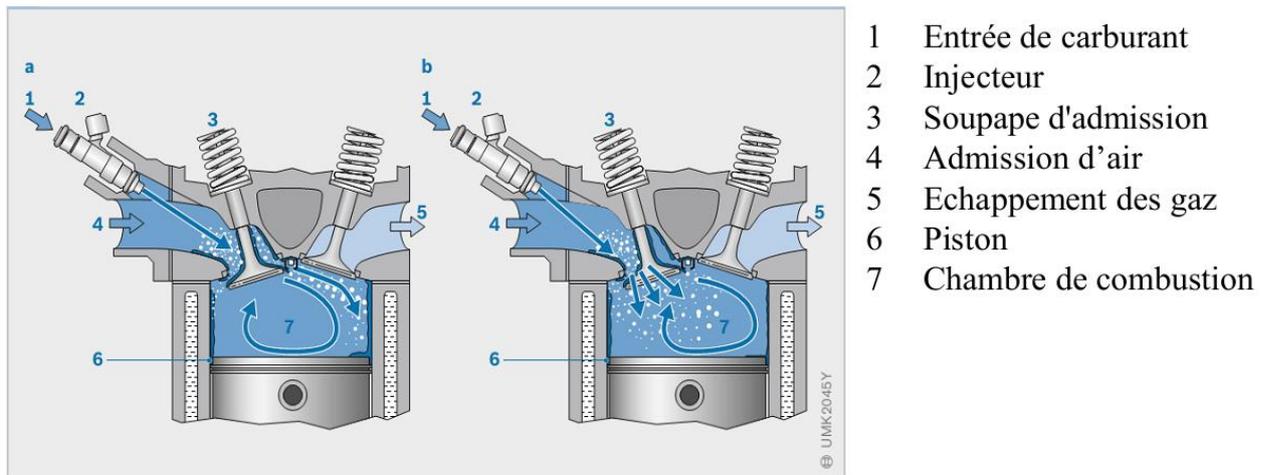
Les moteurs à combustion interne se divisent en deux familles principales : moteur à allumage commandé (essences) et moteur à auto inflammation (diesels). Ces technologies de moteurs ont suivi une évolution drastique au niveau de l'architecture et des équipements mécaniques et électroniques dans le but de chercher des hautes performances et de diminuer les émissions des gaz à effet de serre. Le *Tableau I. 1* récapitule l'évolution des systèmes à injection dans les moteurs à essences (source principale des NO_x et SO_x).

Tableau I. 1 : Evolution des systèmes d'injection dans les moteurs essence (1967 à 1987)(Reif, 2014)

Année	Systèmes	Nouveautés et évolutions du système
1967	D-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • Technologie analogique. • Système d'injection multipoints. • Injection de carburant intermittente. • Collecteur d'admission contrôlée.
1973	K-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • Mécanique-hydraulique • Injection multipoints • Injection du fuel en continu
1973	L-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • Système d'injection multipoints électronique (initialement analogique, puis devient numérique plus tard) • Injection de carburant intermittent • Détection du débit d'Air
1981	LH-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • Injection électronique multipoints • injection intermittente de carburant • Détection de la masse d'air
1982	KE-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • K-Jetronic avec des fonctions supplémentaires à commande électronique
1987 à ce jour	Mono-jetronic	<ul style="list-style-type: none"> • Injection à système point unique • Injection de carburant intermittente • Calcule du flux d'air via l'angle de papillon et de la vitesse du moteur

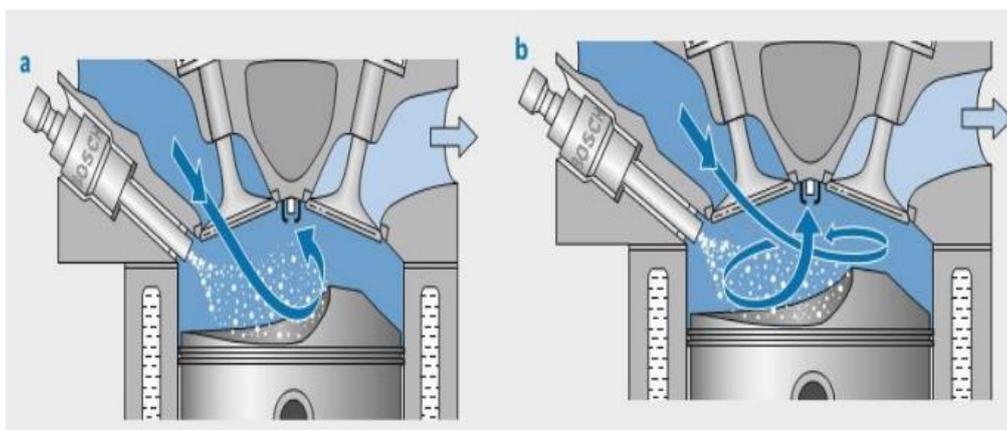
Cette évolution a fait passer le moteur à allumage commandé des carburateurs énergivores à l'injection directe économique et commandée électroniquement, ce qui a donné une variété de moteurs essences très performants (FSI (atmosphérique), TSI, TFSI, GTI,...)(Zhao, 2010).

La même chose est observée pour les moteurs à auto inflammation (Reif, 2004)(Fallis, 2013) dont on voit que les systèmes d'injection indirecte *Figure I. 3* (source de particules fines et des HAP) sont délaissés pour des systèmes à injection directes (*Figure I. 4*) économiques, réglés par des calculateurs à commande numérique (SDI (atmosphérique), DCI, HDI, TDI, GTD, ...)(Bash, 2015) .



a : Pulvérisation centrale sur les soupapes d'admissions
 b : Pulvérisation optimale ciblée

Figure I. 3 : Configuration de l'injection indirecte. (Reif, 2014)



a : Injection directe en chute. b : Injection directe en swirl

Figure I. 4 : Configuration de l'injection directe(Reif, 2014)

D'autres moteurs existent comme les moteurs dits hybrides utilisant différents modes de propulsion. Par exemple : un mode thermique + un mode électrique(Karim, 2015).

2.3 Propulsion aérienne et spatiale

Les moteurs utilisés dans la propulsion aérienne et spatiale font partie aussi des moteurs à combustion interne. On distingue dans cette catégorie deux types de moteurs : moteur à propergol liquide et moteurs à propergol solide.

Moteurs d'hélicoptères : Ces moteurs représentent pour la plupart des turbines à compression fonctionnant suivant le cycle de Baryton (ou Joule) dont les étapes sont les suivantes :

1. Compression adiabatique (demande un apport d'énergie mécanique),
2. Chauffage isobare,
3. Détente adiabatique jusqu'à la pression atmosphérique,
4. Refroidissement isobare.

Les principaux organes de ces moteurs sont un compresseur, une chambre de combustion et une turbine en amont qui entraîne un arbre faisant tourner les pales de l'hélicoptère (voir la *Figure I. 5*). Le type de combustible est liquide (kérosène).

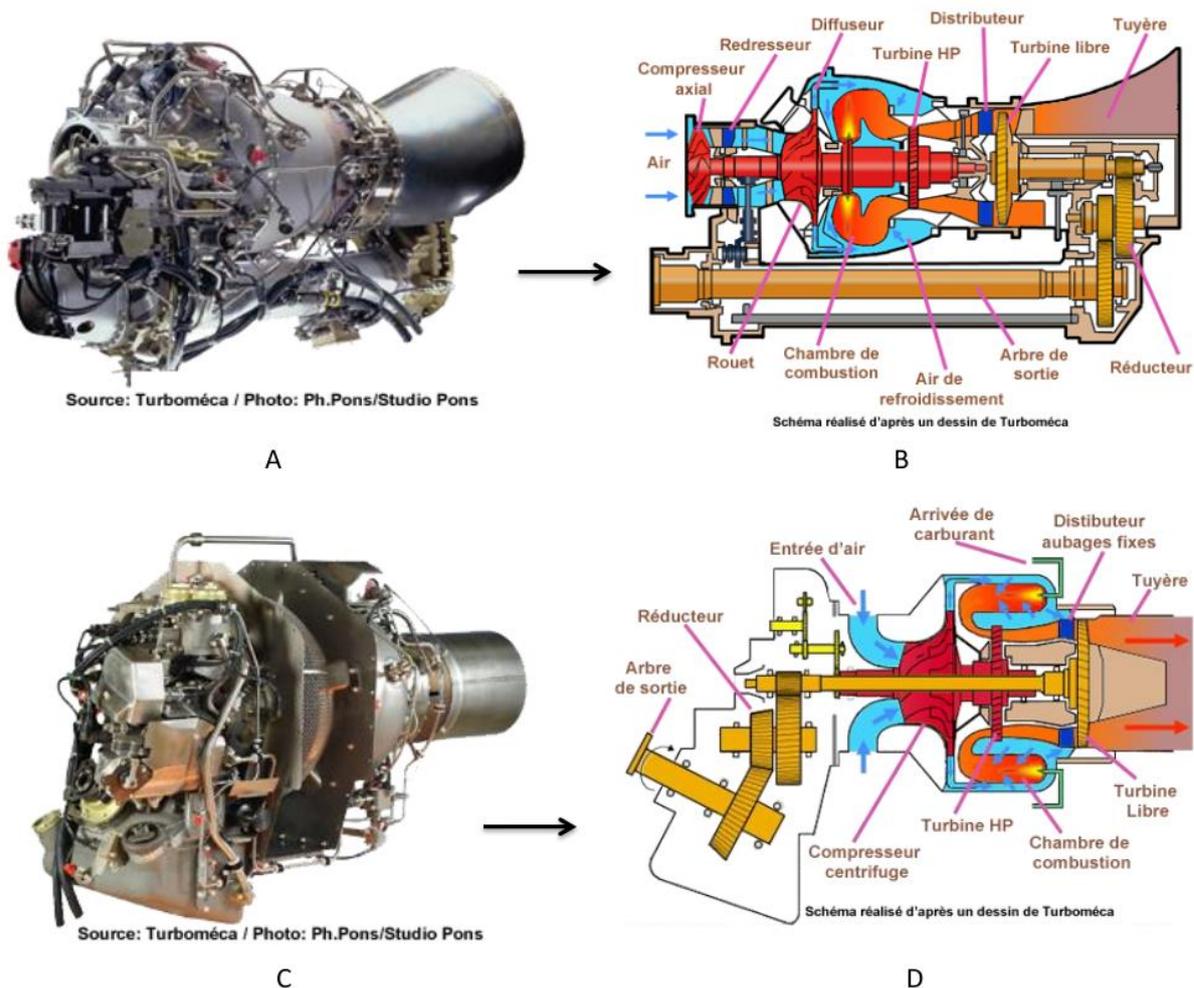


Figure I. 5 : Moteurs d'hélicoptères et leurs schémas de fonctionnement (A : Moteur Arriel 2C avec B : Turbine libre liaison externe) (C : Arrius 2B2 avec D : Turbine libre liaison centrale)

Moteurs d'avion :

Les moteurs d'avion ont pris une évolution importante depuis la seconde guerre mondiale. Les premiers étaient des avions équipés par des moteurs à pistons (1903 à 1945) (*Figure I. 6 A*) qui entraînaient un vilebrequin qui lui-même entraînait une hélice. Après la deuxième guerre viennent les turbo-propulseurs équipant tous les avions militaires et commerciaux exemple : ATR42-500, ATR42-600 et Airbus CN235 (*Figure I. 6 B*). Les turboréacteurs mono flux avec (*Figure I. 6 C*) ou sans post-combustion équipent actuellement plusieurs avions de chasse (Rafale, Mirage 2000, F-22, F-16...) et les double flux (*Figure I. 6 D*) (Turbo fan) équipent les grand transporteurs exemple : le A380 ou le Boeing 747-8. Ces moteurs représentent la vraie avancée dans le domaine de la propulsion aéronautique car la plupart des avions civils et des avions de chasse en sont équipés et cette technologie n'a pas changé jusqu'à maintenant.

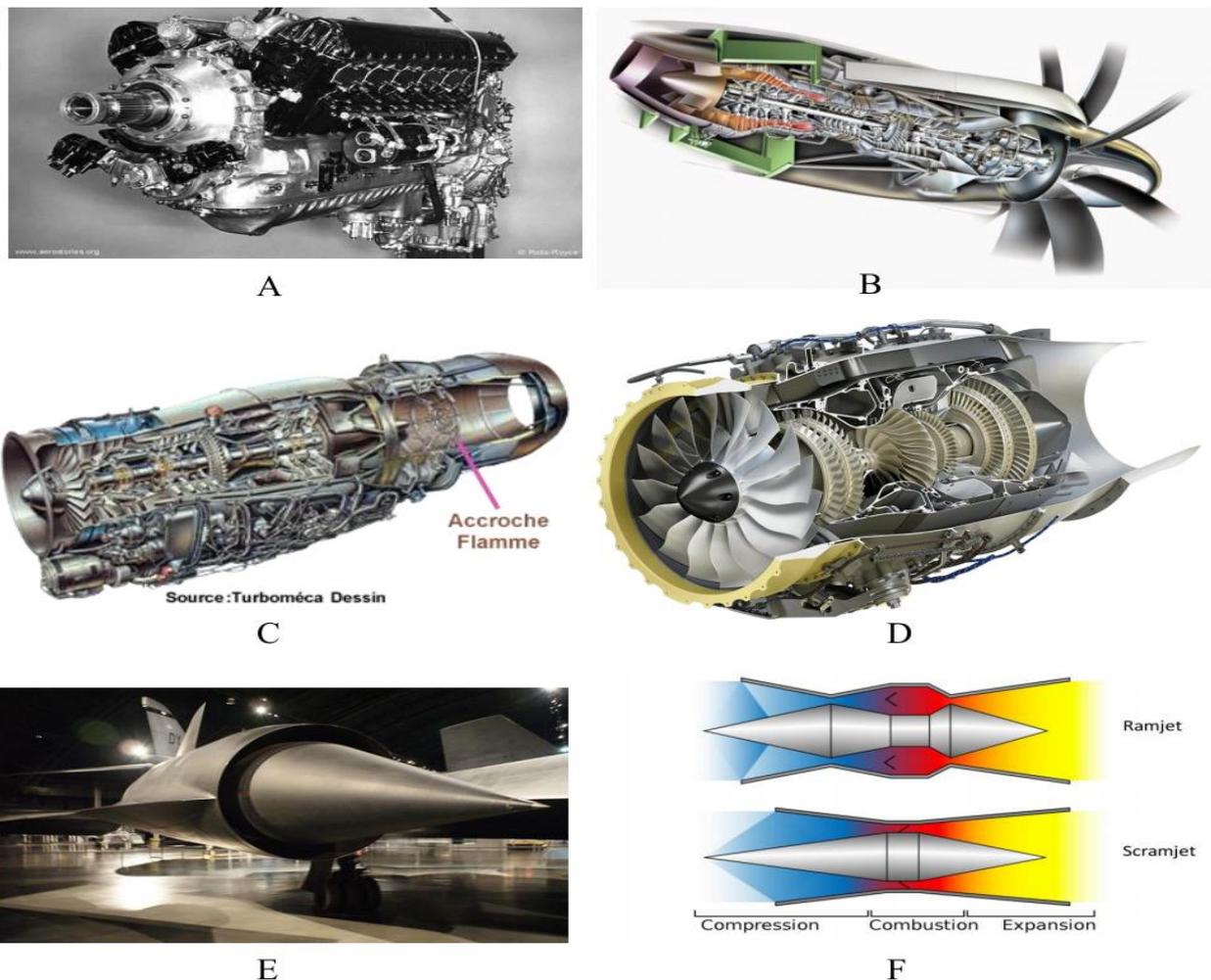


Figure I. 6 : Evolution des propulseurs d'avions (A : Moteur à pistons Merlin. (Rolls-Royce). B : Turbo-propulseur. C : Turbo réacteur mono flux. D : Turbo fan (double flux). E : Ramjet. F : Géométries de Ramjet et de Scramjet

D'autres configurations de moteurs existent, elles sont aussi en phase d'amélioration et de développement pour certaines, pour des applications spécifiques à haute altitude et haut mach, par exemple les moteurs type Ram-jet (*Figure I. 6 E*) et Scram-jet. La *Figure I. 6* montre l'évolution technologique concernant les moteurs des avions à combustible liquide (souvent du kérosène). La *Figure I. 7* récapitule schématiquement les limites des moteurs de l'aéronautique en termes du nombre de Mach et des altitudes atteintes (Mattingly & Ohain, 2006).

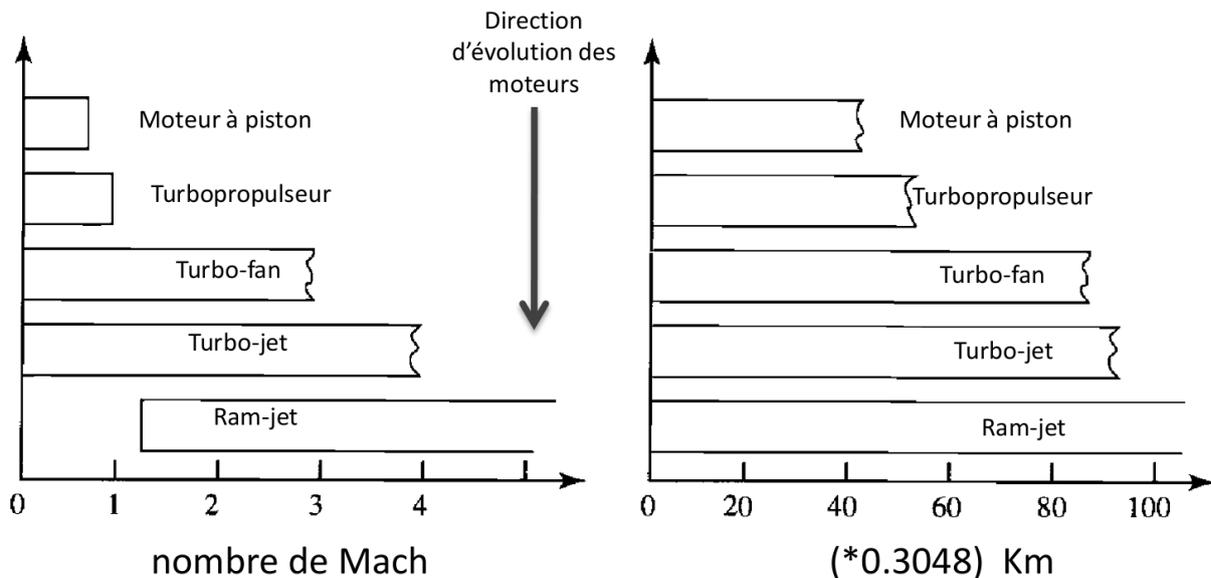


Figure I. 7 : Evolution des moteurs d'avion et leurs limites en termes d'altitude et nombre de Mach

Moteurs fusés :

Les moteurs-fusées opèrent avec des ergols liquides ou à ergols solides. Ils transforment en force propulsive l'énergie dégagée par la réaction chimique entre deux ergols qui représentent le combustible et le comburant.

La forte pression d'injection du propergol liquide dans la chambre de combustion et la consommation très vive de l'ensemble (comburant +fuel) produit une grande quantité de gaz à haute température. Les gaz sont accélérés par la tuyère puis sont éjectés à grande vitesse en produisant une poussée (Degtyarev et al, 2016). Ce type de moteur utilise souvent de l'hydrogène et de l'oxygène liquides. L'avantage dans ce type de moteurs est que les propergols liquides sont plus énergétiques, la durée de fonctionnement peut être commandée et les moteurs peuvent être rallumés en vol. De plus, le refroidissement des matériaux exposés à des hautes températures permet une longue vie de fonctionnement. L'inconvénient de ces moteurs est la nécessité d'un système d'injection haute pression (*Figure I. 8 A*).

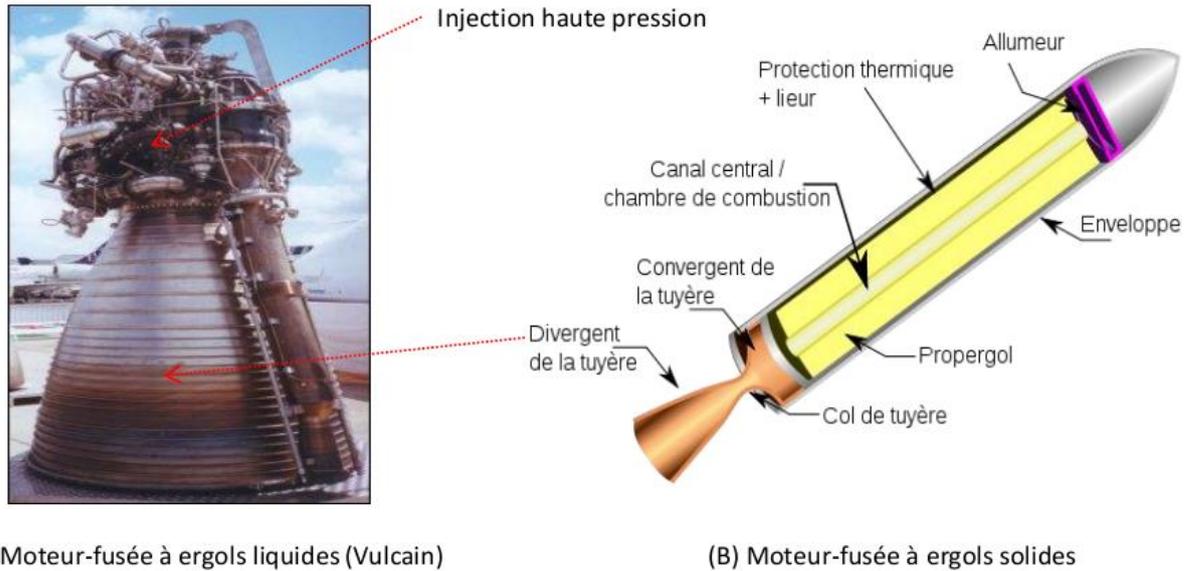


Figure I. 8 : Moteurs fusées (SolidRocketMotor.svg)

Les fusées à ergols solides sont les configurations les plus simples possibles. Elles contiennent à la fois le combustible et le comburant. D'autres composants sont ajoutés dans des proportions faibles : le liant, un agent de réticulation, un catalyseur qui favorise la réaction chimique et éventuellement un régulateur de combustion. Ce type de moteur une fois allumé, ne peut plus être arrêté car la chambre de combustion contient tous les composants permettant d'entretenir le processus de combustion (Figure I. 8 B). Ces moteurs équipent souvent des missiles ou des lanceurs spatiaux. Leurs domaines d'application sont les domaines militaire et spatiale.

2.4 Gaz à effet de serre

En 1896, Arrhenius a évoqué pour la première fois l'effet de serre à long terme et prédit que la combustion de ressources fossiles augmenterait la quantité de dioxyde de carbone dans l'atmosphère et conduirait à un réchauffement climatique de la planète. Aujourd'hui, il n'y a pas un large consensus parmi les scientifiques concernant l'augmentation des températures mondiales. Certaines études ont indiqué que la température moyenne du monde a augmenté de 0,5 °C depuis 1600. D'autres études ont noté des augmentations de température entre 0,3 °C et 0,6 °C au cours des 100 dernières années. Il est également difficile de savoir si l'élévation de température est due à un cycle climatique naturel de la terre ou à l'augmentation des émissions de certains gaz spécifiques à l'activité humaine (Sher, 1998).

Dans le cycle de réchauffement naturel du globe, la terre est recouverte et protégée par une atmosphère d'azote (78,1 % en volume), d'oxygène (20,9 %), et d'argon (0,9 %), avec de petites

quantités de gaz traces, tels que le dioxyde de carbone (0,035 %), le méthane (0,0001 %) et d'autres traces de gaz infimes. Les gaz à effet de serre captent une partie de la chaleur qui est réfléchiée par la terre (environ 30 % de l'énergie du soleil est réfléchiée dans l'espace). Ces gaz sont transparents pour le rayonnement solaire et sont opaques aux rayonnements de grande longueur d'ondes de la surface de la terre, le rayonnement entrant est transmis à ondes courtes, la chaleur est piégée, et la surface sous-jacente est ainsi réchauffée (Voir *Figure I. 9*).

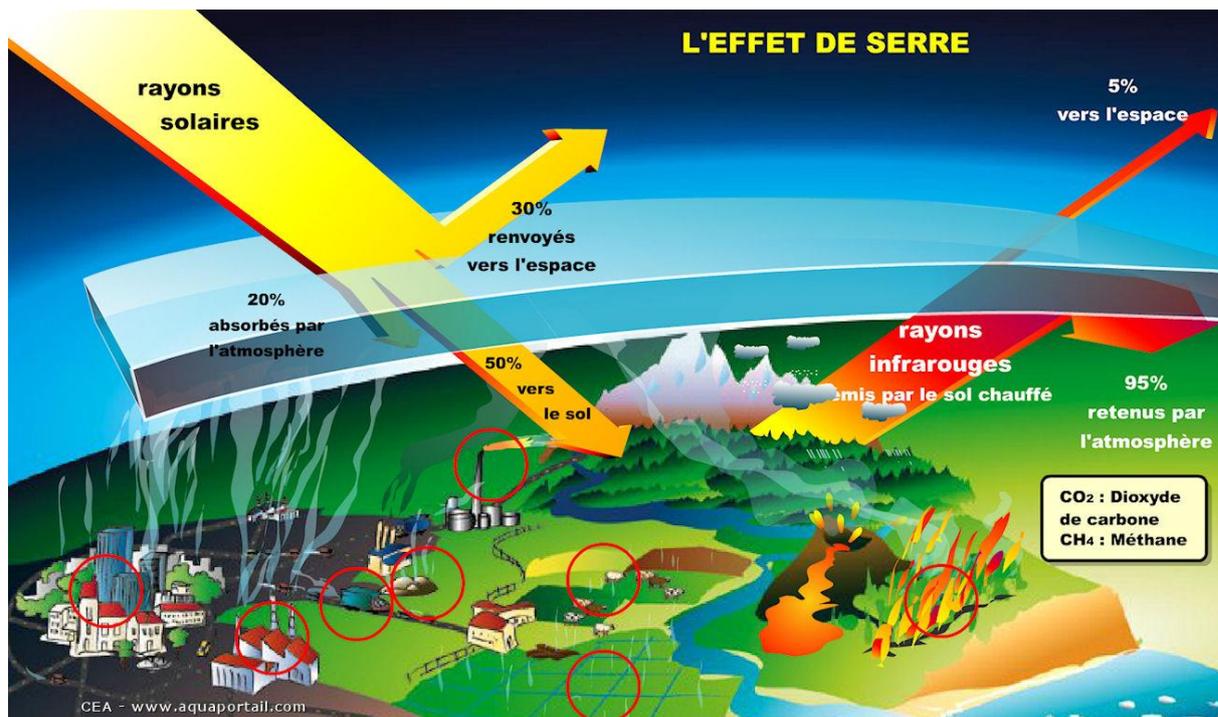


Figure I. 9 : Schéma du cycle d'effet de serre (<http://impact-effet-de-serre.blogspot.fr/>)

L'absorption de la lumière par une molécule se produit plus efficacement lorsque la fréquence de la lumière correspond exactement à sa fréquence de vibration. La capacité d'une molécule à absorber la lumière infrarouge sur une plage de fréquences proche de la fréquence de vibration se produit parce que l'énergie associée à la vibration change quand un photon infrarouge est absorbé. Elle s'accompagne aussi d'un changement d'énergie associé à la rotation de la molécule autour de son axe interne. Fondamentalement, pour que la lumière infrarouge soit absorbée par une molécule, cette dernière doit avoir un moment dipolaire (ATKINS, 2013).

Dans le cas des molécules diatomiques comme O₂ et N₂, les centres de charge coïncident et les molécules n'ont pas de moments dipolaires. Dans le cas des molécules telles que le CO₂, pendant la vibration, la contraction d'une liaison CO se produit lorsque l'autre est en expansion, de sorte que pendant le mouvement, les centres de charges ne coïncident pas nécessairement par conséquent, la lumière infrarouge peut être absorbée (Sher, 1998).

L'agent principal causant l'effet de serre est la vapeur d'eau, le deuxième est le dioxyde de carbone. Il est bon de savoir que la vapeur d'eau et les nuages représentent plus des deux-tiers de l'effet de serre naturel. La montée en crescendo des concentrations de gaz à effet de serre (dioxyde de carbone CO₂) depuis la révolution industrielle du 19ème siècle risque de changer la donne et d'induire un réchauffement climatique certain. La plupart des émissions de gaz à effet de serre ont une durée de vie dans l'atmosphère qui est considérable, ce qui provoque une intensification et une accélération du constat (Kok, 2015).

Certains composants (gaz à effet de serre) sont beaucoup plus néfastes que d'autres. Une molécule de méthane, par exemple, est 23 fois plus puissante en termes d'effet de serre qu'une molécule de dioxyde de carbone. Les CFC sont estimés être plus de 10.000 fois plus puissants que le dioxyde de carbone.

Le dioxyde de carbone est estimé comme le plus grand contributeur à l'effet de serre (50%), les CFC de l'ordre de 15%, 20 % pour le méthane, 10 % pour l'ozone et 5 % pour le protoxyde d'azote (Tableau I. 2). Le protoxyde d'azote est un sous-produit des processus de dénitrification et de nitrification biologiques dans des environnements aérobies (libérés par les océans et les sols des régions tropicales).

Tableau I. 2 : Gaz à effet de serre et contribution dans le réchauffement climatique. (Sher, 1998)

Gaz	Actuellement inventoriés [ppm]	Accroissement ces 20 dernières années [%]	Efficacité relative de réchauffement par mole	Contribution relative des gaz à effets de serre [%]
CO ₂	356	+0,4	1	50
CH ₄	1,74	+0,6	23	20
N ₂ O	0,31	+0,25	270	5
CFCl ₃ (CFC11)	0,26	+2,1	14000	5
CF ₂ Cl ₃ (CFC12)	0,47	+2,3	19000	10
O ₃ (troposphérique)	0,03	-0,51	-	10

Pour plus d'informations, des données statistiques peuvent être trouvées sur plusieurs références, par exemple : IEA STATISTICS «CO₂ emissions from fuel combustion: (Tanaka, 2010)» et plusieurs institutions environnementales communiquent dessus (ADEME, 2014).

2.5 Directives de contrôle de la pollution

La plupart des applications citées précédemment utilisent des technologies connues depuis longtemps et bien maîtrisées. Cependant, aujourd'hui, les limites de ces dernières en termes

de rejets de gaz polluants et de consommation des combustibles fossiles sont atteintes car les limites établies par les normes européennes et mondiales sont de plus en plus restrictives (Voir *Figure I. 10*).

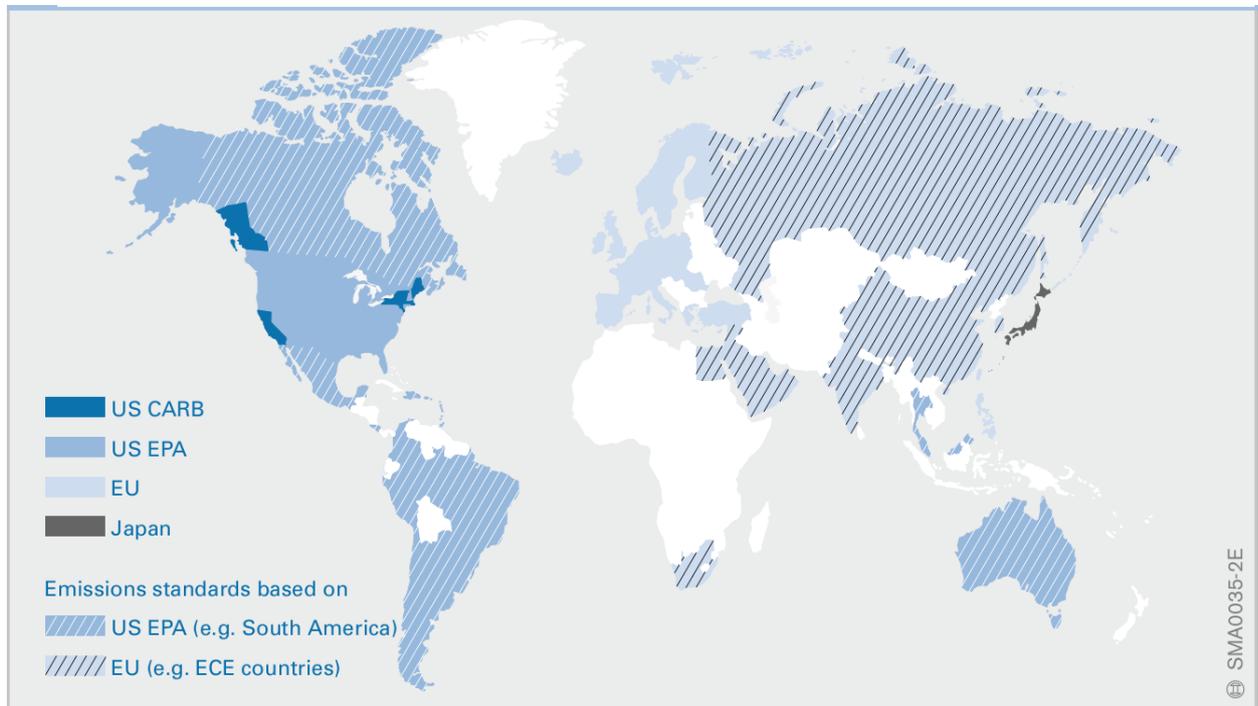


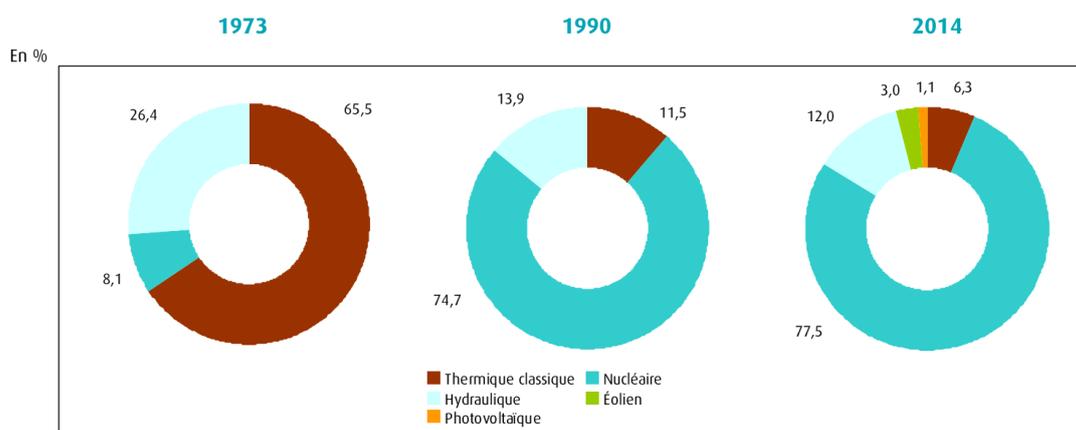
Figure I. 10 : Normes restrictives à travers le monde (Reif, 2014)

Des exemples de directives sont présentés dans le *Tableau I. 3* et pour plus d'information le lecteur pourra se référer à (Ademe, 2015). La part de la combustion (donc de la partie thermique) dans la production de l'électricité a été réduite de plus de 10 fois en France entre 1973 et 2014 comme le montre la *Figure I. 11*. Globalement, les directives mondiales et européennes ont pour objectif de protéger la planète et l'écosystème. Les objectifs européens sont de diminuer les émissions de gaz à effet de serre de -17% à l'horizon 2020 (valeur calculée par rapport à l'année de référence qui est 1990), de faire une économie de 20% d'énergie en améliorant l'efficacité énergétique et d'apporter 23% d'énergie renouvelable dans la consommation finale.

Ces démarches deviennent actuellement de plus en plus coûteuses et difficiles à atteindre avec les technologies classiques existantes, car les sources principales de pollutions restent les moyens de transports comme l'indiquent les statistiques énergétiques de l'année 2005 (voir le *Tableau I. 4*).

Tableau I. 3: Exemple de directives et leurs objectifs (Joassard, Irénée, 2016)

Directives	Objectifs
Tarification du carbone dans le monde	Investir davantage dans les énergies propres Investir sur des technologies sobres en carbone
Négociations internationales	recherche d'un accord international Engagements et contributions nationales et internationale. Engagements financiers (100 milliards pour 2020) Engagements d'acteurs : collectivités locales, les entreprises privées et les institutions financières.
Protocole de Kyoto signé en 1997	Réduire de 5 % puis de 13% en 2010 les émissions des GES (CO ₂ , CH ₄ , N ₂ O, HFC, PFC, SF ₆ , et le NF ₃ en 2013)
Engagements de l'Union européenne	Adoption des engagements de protocole de Kyoto.
Système européen des quotas de CO ₂ (EU ETS) (1 quota = 1 tonne de CO ₂).	Pression sur les installations responsable de 50% des émissions des GES
Prix du carbone dans l'EU ETS	Une installation qui émet plus que son allocation peut en acheter sur un marché. Une installation qui réduit ses émissions peut revendre ses quotas non utilisés
Le paquet Énergie Climat 2020 « 3 x 20 » et 2030	Porter à 20 % la part des renouvelables dans les énergies consommées ; améliorer de 20 % l'efficacité énergétique réduire de 20 % les émissions de GES 2030 : -40% des GES, 27% d'énergie renouvelable et 27% d'efficacité énergétique.
Financer la lutte contre le changement climatique	Réduction des émissions de GES Adaptation au changement climatique
Politique climatique des États : l'exemple de la France	Actions d'économies d'énergie Rénovation énergétique des logements Modernisation de l'éclairage public Développement des énergies renouvelables



Sources : RTE ; EDF ; SOeS, enquête annuelle sur la production d'électricité

Figure I. 11 : Sources de production totale brute d'électricité en France.

Concernant le domaine automobile, à partir de 1993 les normes d'émissions (normes Euro *Tableau I. 5*) imposent des limites sur les polluants d'échappement des véhicules neufs.

Ces normes sont fonction du type de véhicule léger ou lourd. Par exemple, l'ensemble des NO_x est mesuré à l'émission avec les anciennes normes, sans distinction entre NO₂ et NO.

Néanmoins, la norme Euro VI entrée en vigueur au 1er janvier 2014 pour tous les véhicules lourds neufs impose des mesures séparées du NO et du NO₂.

Tableau I. 4: Energie finale par mode de transport en 2005 (FAESSLER, Jérôme, 2012)

MONDE	Energie Finale 2005		
	Mtep	W/hab	%
Transports routiers	1630	333	77
Transports aériens	235	48	11
Transports ferroviaires	61	12	3
Transports maritimes	206	42	9
TOTAL Transports	2132	435	100

1 tep \Leftrightarrow 18000 km parcourues par une voiture particulière.

Les efforts de quelques constructeurs européens et asiatiques peuvent être constatés sur la Figure I. 12 concernant les véhicules utilitaires enregistrés en 2011 en fonction de la moyenne de poids des voitures.

Tableau I. 5: Normes euro pour les véhicules essence et diesel légers (Pierre Alain De Smedt, 2008)

	g/km date	ESSENCE				DIESEL			
		CO	HC	NO _x	PM	CO	HC+NO _x	NO _x	PM
EURO 1	1/07/1992	2,72	0,5335	0,4365		2,72	0,97	0,873	0,14
EURO 2	1/07/1996	2,2	0,275	0,225		1	0,7	0,630	0,08
EURO 3	1/1/2000 1/1/2001	2,3	0,2	0,15		0,64	0,56	0,500	0,05
EURO 4	1/1/2005 1/1/2006	1	0,1	0,08		0,5	0,3	0,250	0,025
EURO 5	1/9/2009 1/1/2011	1	0,1	0,06	0,005	0,5	0,23	0,181	0,005
EURO 6	1/9/2014 1/9/2015	1	0,1	0,06	0,005	0,5	0,17	0,080	0,005

L'ensemble de ces directives et les contraintes environnementales ont poussé les constructeurs à revoir l'architecture et la configuration de leurs moteurs dans les différentes disciplines.

Les chambres de combustions des moteurs d'avions ont fait l'objet de plusieurs investigations et d'études numérique et expérimentales pour atteindre des rendements maximaux accompagnés d'une faible consommation et d'un faible rejet de CO, HAP et NO_x.

Le fait de diminuer la cylindrée diminuera le poids des moteurs et carrosseries. Si l'on ajoute en plus des systèmes permettant de rattraper les pertes de puissance (EGR, TURBO, INJECTION HP...) et si l'on incorpore des systèmes permettant de traiter les gaz d'échappements (EGR,

CATALYSEURS, FILTRE A PARTICULES FAP...), cela diminuera plus encore la consommation, les pertes thermiques et les rejets de polluants (CO₂, NO_x...). Les sections 2.6, 2.7 et 2.8 présentent quelques-uns de ces systèmes concernant la propulsion terrestre.

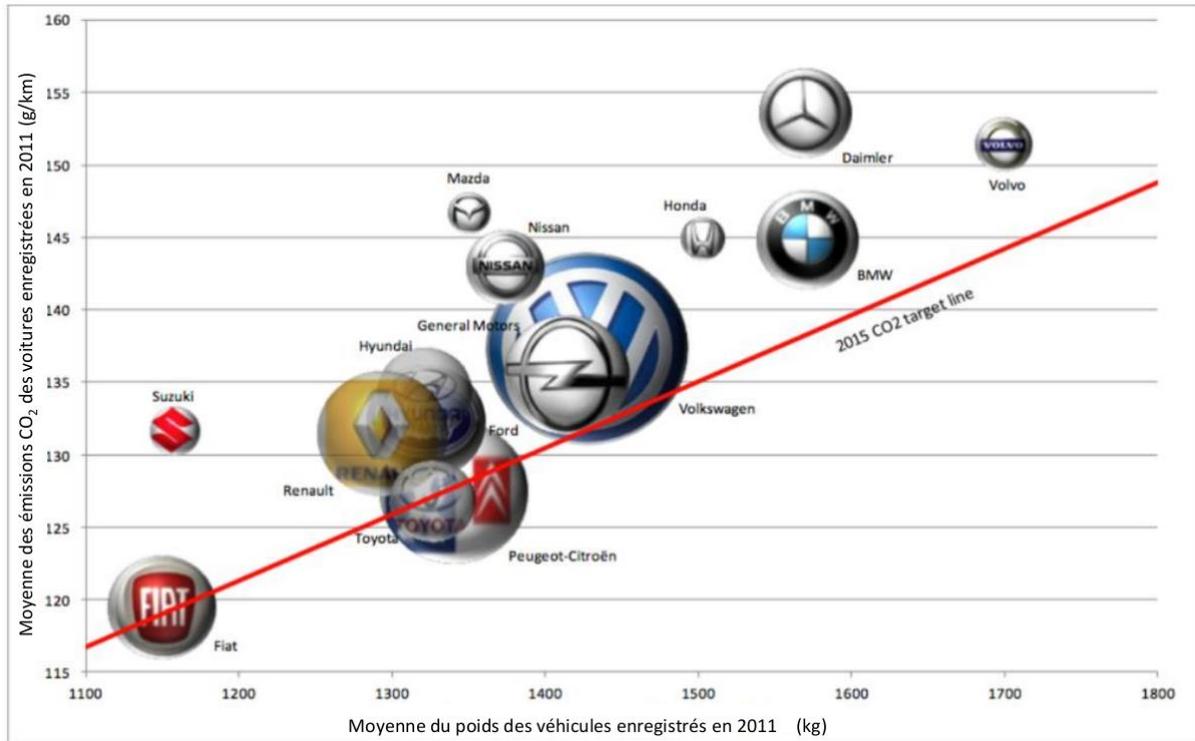


Figure I. 12 : Emissions moyennes en CO₂ des voitures enregistrées en 2011 en fonction de la moyenne de leurs poids pour chaque constructeur (Lorelei, 2013)

3 Technologies de baisse de consommation et de dépollution

3.1 Recirculation des gaz EGR

Ce système est l'une des principales méthodes utilisées pour réduire les émissions d'oxydes d'azote provenant des moteurs diesel ou essence. Cette technique est efficace et permet une réduction des NO_x qui peut atteindre les 30% en utilisant une recirculation des gaz d'échappements refroidis dans un échangeur, ou directement refroidi avec l'admission de l'air frais. Le système de refroidissement moteur peut contribuer au refroidissement des gaz d'échappement destinés à l'EGR (circuit à eau, circuit à air, ...)

Cela se traduit par la réduction de la température de combustion et donc par la réduction des oxydes d'azote produits. Ce procédé est connu sous le nom de recirculation des gaz d'échappement (EGR) (Voir la Figure I. 13 et la Figure I. 14). Ce système équipe la plupart des véhicules utilitaires et les différents moteurs des engins industriels (exploitation minières...) à

l'exemple des moteurs (Nonroad Diesel Engines). On le trouve aussi dans la plupart des transporteurs routiers et maritimes.

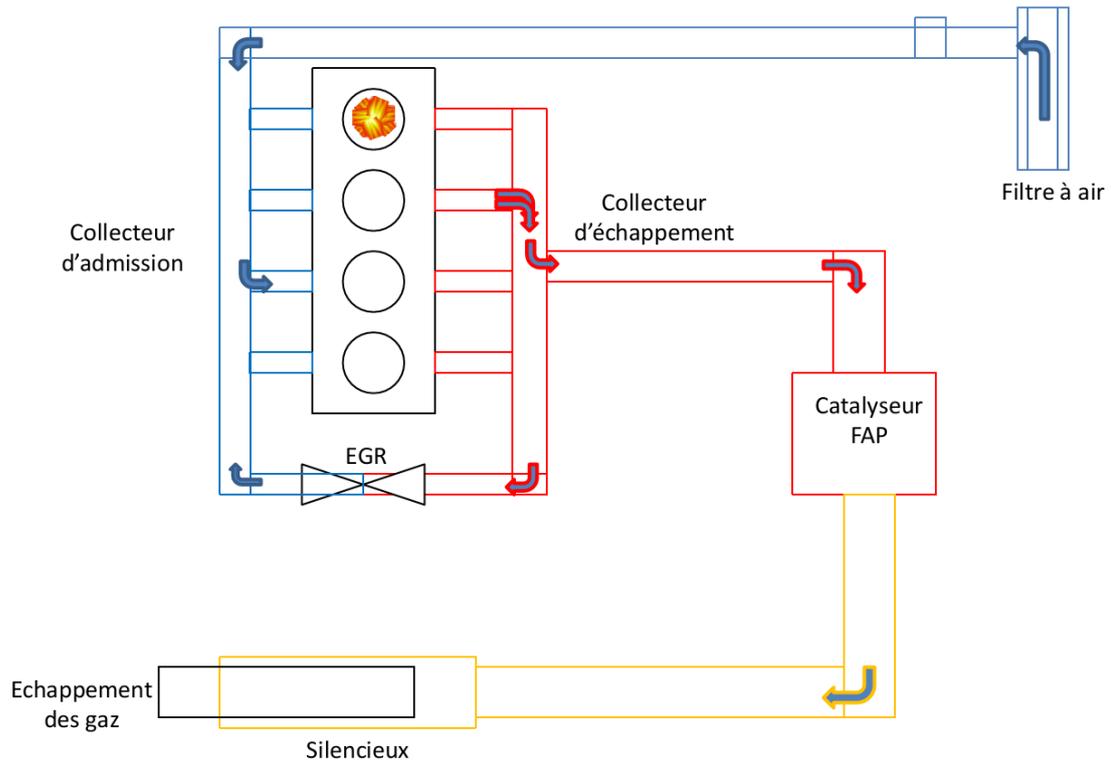
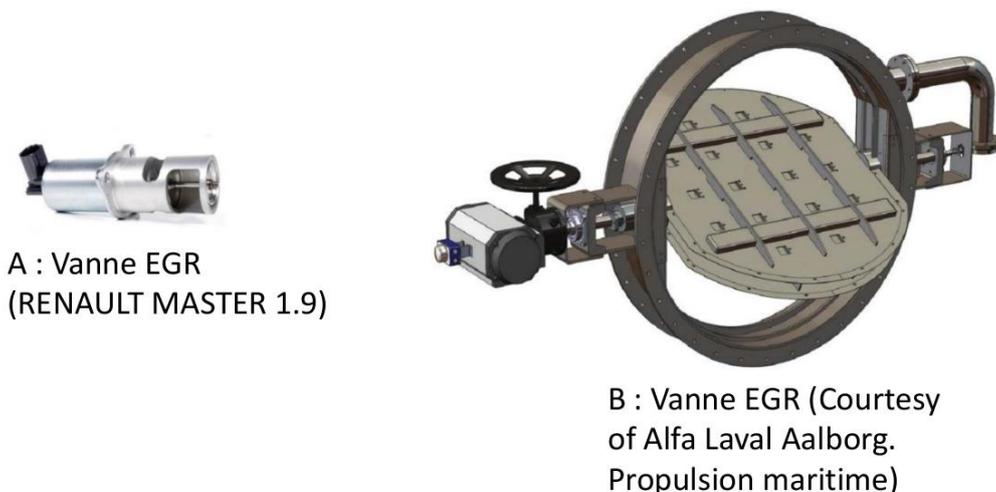


Figure I. 13 : Schéma d'un système EGR dans un moteur simple sans turbo

Il faut bien préciser que ce système est beaucoup plus intéressant pour l'environnement que pour le moteur lui-même car il participe à l'encrassement du moteur dû à des dépôts de suies dans celui-ci. La Figure I. 13 montre deux configurations de vannes d'un véhicule particulier et d'une vanne dans le cas d'un moteur de propulsion maritime.



A : Vanne EGR (RENAULT MASTER 1.9)

B : Vanne EGR (Courtesy of Alfa Laval Aalborg. Propulsion maritime)

Figure I. 14 : Configuration de deux vannes EGR véhicule particulier (A) et vanne pour moteur maritime (B) (Courtesy of Alfa Laval Aalborg)

On peut trouver dans les véhicules deux circuits d'EGR, un à haute pression faisant un circuit entre le collecteur d'échappement et le collecteur admission, et un circuit à basse pression reliant une prise du pot d'échappement (gaz détendus) vers le collecteur d'admission.

Les effets de ce système sont investigués et discutés dans plusieurs articles scientifiques en montrant l'effet de la dilution à l'EGR (Lattimore et al, 2016) sur les délais d'allumages, ou encore sur les durées des combustions (Xie et al., 2016) (Zheng et al., 2015). Récemment, l'effet de ce système a été étudié dans des nouvelles technologies de propulsion terrestre à l'exemple des moteurs HCCI (Nishi et al, 2016).

3.2 Système turbocompresseur

Ce système est appelé aussi système de suralimentation, il a permis plusieurs progrès en augmentant la puissance des moteurs tout en réduisant la consommation et par conséquent les émissions des gaz à effet de serre et les polluants (Tomita, An, & Nanbu, 2014).

En d'autres termes, ce système permet de récupérer l'énergie thermique des gaz d'échappements par l'intermédiaire d'une turbine centrifuge dans le but de compresser les gaz frais d'admission par un compresseur centrifuge monté sur le même arbre que la turbine (*Figure I. 15*). Ce procédé fait augmenter la pression effective dans les cylindres (PME) (Nguyen-Schäfer, 2015).

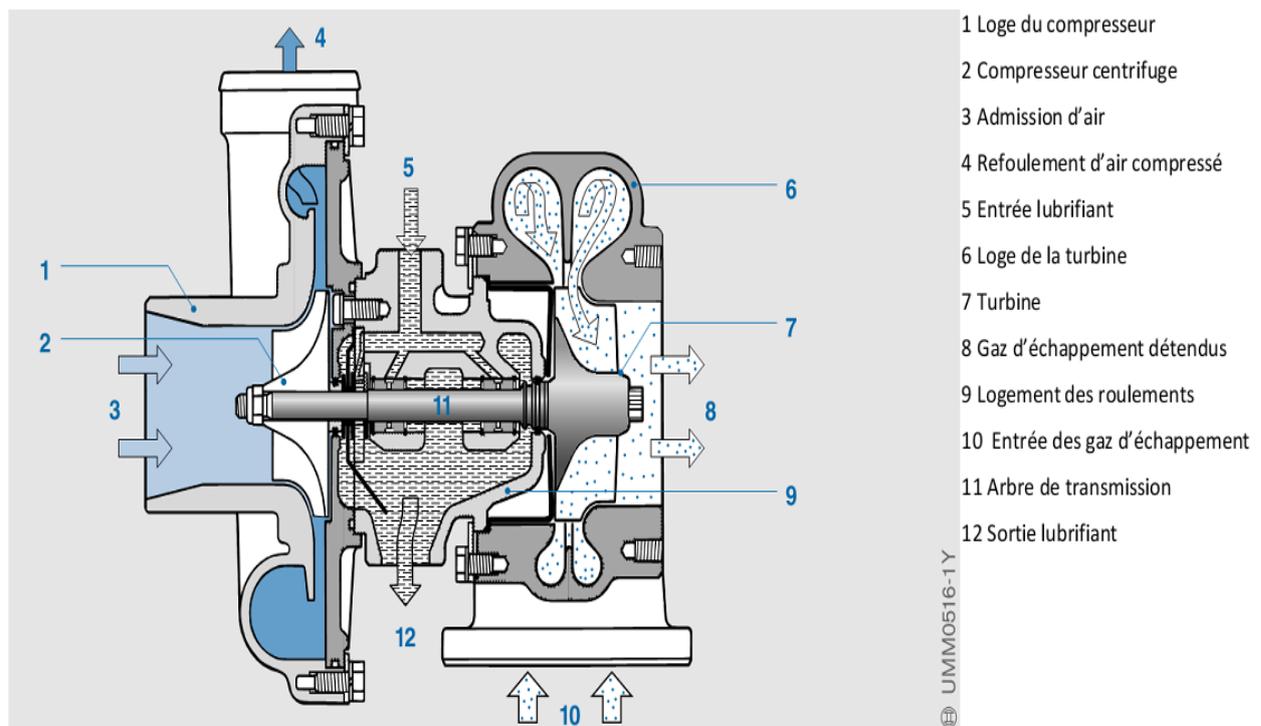


Figure I. 15 : Configuration d'un turbocompresseur des véhicules commercialisés (Reif, 2004)

La configuration présentée dans la *Figure I. 15* peut changer à l'exemple des turbocompresseurs à géométrie variable comportant des ailettes servant à contrôler la section de passage des gaz ; la commande de celle-ci se fait par un calculateur. On peut encore trouver d'autres technologies de ce système, appelées super chargeur, entraînées mécaniquement par le moteur. Ils peuvent être avec un seul ou plusieurs étages de compression (Reif, 2014). La *Figure I. 16* montre un schéma d'un moteur turbocompressé couplé à l'EGR basse pression.

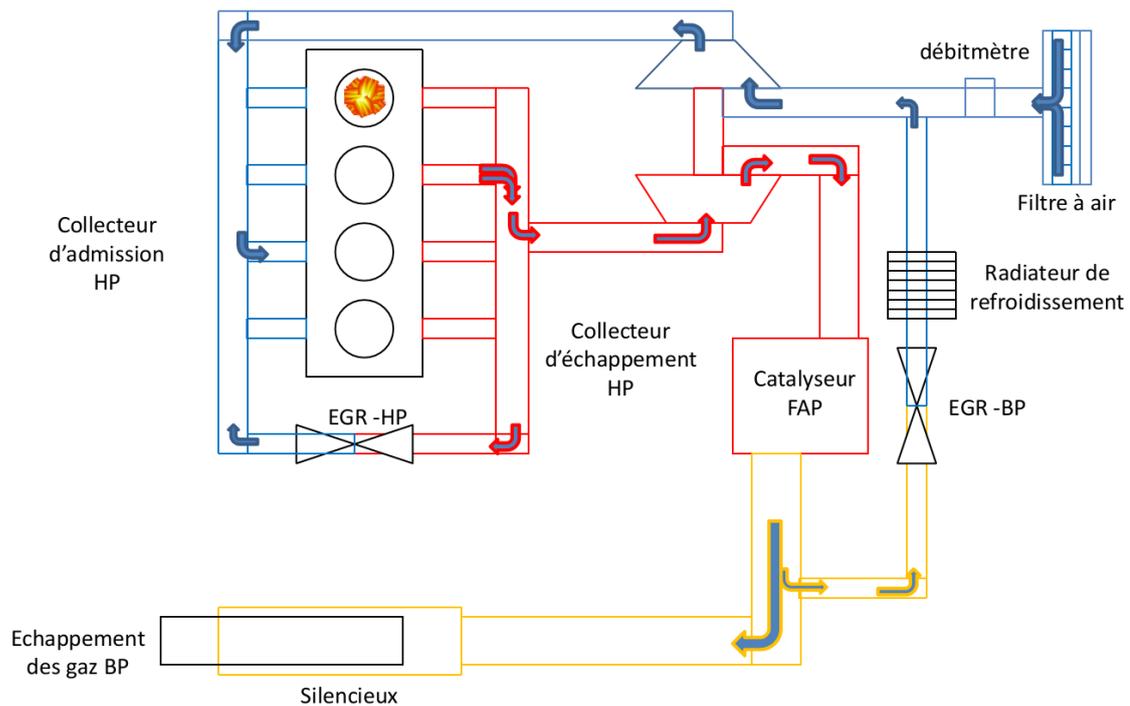


Figure I. 16 : schéma d'un système turbocompressé couplé à l'EGR BP

La configuration de la *Figure I. 16* est investiguée dans le cas d'un moteur essence par Lujan « Influence of a low pressure EGR loop on a gasoline turbocharged direct injection engine » (Luján, et al, 2015). Les résultats des mesures entreprises dans le cas de cette étude montrent que les concentrations des NO_x décroissent en fonction des taux EGR étudiés, variant de 0 à 16%. Concernant les HC et les CO, les taux de recirculation de 5 à 10% présentent une plage optimum pour les réduire. Les mesures montrent aussi que l'augmentation des taux d'EGR diminue les concentrations des suies. Pour d'autres effets de ce système concernant les performances et les émissions des polluants, le lecteur peut se référer à ces auteurs : (Arbab et al., 2015), (Park & Song, 2014), (Siwale et al., 2013) et (Zamboni & Capobianco, 2012).

Pour le calcul-dimensionnement, le livre de Nguyen-Schäfer est préconisé (Nguyen-Schäfer, 2015). Caractéristiques et informations de fonctionnement et montage peuvent être trouvés chez Hugh MACLNNES (Hugh MACLNNES, 1976), et Bell CORKY (CORKY Bell, 1997).

3.3 Systèmes anti-pollution

La combustion des hydrocarbures génère un certain nombre de polluants dans des proportions différentes d'un moteur à un autre en termes de : CO₂, CO, NO_x, HC SO₂, HAP, COV, métaux et particules. Les facteurs influents sont les suivants :

- **La géométrie du moteur** : Chambre de combustion, taux de compression, rapport course alésage ...
- **Le système d'injection** : Type de système, pression d'injection, taux d'injection, géométrie des ouvertures d'injecteurs, qualité de fuel...
- **Le système d'admission d'air** : Admission d'air avec des concepts turbo, utilisation de l'EGR...
- **Le système de refroidissement** : Liquide de refroidissement, géométrie des radiateurs
- **Le système de démarrage** : Démarreurs, starter, bougie de chauffage...

Tous ces facteurs et les directives européennes ont poussé à introduire des nouveaux systèmes anti-pollution comme les catalyseurs et les filtre à particules.

3.3.1 Catalyseurs

Le terme catalyse réfère à l'accélération ou à la réorientation de la cinétique chimique de la réaction qui peut être une réaction de combustion avec accompagnement de flammes ou juste une réaction de pyrolyse. Elle peut également être juste un changement d'état d'une composition en changeant la nature des substances (exemple, changer les états nocifs (NO_x, SO_x...) vers des états gaz simple sans changer leur nature).



Dans le domaine du traitement des gaz de combustion, on a essentiellement deux types de catalyseurs en vente pour les émissions de NO_x et les deux sont de type catalyse hétérogène (catalyseur solide pour des réactifs gaz ou liquide). Ce type de catalyseur peut être accompagné d'une catalyse homogène en incorporant ou en injectant un catalyseur liquide ou gaz dans les réactifs.

➤ **Catalyseur d'oxydation (OC) :**

Les pots catalytiques d'oxydations sont généralement fixés au moteur après le collecteur d'échappement. Le passage des gaz d'échappement se fait à travers un monolithe d'une capacité de un à deux litres souvent réalisé en céramique (parfois métallique).

Ce dernier est composé de plusieurs petits canaux faisant une structure en nid d'abeille. La surface des canaux est enduite avec la solution catalytique composée de trois éléments clefs : 1- Les métaux précieux : Pt, Pd, Rh ; 2- Les billes d'alumine ; 3- Le washcoat, contenant des composés à base d'oxyde de cérium CeO₂ (la cérine) jouant le rôle d'une éponge à oxygène. Les oxyde de cérium stockent et déstockent très rapidement de l'oxygène selon les besoins catalytiques de traitement des gaz et améliorent ainsi l'efficacité du pot. Le *Tableau I. 6* montre l'activité préférentielle des métaux précieux vis-à-vis des HC, CO et NO_x (Alain, Emmanuel, & Gérard, 2011).

On trouve plusieurs types de catalyseurs d'oxydation, par exemple les monométalliques qui sont soit avec du platine, soit avec du palladium, soit avec du Rhodium. Les bimétalliques sont également largement utilisés et bénéficient d'une meilleure efficacité à l'exemple du Pt-Pd.

Tableau I. 6 : Activité préférentielle des métaux précieux vis-à-vis des HC, CO et NO_x

<i>Activité préférentielle</i>	<i>HC</i>	<i>CO</i>	<i>NO_x</i>
<i>Pt</i>	+	++	+
<i>Pd</i>	++	+	0
<i>Rh</i>	+	+	++

Ces catalyseurs représentent des pots de traitement primaires. Ils sont souvent efficaces pour réduire les CO, HC, et NO (polluants cancérigènes) à l'exemple des catalyseurs à trois voies sur les moteurs essences depuis 1993 (réduction des NO, CO et HC) ou du DOC sur les moteurs diesel depuis 1997 (Voir *Figure I. 17* et *Figure I. 18*) (Pesant, 2005). Pour plus d'informations sur ce concept, le lecteur pourra se référer à la thèse de Solène LE BRAS (LE BRAS, 2015). Ce système est inefficace pour la réduction des NO_x, d'autres pots catalytiques secondaires peuvent faire l'affaire à l'exemple du NSC ou du SCR.

➤ **Stockage catalytique des NO_x (NSC) :**(Voir *Figure I. 17*)

Ce système (NSC) réduit les oxydes d'azote en deux étapes:

- Stockage continu des NO_x pendant l'émission des gaz d'échappement pauvres,

- Période de régénération : conversion des NO_x pour les gaz d'échappement riches.

Le catalyseur de stockage est revêtu d'une composition chimique (les oxydes et les carbonates de métaux alcalins...) qui a une forte tendance à se lier fortement avec le gaz NO₂, cette liaison est réversible. En raison de la réponse à la température, les nitrates de baryum sont les principaux produits chimiques utilisés.

Étant donné que seuls les NO₂ peuvent être stockés directement (pas les NO), ces derniers sont oxydés sur la surface d'un revêtement de platine dans un catalyseur d'oxydation en amont (DOC) ou intégrés pour former du NO₂. Cette réaction se déroule en plusieurs étapes. A la fin, la concentration de NO₂ dans le gaz d'échappement est réduite au cours du stockage.

La réaction des espèces NO₂ sur la surface du catalyseur (carbonate de baryum, CaCO₃, en tant que matériau de stockage), avec l'oxygène (O₂) des gaz d'échappement permet de former des nitrates:



La réaction de stockage des NO_x est décrite par l'équation (3). Le stockage est optimisé uniquement dans un intervalle de température allant de 250 à 450 ° C, il dépend du régime moteur et des gaz d'échappement. En-dessous de cette température, les NO s'oxydent très lentement pour former du NO₂ au-dessus de cette température, les NO₂ sont non-stables. Les convertisseurs catalytiques de type accumulateur ont également une capacité de stockage à basse température (stockage de surface).

Pour la phase de régénération, i.e. une fois que le catalyseur est plein, un régime de fonctionnement à mélange riche produit des espèces CO, H₂, et d'autre gaz hydrocarbonés. Ces produits sont utilisés comme agent réducteur des nitrates de baryum vers la phase initiale des carbonates de baryum. Ces réactions sont données par les équations (EQ I.4) et (EQ I.5).



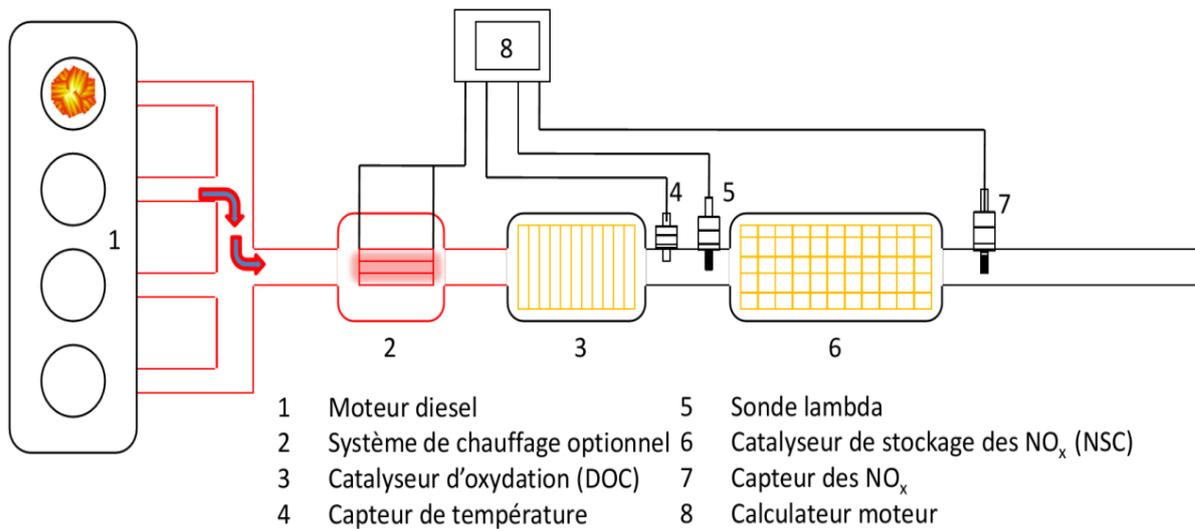


Figure I. 17: Système de stockage catalytique des NO_x (NSC)

Une fois la phase de régénération finie, la sonde lambda, située en aval du pot catalytique, mesure l'excès d'oxygène dans les gaz d'échappement et indique une variation de tension pour revenir au régime de stockage. L'inconvénient de ce système reste sa sensibilité aux dioxydes de soufre qui détruisent le catalyseur dans la phase de régénération en formant les sulfates de baryum qui prennent la place des carbonates de baryum ce qui rend médiocre la phase de stockage. Une solution existe pour des fuels à 10 mg/kg de soufre, elle s'appelle la désulfuration. Dans ce cas, le pot catalytique est porté à 650 °C pendant 5 min. Il est ensuite purgé avec des gaz d'échappements riches sans oxygène et tous les sulfates de baryum sont convertis en carbonates de baryum.

Le seul souci sera le risque de convertir les SO_x en sulfures d'hydrogène H₂S qui sont très odorants et très toxiques. Il ne faut pas oublier que ce procédé augmente légèrement la consommation du moteur (plus de CO₂ au détriment des NO_x).

➤ **Réduction catalytique sélective des NO_x (SCR) :** (Voir Figure I. 18)

A l'opposé du système NSC, le SCR travaille en continu et n'intervient pas dans les opérations de moteur pour changer de régime par exemple. Ce procédé est installé sur la plupart des véhicules lourds en offrant une minimisation des NO_x et une faible consommation. Le concept est basé sur la réduction des NO_x en présence d'oxygène en utilisant des agents réducteurs sélectifs.

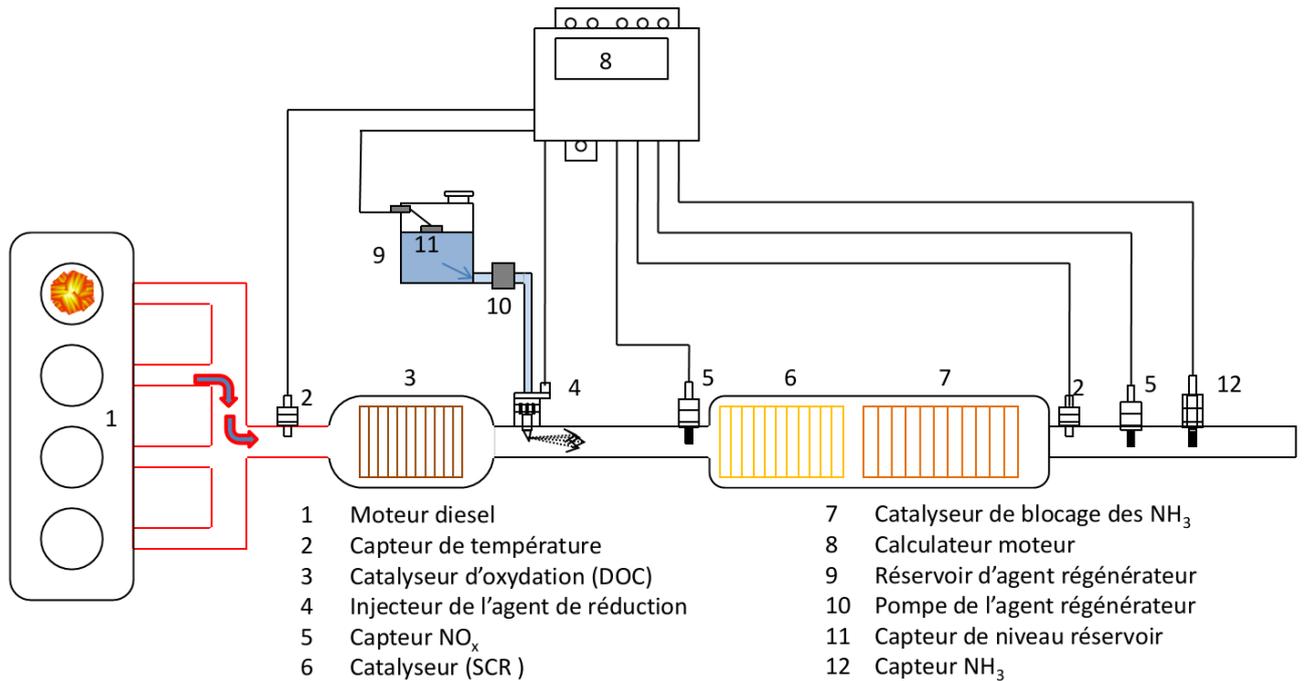


Figure I. 18 : Réduction catalytique sélective des NO_x (SCR) :

Sélective veut dire que l'agent choisira les NO_x pour s'oxyder au lieu de choisir les molécules d'oxygène (O₂), même si elles sont librement présentes en grande quantité dans les gaz d'échappement.

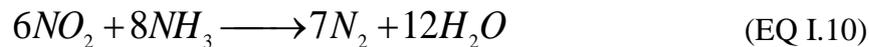
L'ammoniac (NH₃) s'est avéré être un agent réducteur hautement sélectif dans ce cas. Les quantités de NH₃ nécessaires soulèveraient des questions de sécurité en raison de la toxicité du produit chimique. Cependant, NH₃ peut être produit à partir des substances porteuses non toxiques, telles que l'urée (carbamide) ou le carbamate d'ammonium. L'urée s'est avéré être un bon support de catalyseur. L'urée, CO (NH₂)₂, est produite à l'échelle industrielle comme engrais et aliments pour animaux. Ce produit est biologiquement compatible avec les eaux souterraines et chimiquement stable pour l'environnement. L'urée est très soluble dans l'eau et peut donc être ajoutée au gaz d'échappement en tant que solution facile à doser avec de l'eau. Le système DENOXTRONIC 1 a été développé pour doser l'agent réducteur dans le gaz d'échappement avec précision. Ce système est résistant au gel d'hiver. Les principaux composants peuvent être chauffés pour assurer la fonction après un démarrage à froid.

La solution (Urée/eau) sera disponible sous le nom de marque de "AdBlue" (Rogério dos Santos et al, 2014). La première pompe d'AdBlue officiel est ouverte à Stuttgart (Allemagne) à la fin de 2003. AdBlue est conforme aux normes (DIN 70070 qui définit les propriétés de la solution).

Les réactions du processus sont les suivantes : l'urée forme en premier lieu l'ammoniac avant le commencement de la réaction proprement dite SCR. Ceci a lieu en deux étapes, qui ensemble sont qualifiées de réaction d'hydrolyse. Tout d'abord, le NH_3 et l'acide isocyanique sont formés dans une réaction de thermalisation.



Les réacteurs modernes SCR prennent en compte également la fonction d'un catalyseur d'hydrolyse, dispensant ainsi d'un catalyseur d'hydrolyse en amont comme précédemment nécessaire (NSC). L'ammoniac produit par thermalisation et hydrolyse réagit dans le convertisseur catalytique SCR selon les équations suivantes:



A basse température ($T < 300^\circ C$) la conversion se fait par l'EQ I.9 et l'oxydation des NO pour former des NO_x se produit dans un catalyseur d'oxydation en amont (DOC), ce qui est nécessaire pour obtenir une efficacité optimisée.

Si plus d'agent réducteur est injecté, cela peut entraîner une fuite de NH_3 qui peut entraîner une nuisance pour l'environnement, mais ce constat est évitable. Les NH_3 sont réduits en plaçant un catalyseur d'oxydation additionnel en aval du catalyseur SCR. Ce convertisseur catalytique bloque en oxydant le surplus d'ammoniaque pour former N_2 et H_2O .

3.3.2 Filtre à particules (FAP)

Les particules de suie émises par un moteur peuvent être efficacement éliminées des gaz d'échappement par les filtres à particules (FAP). Ce dispositif équipait les moteurs diesel depuis 2000 (DPF) et actuellement, il se généralise sur tous types de moteur essence et diesel. Les filtres à particules utilisés jusqu'à présent sont à base de céramiques poreuses. Ces derniers se composent d'une structure en nid d'abeilles en cordiérite ou en carbure de silicium, qui possède un grand nombre de canaux parallèles, essentiellement carrés. L'épaisseur des parois du canal est typiquement 300-400 μm .

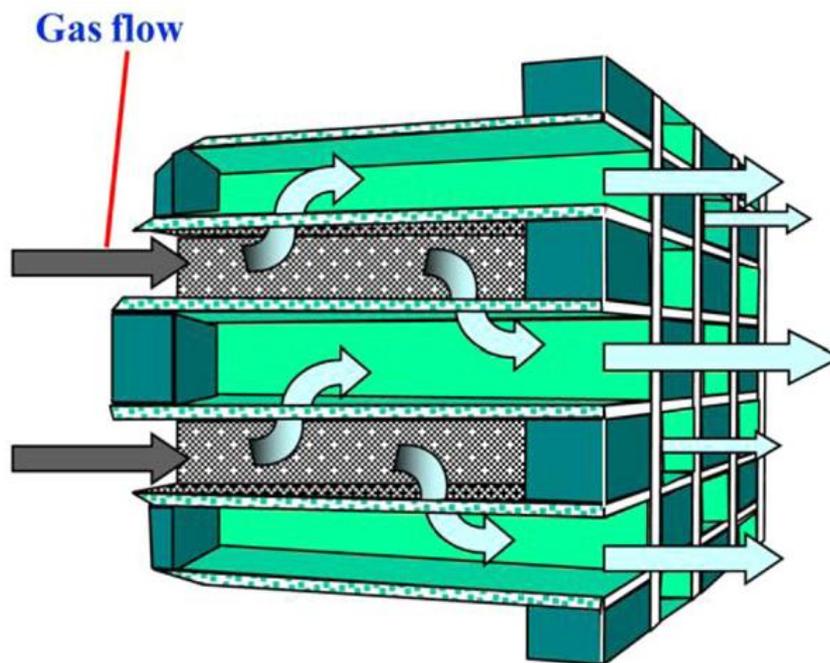


Figure I. 19: Principe de circulation des gaz d'échappement dans un filtre à particule

La taille des canaux est spécifiée par leur densité cellulaire. Les canaux adjacents sont obturés à chaque extrémité par des bouchons en céramique pour forcer les gaz d'échappement à pénétrer à travers les parois poreuses en céramique. Les particules de suies traversent les parois, elles sont transportées dans les parois des pores par diffusion où elles adhèrent parfaitement (filtration en lit profond) voir *Figure I. 19*. Comme le filtre est de plus en plus saturé avec les suies, ceci permet d'obtenir une filtration de surface hautement efficace pendant la phase de fonctionnement. Cependant, la saturation excessive doit être évitée par une phase de régénération.

Les filtres à particules en métal fritté sont maintenant en cours de développement (Bruneel, et al, 2012). Dans ces filtres, les surfaces de filtrage comprennent une structure porteuse métallique composée de treillis en métal fritté rempli de poudres métalliques. La conception de ces filtres a une géométrie bien spécifique. Les surfaces filtrantes forment des poches concentriques, à travers lesquelles les flux de gaz d'échappement passent. Étant donné que les lamelles sont fermées à l'arrière, les gaz d'échappement doivent passer à travers les parois des poches de filtre. Les particules de suie sont déposées sur les parois des pores d'une manière similaire à celle du substrat en céramique. De nouveaux prototypes probablement vont apparaître dans les années à venir (Bermúdez, et al, 2015) (Palma, et al, 2013).

4 Systèmes d'amorçage pour mélanges réactifs

Cette étape est nommée « amorçage = initiation », elle représente une phase initiale préliminaire d'une combustion qui se fait avec une succession de deux réactions essentielles :

- ✓ Une première réaction pour générer des radicaux primaires énergétiques par l'intermédiaire d'un initiateur qui fournit une énergie d'activation. Cette énergie d'activation peut être un apport de chaleur par frottement par arc électrique, rayonnement ou surchauffe par compression de l'air à l'exemple du moteur Diesel. Une fraction de ces radicaux primaires créés réussit à initier la réaction.
- ✓ Une deuxième réaction qui est l'addition de ces radicaux primaires sur les premières unités du combustible (molécules) qui générera par la suite des radicaux secondaires qui entretiennent la combustion en chaîne des mélanges réactifs.

L'amorçage est conditionné par plusieurs facteurs, parmi lesquels on trouve la nature et la qualité des mélanges réactifs et le système utilisé pour l'amorçage. Les limites qui conditionnent la combustion sont : la limite supérieure d'inflammabilité, la limite inférieure d'inflammabilité, le point d'éclair, la température d'auto-inflammation et l'énergie minimale d'ignition. Ces limites seront discutées dans les sections à venir.

En combustion, on a plusieurs modes d'amorçages des mélanges réactifs, certaines ont fait leurs preuves dans des applications en laboratoire ou même industriels :

- Auto inflammation;
- Inflammation locale :
 - a. Allumage par arc,
 - b. Allumage par surface chaude,
 - c. Allumage par friction ou impact,
 - d. Allumage par jet de gaz ionisé,
 - e. Allumage par particules chaudes,
 - f. Allumage par torche de flamme,
 - g. Allumage laser.

Les modes les plus utilisés sont l'auto inflammation de certains fuels et l'allumage par arc électrique dans les machines à compressions rapides, à l'exemple des moteurs de propulsion aériennes ou encore ceux de propulsion terrestre et maritime.

4.1 Amorçage par auto inflammation

C'est le principe des moteurs Diesel. Le point d'auto-inflammation représente la température à partir de laquelle un fuel s'enflamme spontanément sans aucune présence préalable de flamme.

Les fuels utilisés dans ce type de moteur sont caractérisés par l'indice de cétane qui compare en d'autre terme l'auto inflammabilité par rapport à deux mélanges de référence : le cétane ou l'hexa-décane (C₁₆H₃₄) indice 100 et l' α -méthylnaphtalène indice 0 qui ne s'auto enflamme pas. Le gazole vendu en pompe présente un indice de cétane compris entre 42 et 55. Un indice de cétane supérieur ne présente aucun avantage en termes de rendement. Un indice de cétane inférieur à cette plage de valeur (< 40) affectera le moteur en présentant des difficultés de démarrage.

Dans cette configuration d'amorçage, le carburant est injecté sous haute pression d'air comprimé et le mélange s'auto enflamme spontanément selon l'équation adiabatique de compression qui élève le mélange à haute température.

$$\frac{T_2}{T_1} = \left(\frac{P_2}{P_1} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \quad (\text{EQ I.11})$$

L'amorçage du réactif se fait au cours d'un délai d'allumage très court avoisinant une milliseconde. Ce processus demande un échauffement près de la culasse par les bougies de préchauffage. Il demande encore une atomisation très fine du spray injecté dans le but d'avoir des vitesses de rotations élevées. Celles-ci sont corrélées directement aux vitesses d'auto inflammation (Thibault, 2008). La *Figure I. 20 A* montre l'influence du nombre d'atomes de carbone dans la chaîne d'un hydrocarbure sur la température d'auto inflammation. La *Figure I. 20 B* montre l'effet du volume sur le même paramètre. D'autres données expérimentales et des modèles de calcul des températures d'auto inflammation peuvent être trouvés dans les références suivantes : (Bond, 1991 ; Pan, et al, 2008 et Tsai et al , 2012).

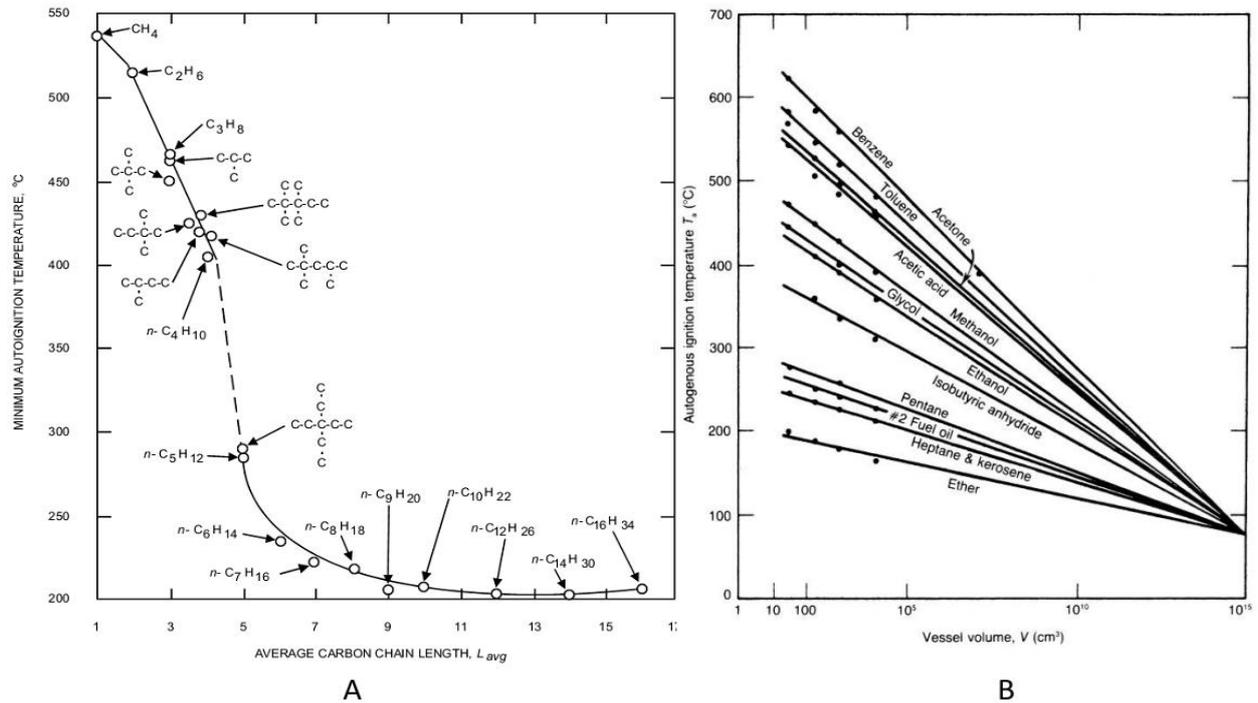


Figure I. 20 : A : Température minimale d'auto inflammation en fonction du nombre d'atomes de carbone (Bond, 1991). B : effet du volume sur la température d'auto inflammation (Mannan, 2012)

Le point d'auto inflammation est différent du point d'inflammation qui correspond à la température pour laquelle la combustion une fois amorcée continue à se propager, ce dernier aussi est différent du point éclair qui est la température où le liquide produit des vapeurs pour qu'elles s'enflamment momentanément en présence d'une énergie d'activation.

4.2 Amorçage par bougie électrique

Ce système est utilisé dans tous les moteurs à allumage commandé en circulation actuellement qui fonctionnent généralement à l'essence (ou au gaz naturel, gaz de pétrole liquéfié GPL, éthanol...). Les combustibles utilisés dans ce mode d'allumage se caractérisent par un indice d'octane qui évalue la résistance de ces derniers au cliquetis (résistance à la détonation), cet indice est déterminé par deux références l'isooctane indice 100 et n-heptane indice 0.

L'amorçage par ce système se fait localement en générant une étincelle qui est créé par une bougie électrique (voir la Figure I. 21) dans un mélange homogène. Dans ce cas, le plasma d'allumage très chaud est produit lorsqu'une haute tension est appliquée entre les électrodes de la bougie d'allumage (création d'un gaz ionisé).

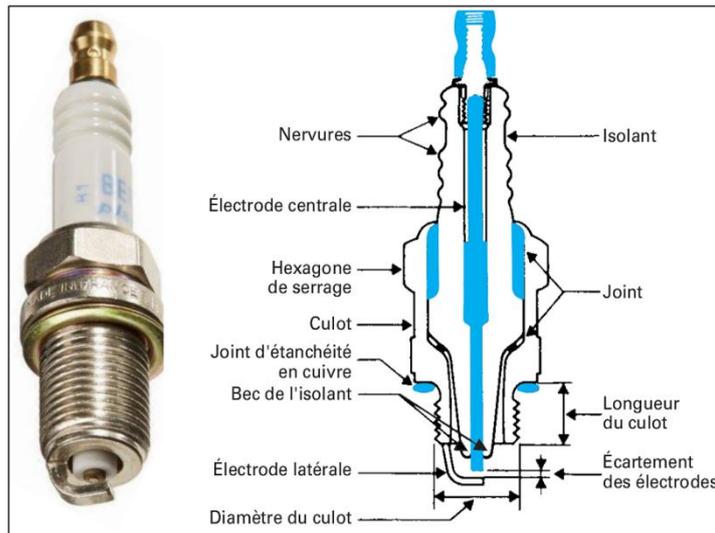


Figure I. 21 : Bougie d'allumages conventionnelle et ses composants (Trapy, 2013)

Le mélange du gaz réactif environnant est chauffé très intensivement dans la zone du plasma créé. En conséquence, la température monte très rapidement et un front de flamme se développe.

Le matériau employé usuellement dans la fabrication des électrodes des bougies est le nickel, souvent du manganèse et du silicium peuvent être rajoutés pour avoir un alliage résistant aux produits chimiques agressifs à l'exemple de l'oxyde de soufre (SO_2) contenu dans les carburants et dans les huiles de graissage. Des additifs d'aluminium et d'yttrium donnent une bonne résistance à l'oxydation. Le noyau central (Electrode centrale de *Figure I. 21*) est en cuivre pour dissiper plus vite la chaleur et pour une bonne conductivité électrique.

Le platine (Pt) et ses alliages sont des matériaux qui présentent des niveaux élevés de résistance à la corrosion, à l'oxydation et à l'érosion thermique. Ceci est la raison pour laquelle le platine est la substance de choix des bougies d'allumages pour une utilisation de longue durée.

La *Figure I. 22* présente quelques géométries usuelles et les différents concepts d'éclatement donnant naissance aux arcs électriques. L'écartement des électrodes (G : gap) détermine entre autres la longueur de l'étincelle. Une plus petite distance entre les électrodes permet d'utiliser une tension inférieure pour générer un éclatement (étincelle d'allumage). Un trop faible écart ne produit qu'un petit noyau de flamme dans la zone de l'électrode. Du fait que ce noyau de flamme perd de l'énergie à travers les surfaces de contact de l'électrode (fort gradient de température), la vitesse à laquelle le noyau de flamme se propage est très lente. Dans des conditions extrêmes, la perte d'énergie peut être suffisamment élevée pour produire un allumage manqué (arc sans flamme). Comme les gaps d'électrodes augmentent en raison de l'usure des électrodes, les pertes thermique deviennent plus faibles et conduisent à une amélioration des conditions pour

l'allumage, mais des gaps excessivement grands augmentent également la demande en tension d'allumage.

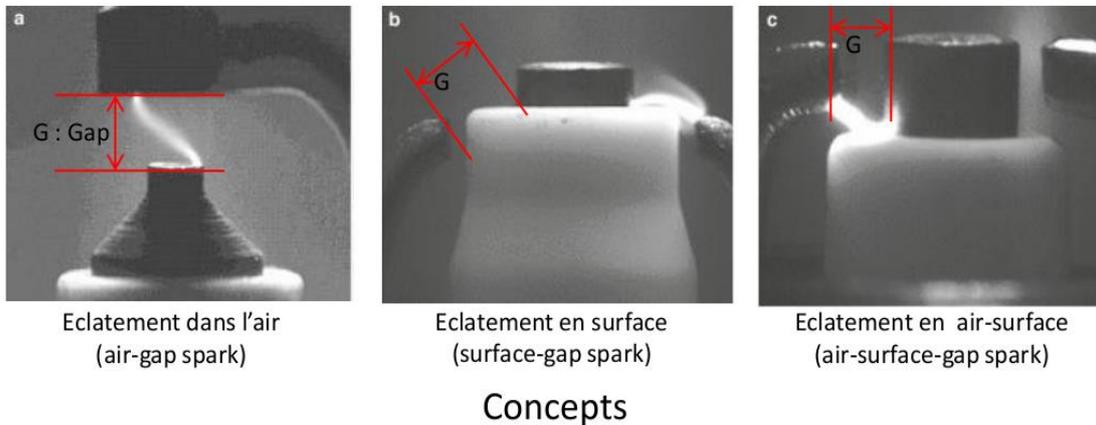
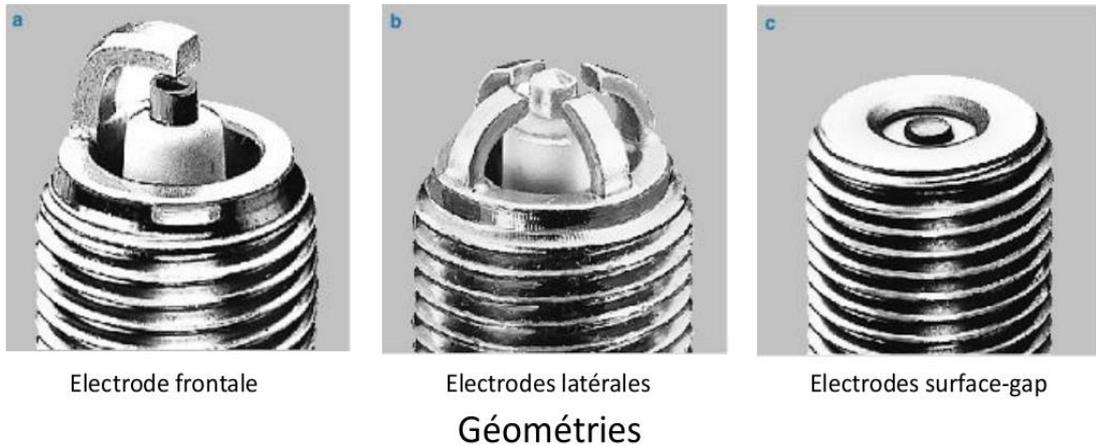


Figure I. 22 : Géométries usuelles des bougies d'allumage et les différents concepts d'éclatement

En réalité, la décharge électrique n'est pas un phénomène aussi simple, le processus se fait sur plusieurs phases dont le procès est bien décrit dans le livre de Hillard John (Hilliard, 1984). Pour information, on rappelle brièvement les étapes qui sont portées sur la *Figure I. 23* qui montre le signal de la tension et du courant appliqués.

La *Figure I. 23* montre 4 étapes caractérisant une décharge électrique : une phase de pré-claquage, une deuxième phase de claquage, une troisième phase d'arc et la dernière est la décharge lumineuse.

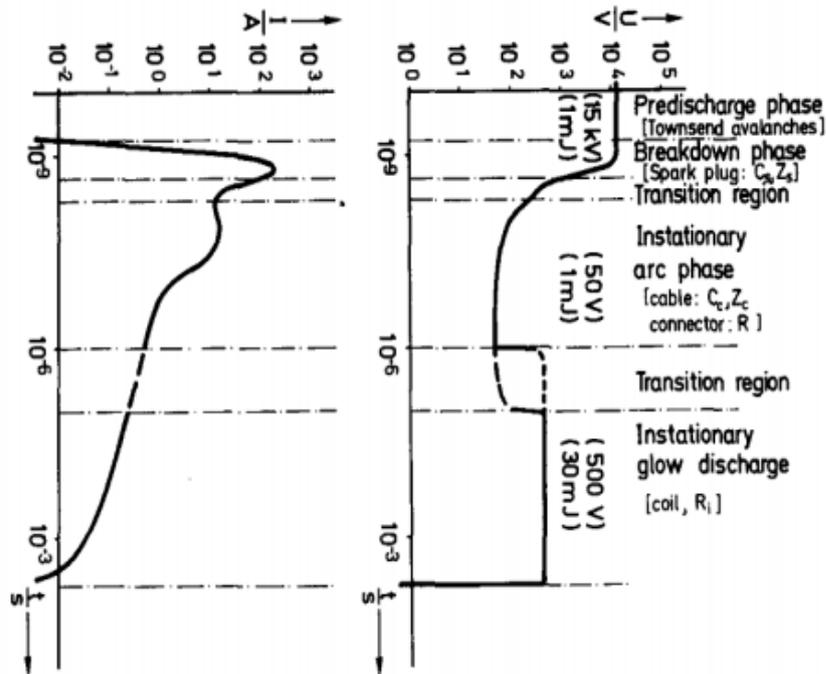


Figure I. 23 : Signal de tension et de courant montrant les étapes de création d'un arc électronique (Maly & Vogel, 1979)

- A. **Phase de pré-claquage :** le volume de gaz autour de l'écartement des électrodes représente un isolant parfait initialement lorsque l'impulsion d'allumage est appliquée. Les électrons libres existant autour des électrodes peuvent gagner de l'énergie dans le champ électrique appliqué. Ces derniers sont accélérés vers l'anode. Si le champ électrique appliqué a atteint des valeurs suffisamment élevées de l'ordre de 50 à 100 kV / cm (Hilliard, 1984), les électrons accélérés dans la zone peuvent ioniser les molécules de gaz par des collisions générant des électrons et des ions supplémentaires. Ces porteurs de charge gagnent de l'énergie à partir du champ électrique et ainsi contribuent encore au courant d'électrons montant. Le nombre d'électrons et d'ions augmente rapidement suivant un processus d'avalanche. Cependant, comme les électrons sont collectés par l'anode, des processus supplémentaires sont nécessaires pour générer suffisamment de nouveaux électrons afin de rendre ce processus de multiplication auto-entretenu. Ceci est réalisé par un rayonnement UV ($\lambda < 200$ nm) émis par des ions excités, car les électrons hautement énergétiques, non seulement ionisent les molécules de gaz mais excitent encore une multitude de niveaux électroniques des autres molécules. Dans les petits gaps à des pressions basses ($G < 1$ mm, $p < 1$ bar), le rayonnement peut atteindre la cathode directement et libérer des photoélectrons à sa surface. Pour des écarts et des pressions plus élevés ($G > 1$ mm, $P > 1$ bar), le rayonnement UV est également absorbé par les molécules gazeuses environnantes,

provoquant une atténuation du rayonnement pour devenir ionisant dans la région du volume d'émission de rayonnement primaire à la cathode. Ainsi, les procédés d'ionisation initiés par le champ électrique appliqué se développent en produisant une augmentation rapide du flux de courant à travers le gap (cathode anode) avec une capacité à auto-entretenir le processus indépendamment du champ électrique externe. Tant que les processus d'ionisation produisent moins d'électrons que nécessaires pour entretenir cette phase de décharge le processus est appelé phase pré-claquage. Plus la tension monte rapidement et plus les processus d'ionisation deviennent efficaces. La température du gaz est encore très proche de sa valeur initiale et la densité électronique moyenne inférieure à 10^{15} e / cm³, bien que la densité dans les canaux d'ionisation individuels (streamers) puisse atteindre 10^{18} e / cm³. Dans l'air et l'azote, un rayonnement intense des molécules de N₂ est émis (second système positif), utilisé pour pomper des électrons. Le nuage du gaz ionisé remplit tout l'espace intérieur entre le gap séparant l'électrode et l'anode où un champ électrique suffisamment fort existe.

B. Phase de claquage : Au moment où une densité d'électron suffisante est atteinte par le processus d'ionisation de la phase précédente, le milieu gaz devient conducteur (les streamers créés deviennent des ficelles conductrices) et le courant augmente exponentiellement en quelques nanosecondes (*Figure I. 23*). La tension correspondante chute accompagnée du champ électrique. Cette étape définit la phase du claquage. Pour un claquage complet correspondant à un gap de 1 mm et une pression de 1 bar avec de l'air, une énergie minimale de 0.3 mJ est nécessaire. Pendant la phase de claquage, la conductivité électrique augmente légèrement, ce qui apporte progressivement de plus en plus de flux de courant. La densité d'ions augmente rapidement à des valeurs de 10^{19} e / cm³ pour permettre un échange d'énergie via les forces de Coulomb entre les électrons et les ions. Ce processus devient dominant et provoque la perte d'énergie des électrons accélérés. L'énergie électrique est transférée de façon très efficace à partir du condensateur de par l'intermédiaire du champ électrique vers les électrons et les ions du plasma. Ceci conduit à un degré extrêmement élevé d'ionisation (des concentrations sensibles des ions d'azote N⁴⁺ ont été mesurées) et l'excitation électronique se produit avec une augmentation massive de la température du gaz (jusqu'à 60 000 K). Ceci est illustré sur la *Figure I. 24 B* (Hilliard, 1984).

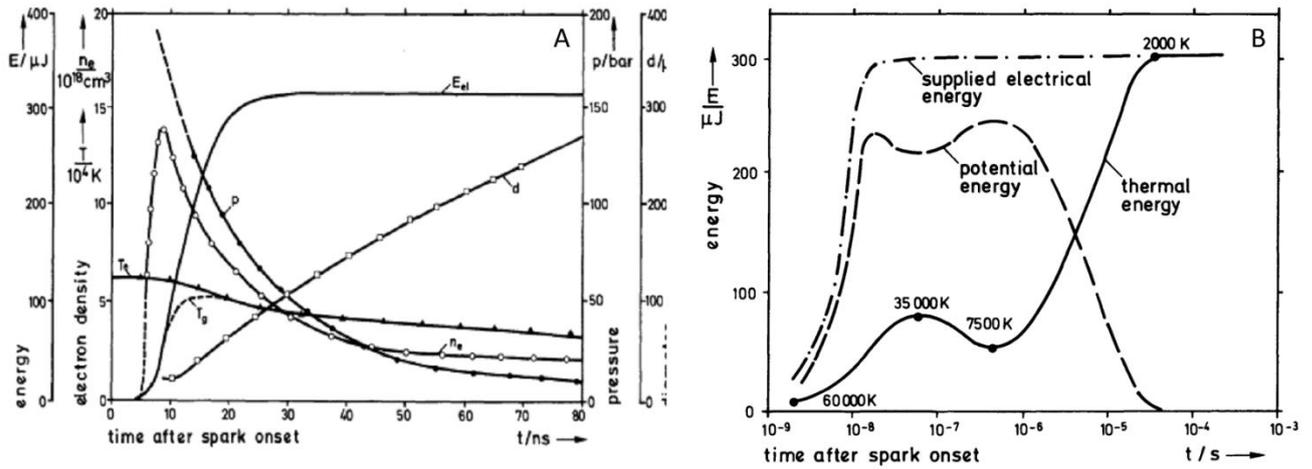


Figure I. 24 : (A) Paramètres du plasma sur la phase de claquage à 300 K, 1 bar, et $G=1$ mm. Durée de courant de claquage: 10 nsec. Origine de l'échelle de temps arbitraire. E_{el} l'énergie électrique fournie aux électrodes; T_e , la température des électrons; T_g température de gaz, n_e : densité électronique; P surpressions; d : diamètre du canal plasma (B). Distribution temporelle des approvisionnements en énergie électrique dans un plasma de claquage du potentiel électrique à l'énergie thermique (Hilliard, 1984)

Ces processus sont concentrés dans un canal étroit de l'ordre de 40 μm correspondant aux diamètres des streamers lors de la phase de pré claquage. Toutes les particules lourdes à l'intérieur de ce canal sont entièrement dissociées, ionisées et fortement excitées de sorte qu'une particule lourde transporte plus de 20 eV de l'énergie interne ou potentielle contre seulement environ 5,5 eV d'énergie thermique (à 60.000 K). Ceci est illustré sur la Figure I. 24. Comme il y a encore des niveaux d'excitation plus élevés disponibles, cela démontre que des grandes quantités d'énergie sont mises en jeu dans cette phase de claquage (Figure I. 24 B). En raison de la transition extrêmement rapide de la température de gaz à 60.000 K, la pression à l'intérieur du canal augmente presque instantanément à plusieurs centaines de bars provoquant l'émission d'une détonation intense (onde de choc). Le canal se développe de manière correspondante à une vitesse supersonique. Au cours de cette expansion, le canal se refroidit en étant en équilibre thermique à chaque instant l'énergie potentielle stockée est convertie progressivement en énergie thermique en soutenant le processus d'expansion et de recombinaison. Cette phase peut être considérée comme une transition d'un plasma froid vers un plasma thermique. Il restera au final quelques radicaux qui survivent après que la densité des atomes soit retombée à des valeurs très faibles. Une fraction de 30% d'énergie initialement emportée par l'onde de choc est vite perdue car la détonation sphérique transfère rapidement son énergie aux molécules de gaz environnantes. La zone choquée a la taille d'une petite sphère ($d = 2$ mm). Cependant, une durée prolongée du flux de haut courant conduit à des émissions thermo-ioniques de spot chaud. Cela indique la fin de la phase descendante percée et le début du régime d'arc. Les pertes par rayonnement sont faibles et le rayonnement

ultraviolet très énergétique ($\lambda < 200$ nm) est pris au piège dans le canal par réabsorption pendant des intervalles de temps qui sont très courts. Des pertes mineures sur la surface se produisent dans la partie basse énergie du spectre ($\lambda > 200$ nm). Un bilan énergétique est donné dans le *Tableau I. 7*. La fin de claquage peut être considérée comme le point où la tension d'allumage a chuté en-dessous de 10% de sa valeur initiale. Physiquement, c'est le point à partir duquel un endroit de la cathode chaude existe et tourne la décharge en arc.

Tableau I. 7 : Quantification des pertes pendant les différentes phases de la décharge électrique (Hilliard, 1984).

<i>Pertes</i>	<i>Phase de claquage (Breakdown Phase)</i>	<i>Phase d'arc (Arc Discharge)</i>	<i>Phase de la décharge (Glow Discharge)</i>
<i>Par rayonnement thermique</i>	< 1%	5%	< 1%
<i>Par conduction via les électrodes</i>	5%	45%	70%
<i>Totalité des pertes thermique</i>	6%	50%	70%
<i>Perte via le plasma</i>	94%	50%	30%

C. Phase d'arc : L'arc doit toujours être précédé de la phase de claquage dans le but de créer une conductivité électrique suffisamment élevée pour le déclencher. Elle se caractérise par des courants de plus de 100 mA. La tension est très faible, de l'ordre de 50 V à 1 bar dans un gap de 1mm. Ce potentiel se divise en 15 V de chute pour la cathode, 10 V pour le plasma d'arc, et 25 V pour l'anode. La chute de tension à la cathode est nécessaire pour le maintien des spots de matière en fusion à la cathode dont la température avoisine les 3000 K (ordre de grandeur de la température d'évaporation du matériau de cathode) et la taille est de 10 à 40 μm de diamètre. Les électrons émis par ces spots de plasma thermique sont nécessaires pour maintenir l'arc. Sans ces spots de métal fondu, l'arc ne peut pas exister. En raison de la température élevée de la cathode, des taches de fusion dues à sublimation du matériau apparaissent. Elles érodent la cathode jusqu'à ce qu'elles augmentent le gap et la bougie perd son efficacité.

Les dépendances temporelles des profils de température finale ont été représentées sur les *Figure I. 24 B* et *Figure I. 25*. Un contact prolongé et intense du plasma d'arc avec les électrodes conduit à des grosses pertes de chaleur par conduction. En même temps, les pertes par rayonnement se produisent également à partir des surfaces du plasma.

D. Phase de décharge (Glow Discharge) : La décharge luminescente à haute pression est très similaire à la phase d'arc, sauf dans le cas où la cathode se refroidit. Cette phase obtient ses électrons de par la libération d'électrons très inefficaces venant des impacts d'ions. Les densités de courant sont inférieures à 100 mA. Si le courant est forcé à monter au-delà de

cette valeur, des spots en fusion peuvent se développer et avec des pressions supérieures cette phase peut transiter vers la phase précédente (arc). La perte thermique totale de cette phase avoisine 70% et la température chute de 3000 K.

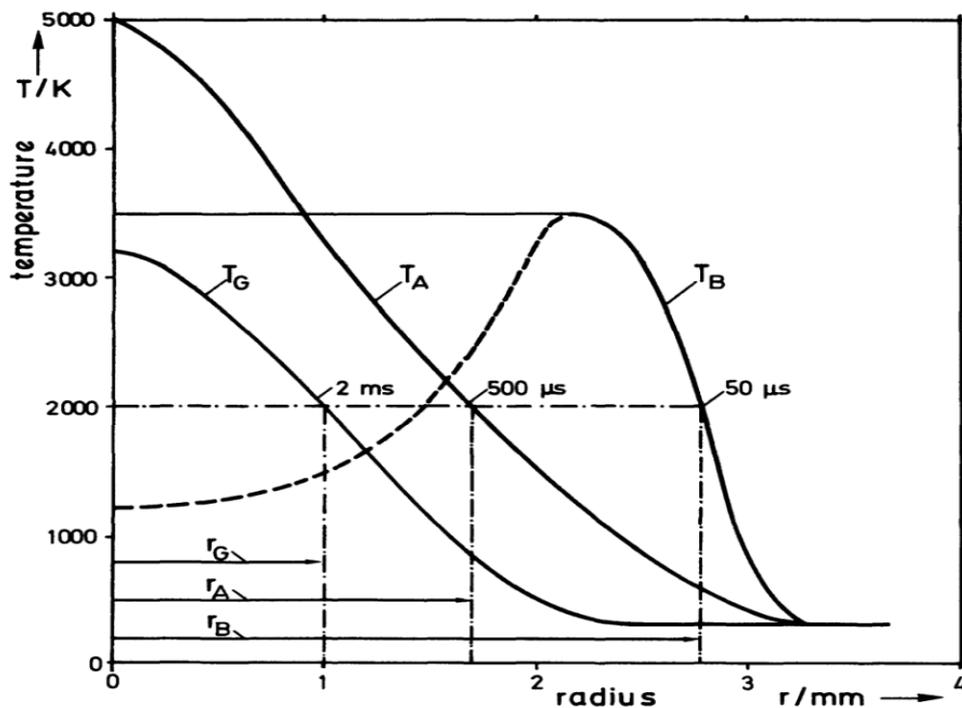


Figure 1. 25 : profil radial des températures des différentes phases : Claquage (T_B) ; Arc (T_A) et phase de décharge (T_G) (Hilliard, 1984)

- La difficulté reste de fixer la limite de cette phase et l'apparition du premier noyau de flamme qui est conditionné par le volume du plasma, voici quelques paramètres dont il dépend :
- L'énergie électrique d'allumage appliquée,
- La durée de vie du plasma (succession des phases),
- Les conditions locales d'écoulement dans la chambre de combustion et à proximité des électrodes de bougie d'allumage,
- La richesse du mélange réactif,
- La géométrie de la bougie (des cathodes),
- La configuration de la chambre de combustion (a un effet sur les pertes thermiques).

4.3 Amorçage par torche plasma

La torche à plasma est considérée comme l'un des meilleurs amorceurs et parmi les plus prometteurs pour une utilisation dans des moteurs à combustion supersonique comme le ram-jet ou le scram-jet. Ainsi, les caractéristiques d'allumage des torches plasma dans les flux

supersoniques ont été expérimentalement (Kimura, Aoki, & Kato, 1981; F. Li et al., 2013) et analytiquement (Takita, 2002) étudiées. Par conséquent, il a été démontré que les radicaux inclus dans le jet plasma (PJ) (gaz moteur de la torche) améliorent la réaction de combustion en accélérant les réactions en chaîne et en diminuant aussi les délais d'allumage (Takita et al, 2005). Un exemple d'un montage expérimental en laboratoire utilisant ce principe (*Figure I. 26*) est celui de Takita (Takita et al, 2007).

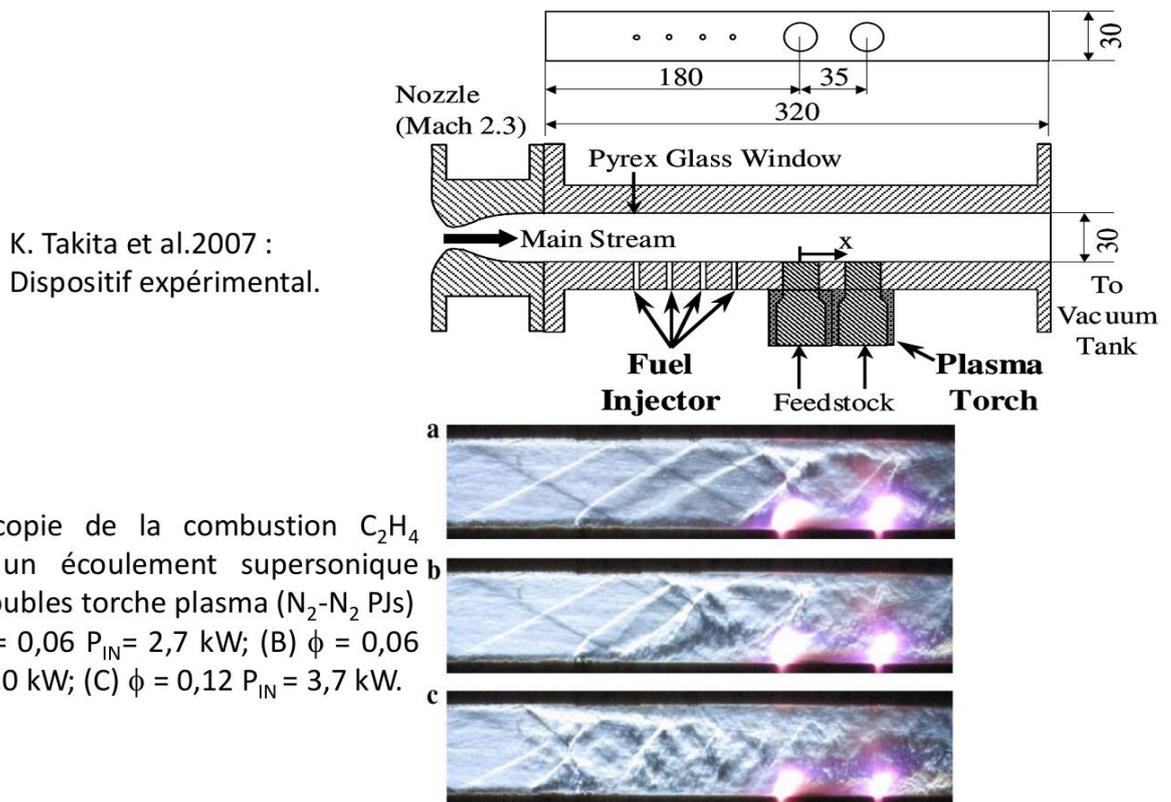


Figure I. 26 : Dispositif expérimental de Takita et al 2007

La *Figure I. 27* explique simplement ce qu'est une torche plasma. Son principe consiste à faire circuler un gaz entre des électrodes. Celles-ci ionisent et accélèrent le gaz moteur à travers une tuyère à la sortie de la torche. Souvent, des gaz monoatomiques sont utilisés tels que de l'argon à faible pression. Ce dernier demande uniquement 150 V de tension appliquée entre l'anode et la cathode de la torche pour être ionisé (Jr., 1998). Dans le cas des gaz diatomiques, cette tension peut dépasser largement cette valeur.

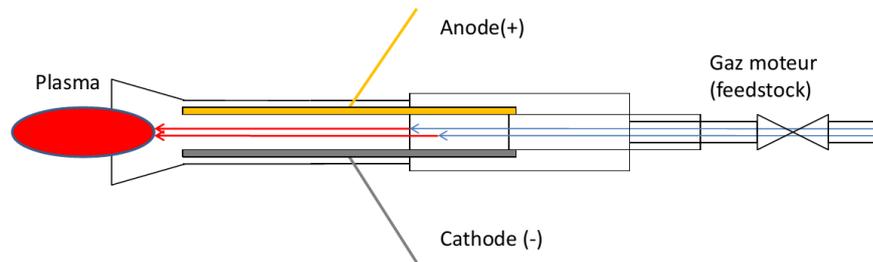


Figure I. 27 : Schéma simplifié d'une torche plasma

Il est bon à savoir que l'allumage dans ce cas dépend de l'apport d'énergie électrique, du débit et de la nature du gaz injecté dans les torches. Le principe peut fonctionner avec des mélanges de gaz moteur (H_2 et N_2-O_2).

4.4 Décharge micro-onde/RF.

L'application de ce principe va offrir une économie d'énergie et une diminution des émissions de polluants selon (Zhi Wang et al, 2015). Ce concept est efficace car il crée un plasma par une décharge micro-onde de résonance dans le but d'amorcer un réactif (MRPI : microwave resonance plasma ignition).

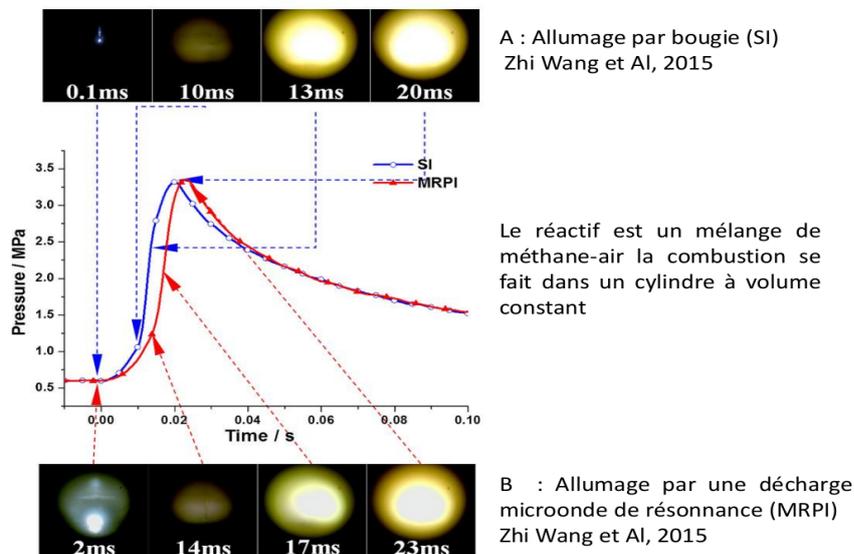


Figure I. 28 : Comparaison entre l'allumage par bougie électrique et l'allumage par décharge microonde en résonance (Zhi Wang et al, 2015).

L'excitation micro-onde permet un chauffage direct des électrons ce qui donne instantanément naissance à des espèces actives (les fréquences peuvent atteindre des MHz parfois même des GHz). L'avantage de ce concept est l'absence d'électrodes ce qui implique qu'il n'y a pas de contact métallique avec le plasma. Une comparaison est faite entre ce système et le système standard de bougie d'allumage par Zhi Wang voir Figure I. 28 (Zhi Wang et al, 2015).

L'inconvénient constaté sur la *Figure I. 28* est le délai d'allumage qui est plus au moins long par rapport à l'allumage par bougie électrique. Les caractéristiques thermodynamiques de combustion (pression maximale) restent les mêmes dans les deux cas malgré la différence de volume du plasma créé. Ce système procure une combustion complète (Zhi Wang et al, 2015).

L'allumage d'un mélange inflammable peut s'amorcer aussi par l'énergie produite à partir d'un champ électromagnétique de fréquence radio. Les conditions à satisfaire sont les suivantes :

- Un rayonnement électromagnétique d'une intensité suffisante sur une zone du mélange inflammable,
- La présence d'une structure capable de se comporter comme une antenne de réception pour donner naissance à un courant induit,
- Un contact intermittent de telle sorte que l'énergie reçue puisse être convertie en une étincelle d'une intensité suffisante pour allumer.

La gamme de fréquence de préoccupation est supérieure à 15 kHz au-delà de cette valeur, les réactifs sont susceptibles de présenter un danger d'inflammation (Bond, 1991). La *Figure I. 29* montre l'emplacement des ondes radio et les microondes en termes de longueurs d'ondes et de fréquences.

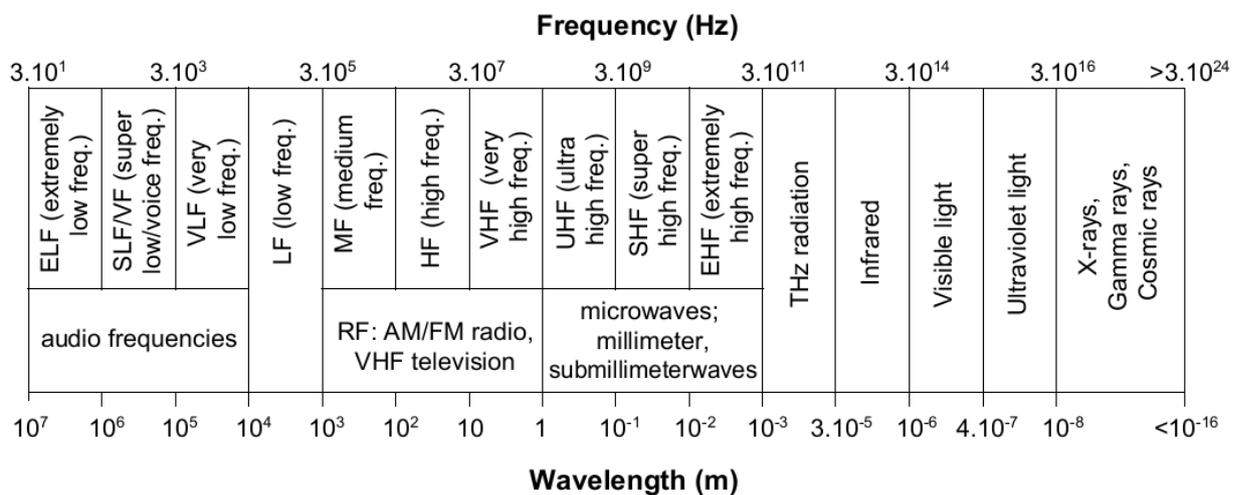


Figure I. 29 : Classification des ondes en termes de fréquences et de longueur d'onde (Golio, 2001)

4.5 Amorçage par laser

L'allumage induit pas laser peut se faire par plusieurs méthodes. Celles-ci sont caractérisées par différentes spécificités comme par exemple le temps d'application ou de maintien, les caractéristiques physiques (longueur d'onde, forme du faisceau...) et géométriques du faisceau ainsi que de l'optique utilisé...

Si on considère la même échelle de temps d'amorçage (pulse électrique et pulse laser) entre le système d'allumage traditionnel électrique et le système d'allumage laser. La comparaison faite ci-dessous montre les différences et les avantages d'un système à l'autre.

Inconvénients de l'allumage par bougie :

- Non flexibilité de position de la bougie d'allumage.
- Pertes de chaleurs importantes à travers les parois.
- Impossible d'allumer à l'intérieur du jet de carburant (moteur noyé).
- Difficulté de fonctionnement avec des mélanges pauvres.
- Dégradation des électrodes vers les régimes de haute pression et de température.
- Vitesse de flamme faible par l'effet intrusif de la bougie.
- Allumage multipoints n'est pas possible.
- Une turbulence dans la chambre de combustion est nécessaire.

Avantages de l'allumage par bougie :

- Système avec une technologie bien connue et qui n'est pas chère.

Avantages de l'allumage laser

- Possibilité de fonctionnement avec des mélanges pauvres.
- Possibilité d'allumer dans les jets du carburant.
- Fonctionnement à haute pression et à haute température.
- Fonctionnement avec des taux de compression élevés.
- Propagation de la flamme très rapide du fait d'allumer loin des parois.
- Efficacité considérable par l'allumage multipoint.
- Propriété d'auto-nettoyage des fenêtres optiques en éliminant les dépôts de carbone.
- Contrôle de l'énergie déposée.

Inconvénients de l'allumage par laser :

- Système restant très couteux pour une utilisation standard sur des véhicules terrestres mais envisageable pour des applications aéronautiques à haute altitude.

4.5.1 Allumage par claquage résonant (R L I S)

Cette méthode consiste à exciter des bandes atomiques ou moléculaires précises d'un élément ou de plusieurs éléments des gaz qui constituent le mélange inflammable. Ce principe est réalisé en choisissant une longueur d'onde bien précise de la source laser égale ou proche de la longueur d'onde d'excitation de la molécule gaz ciblée (molécule de fuel, CO₂, H₂O, N₂, Ar ou O₂). Le processus commence par une photodissociation non résonnante des molécules de gaz concernées générant une photo ionisation sur les atomes générés par la décomposition des molécules ciblées. Ce processus conduit à la création d'électrons d'ensemencement qui absorbent encore plus d'énergie par effet Bremsstrahlung inverse donnant naissance à un plasma. Cette méthode reste la plus efficace pour amorcer des claquages de combustion.

L'étude de ce processus a beaucoup intéressé Forch et Starik (Forch & Miziolek, 1986; Starik, Kuleshov, & Titova, 2009) qui ont prouvé que cette méthode est plus efficace que le claquage non résonant. La résonance engendre plus d'absorption de l'énergie portée par l'impulsion laser que les claquages de non résonant. Cependant, même avec cette meilleure efficacité, l'utilisation pratique de cette méthode est limitée car elle est couteuse. De plus, il est nécessaire d'investiguer sur des nouvelles technologies de laser et de matériaux pour faire correspondre leurs longueurs d'ondes à celles des molécules (longueur d'ondes d'excitations des molécules fuel, O₂,...) impliquées dans le processus de résonance. Un exemple d'étude est présenté par Steven et Adams couplant cette méthode avec une décharge électrique de haute tension entre deux électrodes (Steven F. Adams, 2010).

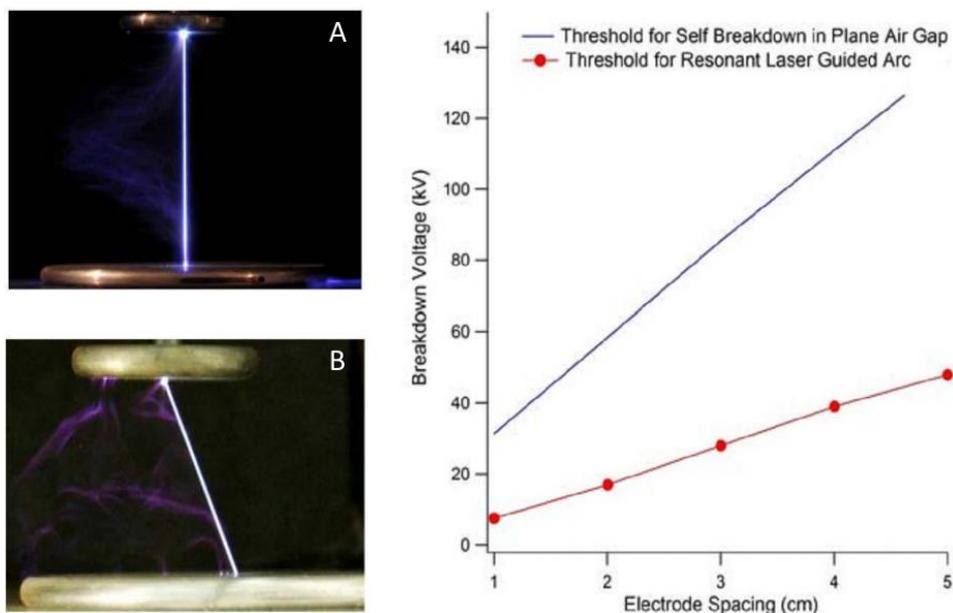


Figure I. 30 : Décharge électrique entre électrodes couplée à un claquage laser résonant (Steven F. Adams, 2010).

La Figure I. 30 montre l'effet de la résonance apportée par le faisceau laser de faible énergie 3 mJ sur l'orientation de l'arc créé (A : sans inclinaison ; B : inclinaison de faisceau de 40°).

Le graphe montre à droite l'effet de la résonance sur le seuil de la tension de claquage entre électrode en fonction du gap (distance entre électrodes).

4.5.2 Allumage par claquage non-résonant (L I S)

Le processus utilisé au cours de cette thèse rejoint cette technique qui ne dépend pas de la valeur de la longueur d'onde (pas d'effet de résonance avec les molécules du mélange). Dans ce cas, le phénomène débute par l'ionisation multi photonique des molécules de gaz et, par conséquent, par la création d'électrons libres qui absorbent l'énergie par effet Bremsstrahlung inverse tout en

augmentant leurs énergies cinétiques. Une fois que les électrons ont gagné assez d'énergie, ils entrent en collision inélastique avec d'autres molécules en libérant plus d'électrons, provoquant une avalanche électronique. Cette avalanche électronique provoque la formation d'un plasma froid de claquage induisant la formation de radicaux primaires donnant naissance ensuite à plus de radicaux (CH, NH, OH...) qui vont entretenir à leur tours la combustion du mélange réactif. Cette technique demande plus d'énergie pour réussir le claquage des mélanges gaz, des irradiances de 10^{10} à 10^{11} W/cm² sont nécessaires (Hatwar & Verma, 2012). Ce procédé sera décrit plus en détails dans le deuxième chapitre et le troisième chapitre.

4.5.3 Allumage photochimique par laser

La combustion photochimique induite par laser consiste à décomposer les molécules d'un mélange réactif pour créer des radicaux très réactifs avec les photons du laser. Une fois que la vitesse de dissociation est supérieure à celle des recombinaisons des radicaux créés, la réaction en chaîne induit directement l'inflammation du mélange. Les expériences de Farkas en 1930 ont montré que le mélange H₂/O₂ contenant une petite fraction de NH₃ devient explosif à des températures modérées de 420°C sous des radiations ultra-violettes (Chou & Zukowski, 1991).

Les progrès récents dans les lasers ultraviolets à haute énergie ont stimulé un regain d'intérêt dans ce procédé d'allumage chimique, car ces derniers peuvent générer suffisamment de radicaux par photolyse pour initier la combustion d'une manière exceptionnellement contrôlée. L'absorption de photons laser, qui produisent des espèces radicalaires réactives, a également été utilisée pour amorcer la combustion. Par exemple, Lavid et Stevens ont utilisé le laser à F₂, fonctionnant à 157 nm pour la photolyse de O₂ utilisée comme un moyen d'allumage du mélange H₂+ O₂, (Lavid & Stevens, 1985). Lucas et al ont utilisé un laser KrF fonctionnant à 248 nm pour la photolyse de O₃ utilisé comme moyen d'allumage des mélanges H₂+O₂ ; CH₄+O₂ et des mélanges C₃H₈+O₂ (Lucas et al, 1987).

Tableau I. 8 : Longueur d'onde de photodissociation (Lavid & Stevens, 1985) .

Molécule absorbante → Produits de réaction	Longueur d'onde de la photolyse (nm)
$O_2+(h\nu)\rightarrow O+O$	175-245
$O_2+(h\nu)\rightarrow O+O(^1D)$	134-175
$O_3+(h\nu)\rightarrow O_2(^1\Sigma_g^+)+O(^1D)$	<260
$H_2O+(h\nu)\rightarrow OH+H$	<242
$HO_2+(h\nu)\rightarrow OH+O$	<456
$H_2O_2+(h\nu)\rightarrow OH+OH$	<365

Cette méthode nécessite une concentration minimale de radicaux avoisinant $3 \cdot 10^{17}$ Radical/cm³ pour démarrer les réactions en chaîne du mélange H₂+O₂ à 157 nm et provoquer son inflammation (Lavid & Stevens, 1985).

La technique peut être utilisée pour enflammer des mélanges à basse pression et à proximité de la limite d'inflammabilité, cela requiert juste des longueurs d'ondes spécifiques entre le laser et la molécule qui va être dissociée. En outre, la plupart de ces longueurs d'onde sont dans le spectre ultraviolet qui est très énergétique, ce qui rend difficile la mise en service des applications pratiques (Voir *Tableau I. 8*).

4.5.4 Allumage par thermalisation laser

La thermalisation laser (chauffage laser) peut être créé soit par focalisation soit directement par le faisceau laser dont la durée de l'impulsion est généralement très longue. L'objectif final recherché est d'augmenter l'énergie cinétique des molécules en créant des rotations et des vibrations moléculaires jusqu'à atteindre la rupture de leurs liaisons moléculaires. Cette rupture crée forcément des radicaux libres. Ces derniers, en atteignant une fraction suffisante, initient les réactions chimiques de combustion. Dans ce procédé, il est très difficile d'obtenir un noyau bien défini pour provoquer l'allumage du mélange.

Cette méthode produit généralement une vaste région chauffée mais qui parfois ne suffit pas à amorcer une flamme. Pour corriger ce défaut, des petites particules solides opaques organiques ou métalliques peuvent être incorporées au mélange solide ou gaz pour accélérer le chauffage en jouant le rôle d'un catalyseur de combustion. Cette technique est utilisée pour initier des matériaux énergétiques (Ahmad & Cartwright, 2015) tels que le RDX, HMX, TETRYL, TNT...

5 Physique des flammes en régime laminaire

Après avoir amorcé, avec une des techniques décrites précédemment, en apportant suffisamment de radicaux libres pour initier le premier front de flamme, celui-ci commence son développement et son expansion d'une manière laminaire si le mélange du départ est au repos et que la perturbation d'amorçage ne provoque pas la transition vers la turbulence (comme dans le cas de plusieurs points d'allumage dans un mélange réactif).

Les flammes amorcées peuvent se classer selon la géométrie de la zone réactive formée qui est visible à l'œil, à l'exemple des flammes coniques (Tran Manh Vu et al, 2014), des flammes plates (Wu Jin et al, 2015), des flammes à jets opposés (Jozef JAROSINSKI, 2009; Peters, 1985)

ou encore des flammes sphériques (Sheng Yang et al, 2016). Il faut aussi considérer que ces appellations viennent directement de l'interaction de la zone réactive avec les parois des réacteurs qui sont soit fermés (volume constant généralement) soit ouverts (pression constante) sans oublier que les deux cas peuvent exister au même temps, i.e. interaction avec l'environnement extérieur.

Les flammes présentées dans la *Figure I. 31* peuvent être des flammes de pré mélange comme elles peuvent être des flammes de diffusion.

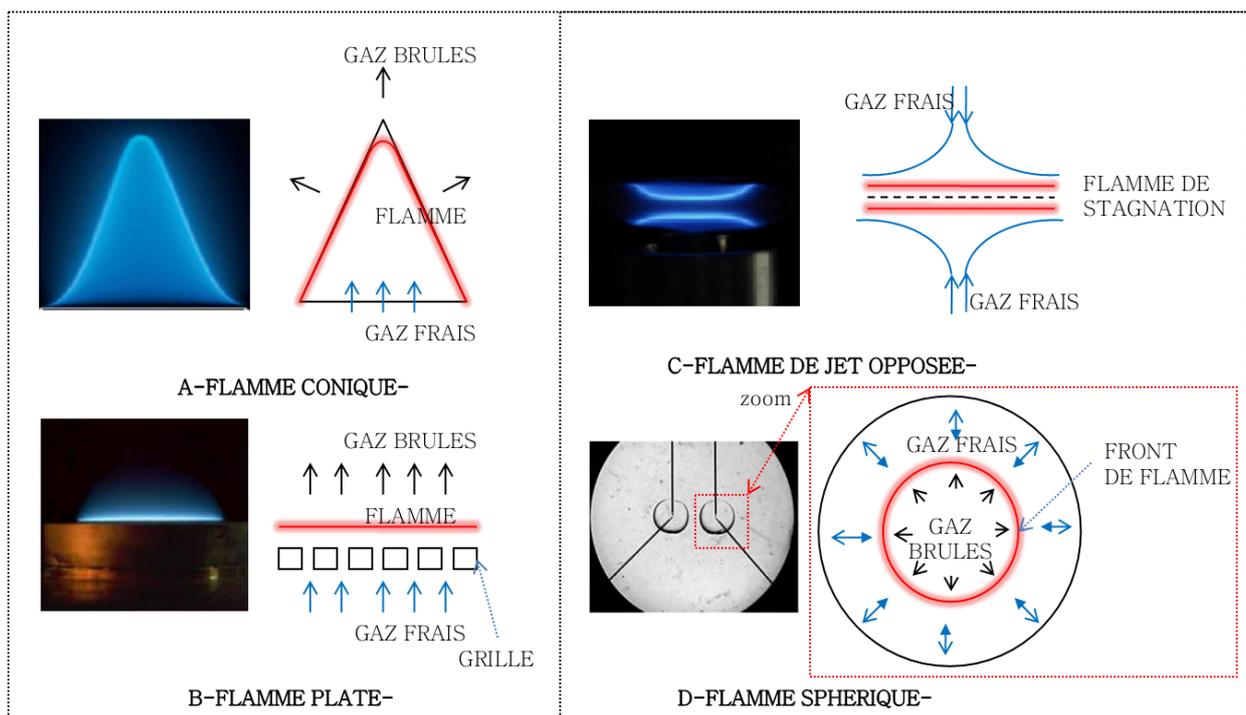


Figure I. 31: Quelques formes géométriques d'un front de flamme laminaire.

La définition de ces deux types de flamme sera explicitée dans les sections suivantes.

5.1 Flamme de pré mélange

Une flamme de pré mélange se caractérise par un combustible gaz, parfaitement mélangé au comburant (air). Dans ce cas, on l'appelle aussi flamme aérée. C'est l'exemple du chalumeau ou du moteur à combustion interne au mélange gaz (essence, GPL...).

La combustion dans le cas des pré-mélanges carburant/oxydant est plus efficace et engendre une flamme plus chaude avec production de peu d'imbrûlés.

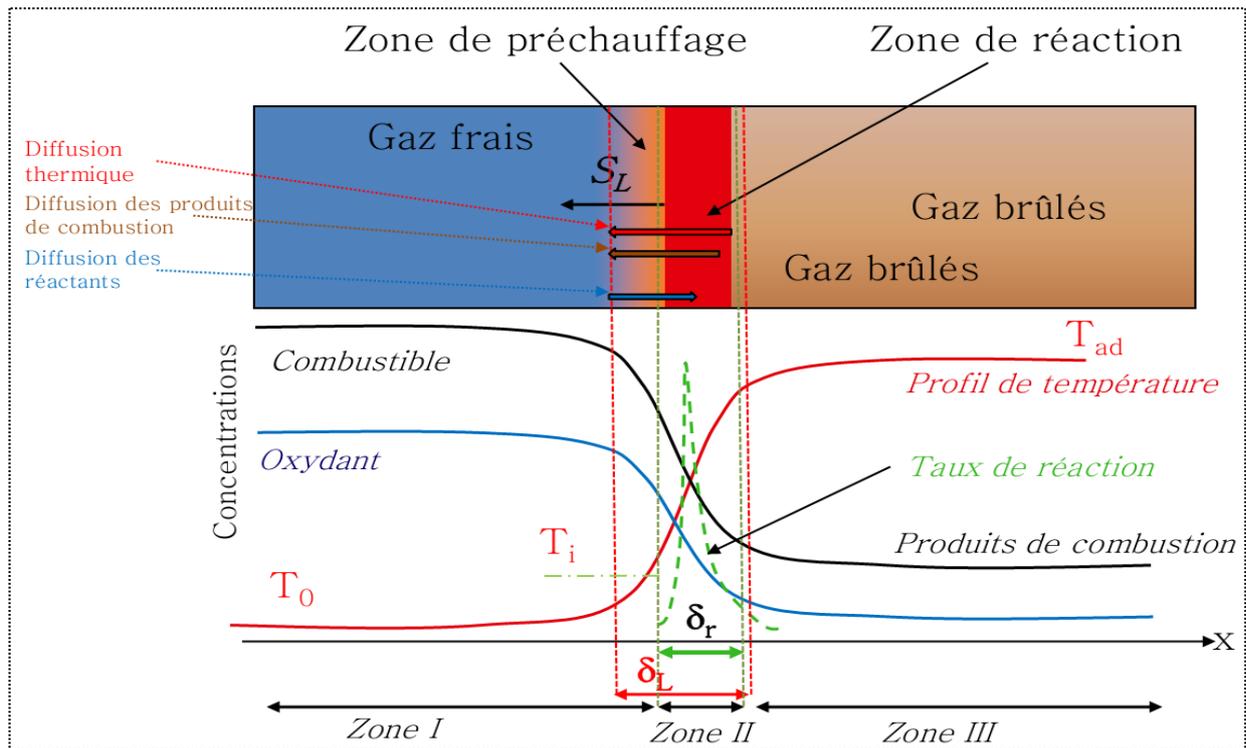


Figure I. 32 : Schématisation physique et thermodynamique d'une flamme de pré mélange.

La Figure I. 32 montre la schématisation physique et thermodynamique d'une flamme de pré mélange et ses caractéristiques géométriques. La propagation de ce genre de flamme peut être régie par le modèle simplifié de Zeldovich et Frank-Kamenetskii (1938) qui représente une extension de la théorie de Mallard et Le Châtelier. Ce modèle repose sur plusieurs hypothèses simplificatrices. Pour plus d'information sur le modèle, le lecteur peut se référer à (Esposito, 1995; Warnatz, Maas, & Dibble, 2006).

La propagation des flammes de pré mélange se fait principalement par diffusion thermique. Un fort gradient de température opère à l'interface définie par l'épaisseur thermique (δ_L) qui réchauffe les gaz frais et induit une diffusion moléculaire des espèces chimiques et des radicaux libres qui entretiennent les réactions en chaîne de combustion dans une épaisseur qui représente l'épaisseur de réaction (δ_r).

5.2 Vitesse de flamme laminaire

Cette caractéristique physique dépend de plusieurs paramètres tels que les paramètres thermodynamiques de départ et la nature du combustible utilisé.

Une flamme est dite laminaire lorsque sa vitesse relative de front de flamme est normale par rapport aux gaz frais, ce qui représente physiquement un régime non perturbé de consommation

des gaz frais. Cette dernière se caractérise par une vitesse appelée vitesse fondamentale de flamme (S_u ou S_L voir EQ.12)(BARNARD, 1985), généralement sa valeur est largement inférieure à 1 m/s. La vitesse absolue (apparente) du front de flamme EQ 13 (V_f) correspond alors à l'addition de la vitesse laminaire (S_L) et de la vitesse des gaz frais causée par l'expansion de la flamme (v_f).

$$S_L^2 = \left(\frac{\lambda}{\rho C_p} \right) \left(\frac{T_{ad} - T_i}{T_i - T_0} \right) \frac{\langle w \rangle}{k} \quad (\text{EQ I.12})$$

$\langle w \rangle$ est la vitesse moyenne de réaction en [kg/m³s] ; k est une constante [kg/m³]. Bien que cette équation reste difficilement exploitable et ne permette pas un calcul précis de la vitesse laminaire de combustion, elle permet néanmoins de montrer l'évolution des effets des paramètres tels que la température et la pression.

$$V_f = S_L + v_f \quad (\text{EQ I.13})$$

Plusieurs études proposent des modèles analytiques et expérimentaux (Champion & Deshaies, 1986; J. Göttgens et al, 1992; Metghalchi & Keck, 1982) pour approximer cette caractéristique selon les conditions thermodynamiques et la nature du carburant. Par exemple, Göttgens et al ont proposé une équation plus analytique pour approximer la vitesse de flamme laminaire (Voir EQ I.14)

$$S_L = F Y_{F,u}^m \left(\frac{T_{ad} - T_i}{T_i - T_0} \right)^n \frac{T_0}{T_i} \exp \left(- \frac{G_T}{T_i} \right) \quad (\text{EQ I.14})$$

$Y_{F,u}^m$ Représente la fraction massique du fuel

T_{ad} Représente la température adiabatique de flamme calculée à partir d'une loi polynomiale prenant en compte la richesse (ϕ) comme paramètre (Voir l'EQ I.15)

$$T_{ad} = aT_0 + b + c\phi + d\phi^2 + e\phi^3 \quad (\text{EQ I.15})$$

T_i Dite température d'initiation de la combustion, déterminée par la loi d'Arrhenius qui dépend principalement de la pression (TERNEL, 2006)

$$P = B \exp \left(- \frac{E}{T_i} \right) \quad (\text{EQ I.16})$$

Les paramètres de l'EQ I.14 sont rappelés dans le *Tableau I. 9* pour quelques combustibles.

Tableau I. 9 : Coefficients d'approximation de l' EQ 14 (J. Göttgens et al, 1992)

Fuel	B[bar]	E[K]	F[cm/s]	G_T [K]	m	n
CH ₄	3,1557e8	23873,0	22,176	-6444,27	0,565175	2,5158
C ₂ H ₂	56834,0	11344,4	37746,6	1032,36	0,907619	2,5874
C ₂ H ₄	3,7036e5	14368,7	9978,9	263,23	0,771333	2,3998
C ₂ H ₆	4,3203e6	18859,0	1900,41	-506,973	0,431345	2,18036
C ₃ H ₈	2,2501e6	17223,5	1274,89	-1324,78	0,582214	2,3970
H ₂	30044,1	10200,9	1,29288e6	2057,56	1,08727	3,5349

La *Figure I. 33* représente les valeurs de vitesses de flamme laminaires pour l'hydrogène montrant ainsi l'influence de la richesse, de la pression et de la température sur cette dernière.

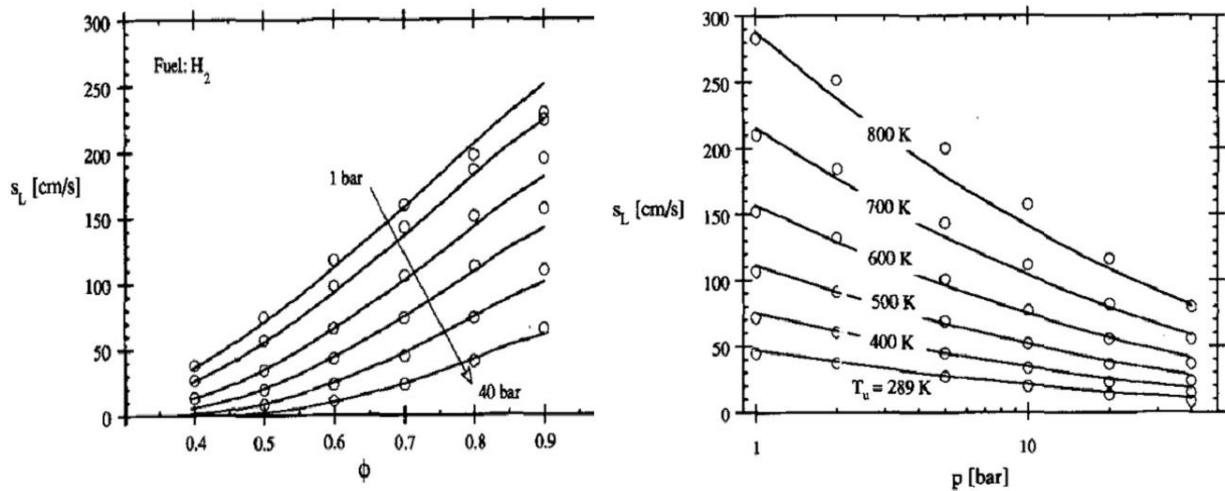


Figure I. 33 : Modèle analytique de calcul de vitesse de flamme pour l'hydrogène (les ronds représentent les résultats de simulations numériques)(J. Göttgens et al, 1992).

Un autre modèle expérimental largement utilisé par plusieurs laboratoires de recherche scientifique est basé sur l'exploitation du signal de pression lors d'une combustion en condition isochore. Celui-ci est proposé par Bradley dans le cas des explosions sphériques et peut s'appliquer à tout type de combustible, même dans le cas des poudres solides organiques ou métalliques (Bradley & Mitcheson, 1976)(Bradley, 1988)(Zhang & Ng, 2015).

L'équation mathématique de ce modèle est présentée par l'EQ I.17 en prenant comme hypothèse le fait que la flamme est très mince et qu'elle se développe sphériquement. La propagation ne prend en compte aucun effet de convection naturelle, la pression est spatialement uniforme dans le réacteur et la compression des gaz frais considérés parfaits suit une loi isentropique.

$$S_L = \frac{1}{3} \left(\frac{4\pi}{3V} \right)^{-\frac{1}{3}} \frac{1}{P_{\max} - P_0} \left(\frac{P_0}{P} \right)^{\frac{1}{\gamma}} \left(1 - \left(\frac{P_0}{P} \right)^{\frac{1}{\gamma}} \left(\frac{P_{\max} - P}{P_{\max} - P_0} \right) \right)^{-\frac{2}{3}} \left(\frac{dP}{dt} \right) \quad (\text{EQ I.17})$$

L'efficacité de ce modèle peut se voir par la comparaison avec les résultats de calculs de CHEMKIN-PREMIX réalisée par (Zhang & Ng, 2015) (*Figure I. 34*) concernant la combustion de mélanges méthane/air et le diméthyle-éther/air. Ceci justifie encore l'utilisation de ce modèle et son efficacité.

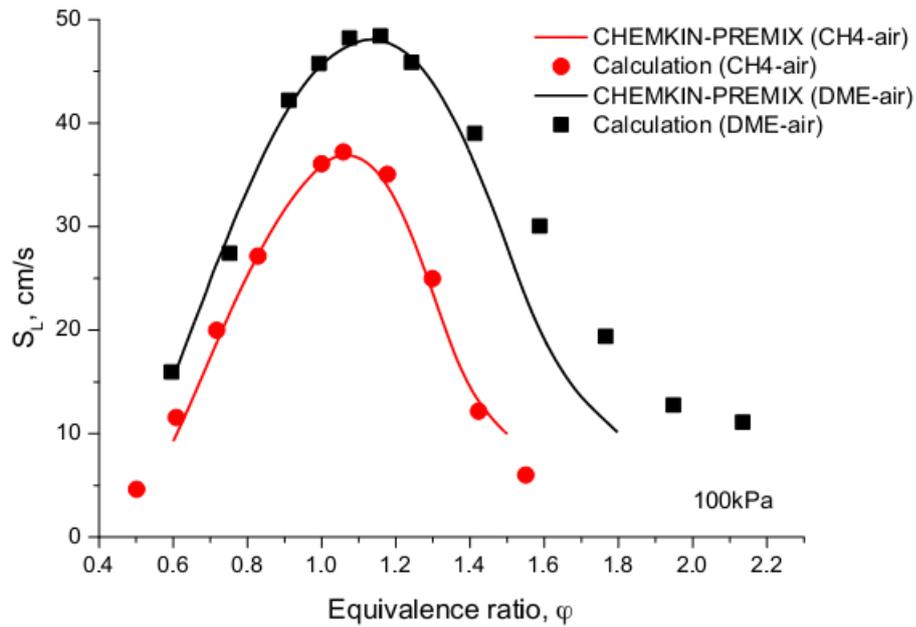


Figure I. 34 : Comparaison entre le modèle de Bradley et les simulations par CHEMKIN-PREMIX.

Le rayon de flamme laminaire peut être aussi être approximé par l'EQ I. 18, la démonstration de cette équation peut être trouvée dans les publications de Bradley (Bradley & Mitcheson, 1976).

$$R_{\text{flamme}} = R_0 \left(1 - \left(\frac{P_0}{P} \right)^{\frac{1}{\gamma}} \left(\frac{P_{\max} - P}{P_{\max} - P_0} \right) \right)^{-\frac{1}{3}} \quad (\text{EQ I.18})$$

Des calculs utilisant ce modèle seront présentés dans le troisième chapitre en faisant une étude paramétrique par rapport à la richesse et à l'énergie de la perturbation du pulse laser. Les effets de paroi seront aussi pris en compte.

5.3 Epaisseur de flamme

L'épaisseur de la flamme classique, δ , est considérée infiniment petite, de sorte que les perturbations ne peuvent pas se produire à une échelle de longueur inférieure à δ . Cependant, les modèles de flamme les plus réalistes reconnaissent le fait que les réactions chimiques qui se

produisent dans l'épaisseur de réaction δ_r , ont une énergie d'activation plus élevée, ce qui engendre donc une certaine épaisseur qui définit la zone de préchauffage pour initier la combustion.

Dans cette zone de préchauffage, certaines réactions de la cinétique de combustion commencent avant l'épaisseur de réaction δ_r , et donc la formulation la plus pratique de l'épaisseur de la flamme complète δ_L est donnée par l'EQ I. 19 en connaissant la vitesse de flamme laminaire non étirée et les caractéristiques thermiques des milieux gaz frais (u) et gaz brûlés (b).

$$\delta_L = \frac{D}{S_L} = \left(\frac{\lambda_b}{\rho_u C_p S_L} \right) \quad (\text{EQ I.19})$$

D étant la diffusivité thermique. De cette relation on peut définir un temps caractéristique de mouvement d'une longueur de taille de l'épaisseur de flamme.

$$t_{\text{flamme}} = \frac{\delta_L}{S_L} \quad (\text{EQ I.20})$$

L'épaisseur de réaction est inférieure à l'épaisseur de la flamme *Figure I. 32*, elle est explicitée par l'EQ I. 21 ; la démonstration de cette dernière est mentionnée dans la thèse de (TERNEL, 2006) :

$$\delta_r = \left(\frac{\lambda_b}{\rho_u C_p} \right) \left(\frac{T_{ad} - T_i}{T_i - T_0} \right) \quad (\text{EQ I.21})$$

Plusieurs définitions existent pour caractériser l'épaisseur de réaction, la plus pertinente est celle liée au nombre de Zel'dovich qui est supérieur à 1 (Lipatnikov, 2012).

$$\delta_r = \frac{\delta_L}{Z_e} \quad (\text{EQ I.22})$$

$$Z_e = \frac{E_A (T_{ad} - T_0)}{RT_{ad}^2} \quad (\text{EQ I.23})$$

Les équations précédentes appartiennent toutes à la théorie classique AEA (activation-energy asymptotic).

Celle-ci a été développée par Zel'dovich et Frank-Kamenetskii (1938) et est caractérisée par une chimie à une seule étape. Cette théorie est appelée aussi théorie thermique des flammes laminares de pré mélange. Une autre théorie performante existe, appelée approche RRA (rate-ratio asymptotic). Celle-ci utilise une cinétique détaillée en comptant plusieurs réactions

chimiques pour prédire la vitesse de flamme laminaire et la structure du front de flamme. Concernant ce modèle, le lecteur peut se référer aux travaux de Williams (Williams, 2000).

5.4 Limites d'inflammabilité des mélanges réactifs

La combustion ne peut se produire dans des mélanges que pour certaines plages de composition délimitées par les limites d'inflammabilité *Figure I. 35*. Ces limites sont généralement exprimées en pourcentage de carburant dans le volume total. Il existe d'énormes variations entre les différentes natures des carburants. Les paramètres thermo physiques aussi jouent un rôle à l'exemple de l'énergie d'allumage, de la pression, de la turbulence et de la température (Coronado et al., 2012).

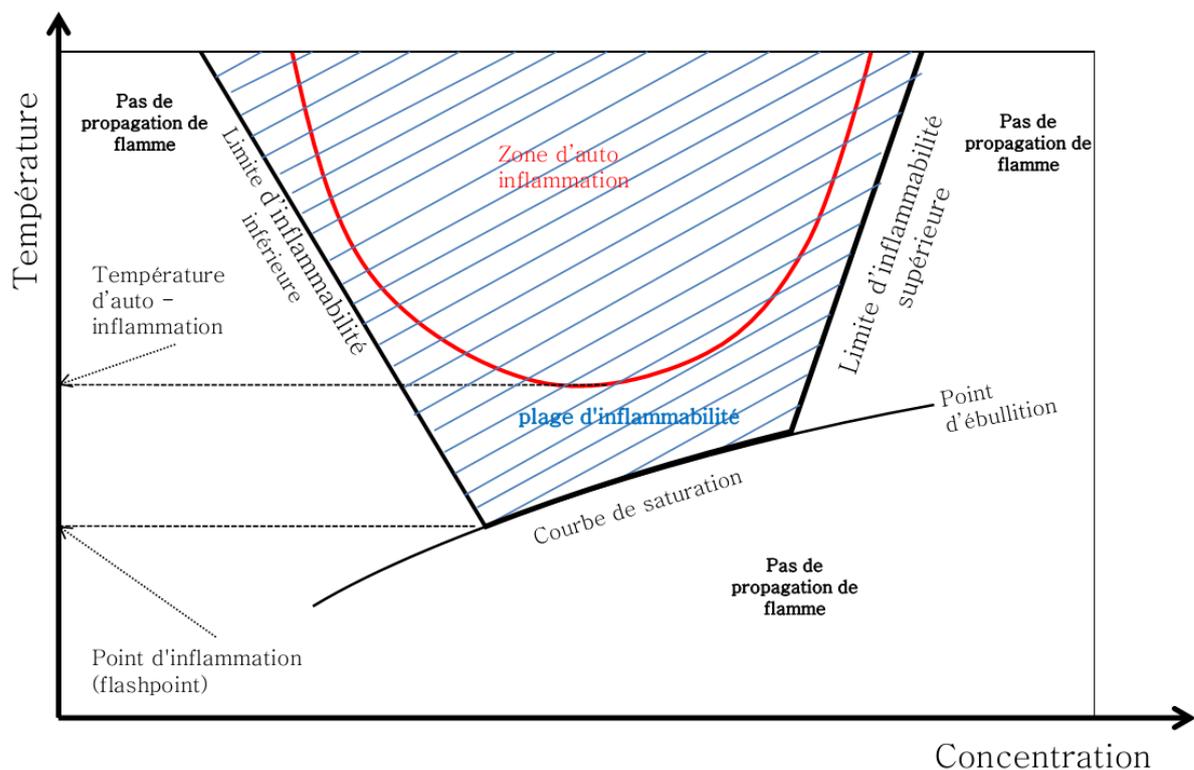


Figure I. 35 : Limites d'inflammabilités inférieures et supérieures d'un combustible en fonction de la concentration et de la température

Les travaux de Catoire (Catoire & Naudet, 2005) montrent un effet très observable de la température sur la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure. Ces auteurs proposent un modèle de calcul qui tient compte de la chaîne de la molécule d'hydrocarbure et de la température pour l'évaluation de la limite inférieure. Cette dernière étant la plus intéressante du point de vue industrielle et pour le fonctionnement des moteurs (moins de consommation donc moins de CO₂).

Si on prend un hydrocarbure de type $C_xH_yO_z$, on peut calculer son *LFL* (*Lower Flammability Limit*) par l'EQ 24 (Catoire & Naudet, 2005):

$$LFL(\text{mol}\%) = 519.957 X^{0.70936} n_c^{-0.197} T^{-0.51536} \quad (\text{EQ I.24})$$

X représente la fraction molaire du fuel dans des conditions stœchiométriques qui peuvent être calculées par l'EQ 25. n_c est le nombre d'atomes de carbones de la molécule de fuel. T est la température opératoire (en K). De plus, l'EQ I.24 est exploitable pour un air composé de 20% O₂ et de 80% N₂.

$$X = \frac{1}{1 + 5x + \frac{5}{4}y - \frac{5}{2}z} \quad (\text{EQ I.25})$$

Pour le n-décane, on trouve une valeur de 0.7337 en % molaire à 347.5 K. Ce qui correspond à une richesse de $\phi=0.545$.

Concernant les limites supérieures d'inflammabilités (*UFL*), Shimy (1970) propose cette formulation qui tient compte du nombre d'atomes de carbone et du nombre d'atomes d'hydrogène pour les alcanes et les alcools Voir l'EQ I. 26 (Bond, 1991).

$$\begin{cases} UFL = \frac{60}{n_{(H)}} + \frac{n_{(C)}}{20} + 2.2 & \text{Alcanes} \\ UFL = \frac{80 - 2n_{(H)}}{2n_{(C)}} + 3 & \text{Alcools} \end{cases} \quad (\text{EQ I.26})$$

Le *Tableau I. 10* montre quelques données expérimentales des limites d'inflammabilité de quelques hydrocarbures.

Tableau I. 10 : Limites d'inflammabilité de quelques hydrocarbures (Esposito, 1995)

Combustible	Limites d'inflammabilité en (% du volume total) conditions ambiantes	
	Inférieure (LFL)	Supérieure (UFL)
H ₂	4	74,5
CH ₄	5	15
C ₂ H ₆	3	12,5
C ₃ H ₈	2,25	9,4
C ₆ H ₁₄	1,20	7
C ₈ H ₁₈	1	6
C ₁₀ H ₂₂	0,75	5,4
C ₂ H ₄	3,1	32
C ₂ H ₂	2,5	81-100
C ₆ H ₆	1,4	7,1
C ₂ H ₅ OH	3,3	19

Il faut noter que la limite d'inflammabilité inférieure dépend du nombre d'atomes de carbone de la molécule et que la limite d'inflammabilité supérieure dépend principalement du nombre d'atomes d'hydrogène. Dans le cas d'un mélange, on utilise l'EQ I. 27 loi (*LCR*) (Ma, 2015):

$$FL = \frac{100}{\frac{C_1}{FL_1} + \frac{C_2}{FL_2} + \dots + \frac{C_n}{FL_n}} \quad (\text{EQ I.27})$$

C_1 : pourcentage de la composition 1 ; FL_1 : limite d'inflammabilité de la composition 1.

La dilution dans un mélange inflammable a aussi un rôle très important dans la détermination de ces limites, sachant que l'influence de certains inertes est très complexe. Par exemple, la LFL peut être influencée par l'azote car la fraction de réducteur est toujours la même en présence de l'azote ou en passant de l'oxygène pur à l'air. Par contre, la UFL est très influencée par la présence des inertes qui ont souvent un effet inhibiteur. Cela peut s'expliquer par la capacité calorifique massique C_p du diluant. La valeur de C_p lorsqu'elle est grande provoque un abaissement de la température de fin de combustion (Esposito, 1995).

$$\text{Exemple : } UFL(Ar) > UFL(N_2) > UFL(CO_2)$$

5.5 Energie minimale d'inflammation

Pour assurer l'amorçage d'un mélange réactif, il faut lui apporter une quantité d'énergie minimale *MIE* (Minimum Ignition Energy). Cette énergie est fonction de plusieurs conditions dynamiques locales comme la vitesse et des conditions thermochimiques de départ, i.e. température, pression, richesse, et la nature du combustible, ou encore le type de dilutions utilisées dans le mélange réactif.

La quantité d'énergie apportée doit faire excéder la température dans la zone d'allumage vers une température supérieure ou égale à la température d'initiation (T_i). Cette température caractérise la température d'un petit volume appelé volume critique. Dans le cas d'un volume sphérique, le bilan d'énergie simplifié donne la valeur de l'énergie minimale d'inflammation (Voir l'EQ I. 28):

$$E_{\min} = MIE = \frac{4}{3} \pi R_c^3 \rho C_p (T_i - T_0) \quad (\text{EQ I.28})$$

Moorhouse et al ont évalué ce paramètre expérimentalement en faisant une étude statistique sur les énergies d'allumages de quelques hydrocarbures de C_1 à C_7 (Moorhouse, J., Williams, A., & Maddison, 1974). L'étude est faite dans le cas d'allumage par arc électrique. La procédure est simple mais prend un temps long car elle tient compte de l'énergie et de la richesse pour des conditions thermodynamiques fixes. L'approche de Moorhouse se fait simplement en tirant la ligne de la limite la plus basse possible à travers un réseau des points expérimentaux qui définissent des allumages réussis correspondant aux énergies d'allumage les basses possibles. Un exemple de ces courbes est présenté pour quelque alcane dans la *Figure I. 36 A*.

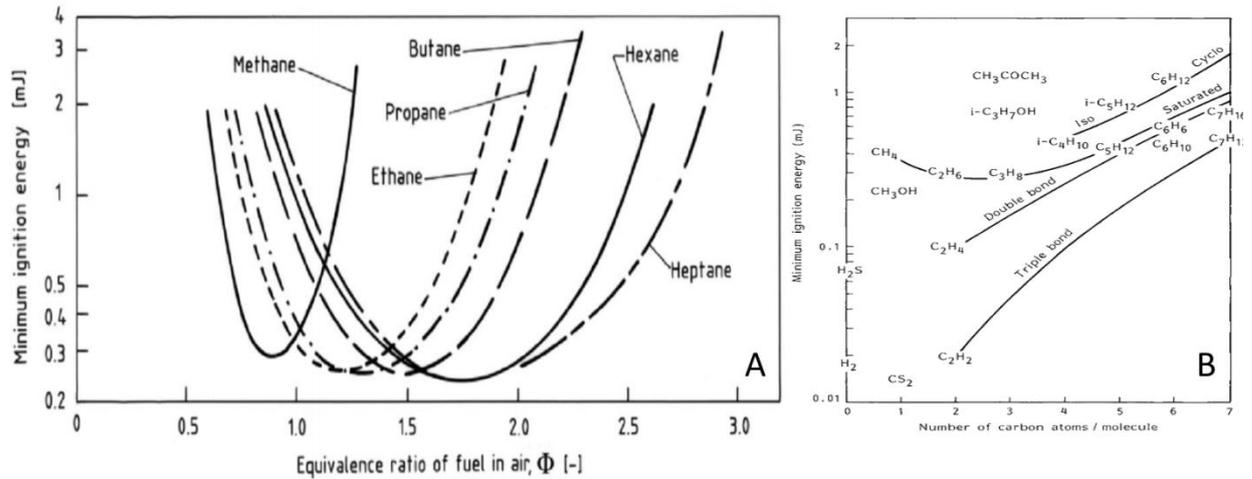


Figure I. 36 : (A) Energie minimale d'inflammation pour quelques alcanes (Eckhoff, 2005) ;(B) Effet des bandes de liaison et du nombre d'atomes de carbone sur la MIE (Bond, 1991)

La Figure I. 36 B. montre l'effet de la liaison chimique ainsi que la longueur de la chaîne de la molécule sur la valeur de la MIE.

5.6 Rayon critique d'allumage

Le rayon critique explicite directement le volume critique d'allumage, i.e. si le volume du plasma inducteur de combustion est inférieur à ce volume critique, la propagation ne se fait pas. (Voir Figure I. 37) :

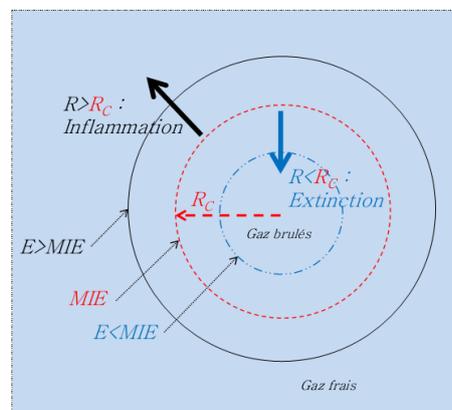


Figure I. 37 : Schématisation du rayon critique.

Les mécanismes d'inflammation et d'extinction se produisent à travers une concurrence entre deux mécanismes de diffusion. Le premier concerne la diffusion des molécules froides de l'extérieur froid vers l'intérieur chaud. Le deuxième concerne la diffusion des radicaux chauds de l'intérieur chaud vers l'extérieur froid. Si la diffusion froide est majoritaire, cela affectera la température du noyau en l'abaissant (refroidissement : $E < MIE$), ce qui fait tendre le processus vers l'extinction. Si l'inverse se produit, i.e. si la diffusion des radicaux est majoritaire, on aura

inflammation (dans ce cas certainement $E > MIE$). Cette caractéristique a été étudiée par plusieurs auteurs en faisant une résolution spatio-temporelle des équations de conservation de l'énergie et de la diffusion des espèces chimiques en apportant en plus une source ponctuelle d'énergie pour l'amorçage de la combustion. Un exemple de modèle d'étude est celui de Champion (Champion & Deshaies, 1986) exploité par Ko (Ko, 1991) dans le cas d'allumage des mélanges propane air. Ce modèle de prédiction concerne l'allumage par bougie électrique.

$$R_C = \frac{\lambda T_a}{C_p T_a \rho T_u U_a} \frac{T_a}{T_b Le_A} \exp\left(\frac{E_A}{2\mathfrak{R}} \left(\frac{1}{T_b} - \frac{1}{T_a}\right)\right) \quad (\text{EQ I.29})$$

T_a étant la température adiabatique de la flamme, T_b la température des gaz brûlés T_u la température des gaz frais. U_a est la vitesse laminaire adiabatique, ρ la masse volumique, C_p la capacité thermique, λ la conductivité thermique du mélange et Le_A le nombre de Lewis concernant le réactant A qui décroît. E_A est l'énergie d'activation et \mathfrak{R} la constante universelle des gaz parfaits. L'approche expérimentale de Ko et al (Ko, Anderson, & Arpaci, 1991; Ko, 1991) montre des résultats sur le rayon critique d'allumage équivalent calculé pour une sphère et la prédiction de la température dans le cas d'un allumage réussi et d'un allumage raté.

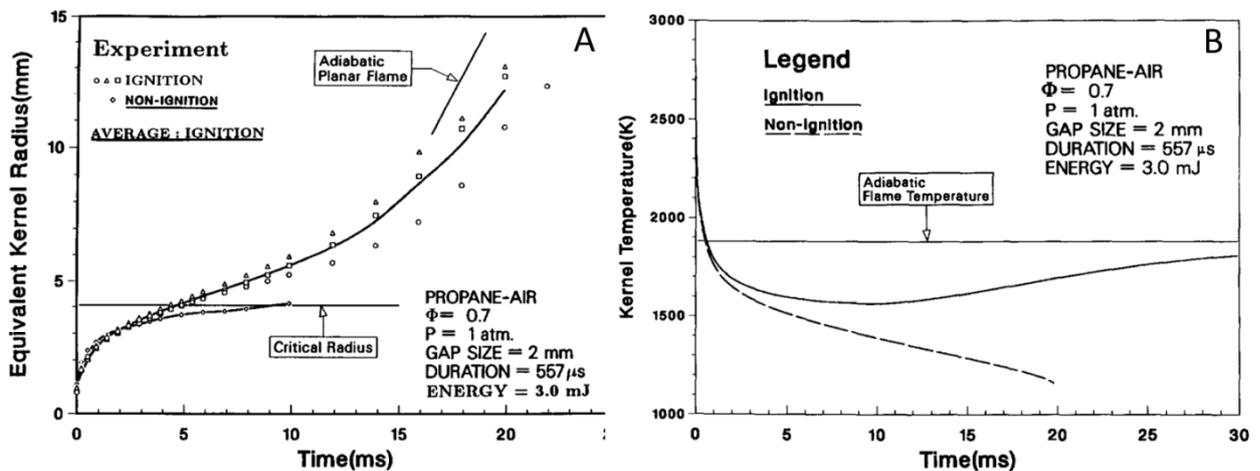


Figure I. 38 : (A) évolution du rayon critique équivalent du foyer d'allumage; (B) Prédiction de la température du foyer d'allumage réussi et non réussi.

5.7 Flamme de diffusion

La flamme de diffusion est caractérisée par des réactants séparés. À l'interface de rencontre des réactants, si l'on apporte une énergie d'activation suffisante par l'une des techniques d'amorçage citée précédemment, celle-ci créera une flamme de diffusion. Les cas spéciaux de ce type de flamme sont la combustion des solides, des flaques ou des gouttes liquide. Ce type de flamme se

rencontre aussi dans le cas des moteurs fusées. Lorsqu'il s'agit des solides, l'amorçage peut prendre des durées énormes pour sublimer la composition organique du corps solide en faisant passer sa composition solide à des compositions volatiles simplifiées (gaz) qui les rendent réactives. Cette gazéification se fait par le principe physique de pyrolyse. La *Figure I. 39* montre la schématisation physique et thermodynamique d'une flamme de diffusion. La forme géométrique de cette flamme est très influencée par la gravité et les phénomènes de convection qui en résultent grâce aux gradients des températures intenses.

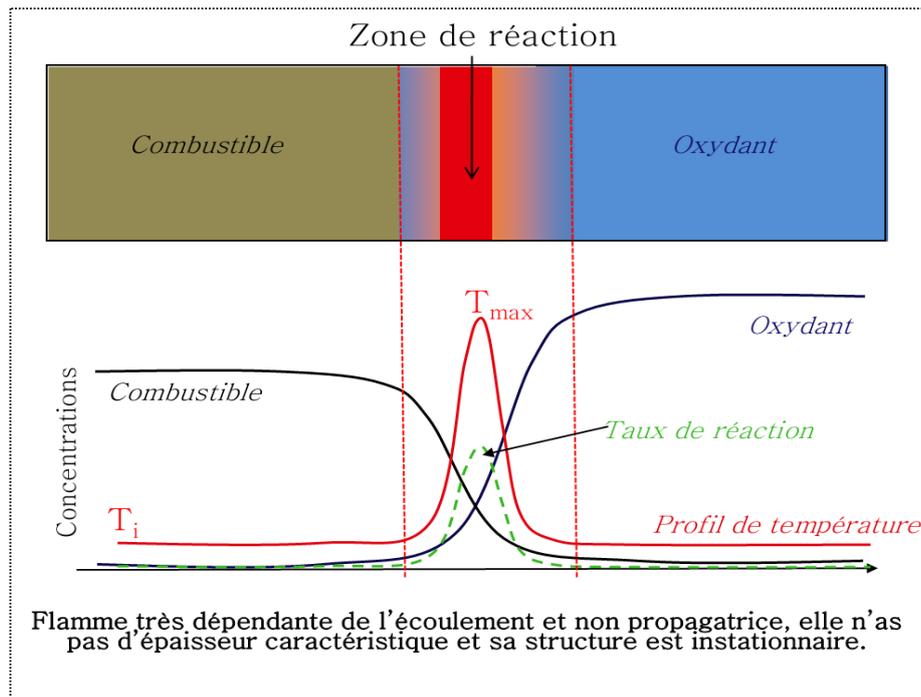


Figure I. 39: Schématisation physique et thermodynamique d'une flamme de diffusion.

Plusieurs modèles théoriques simplifiés modélisent quelques cas de flammes de diffusion, comme par exemple le modèle de Burke et Schumann (1928) dans le cas d'un jet bidimensionnel de combustible et d'autres modèles à l'exemple des flammes à contre-courant (Veynante, 1999). Le cas d'une flamme de diffusion sphérique est bien décrit dans le livre de Buckmaster (Buckmaster, Ludford, & Emmons, 1983). C'est un modèle qui correspond à l'évaporation d'une goutte de fuel au fur à mesure qu'elle est consommée par la flamme. Ce cas d'étude représente ce qui se passe dans les moteurs Diesels.

6 Technique de détection, de diagnostic et de mesure en combustion

L'ensemble de ces techniques appartient à deux familles principales : les techniques intrusives et celles non-intrusives. Les techniques intrusives sont souvent en contact avec le phénomène physique qu'on cherche à caractériser ou à mesurer. Cette famille engendre souvent

des perturbations sur les conditions locales d'interface avec la sonde ou le capteur de mesure. C'est l'exemple des thermocouples *Figure I. 40*, des sondes Pitot

La deuxième famille de techniques concerne les techniques non intrusives, qui sont souvent des procédés optiques à l'exemple des caméras rapides, des photodiodes, des techniques lasers permettant une très haute résolution spatiale, spectrale et temporelle.

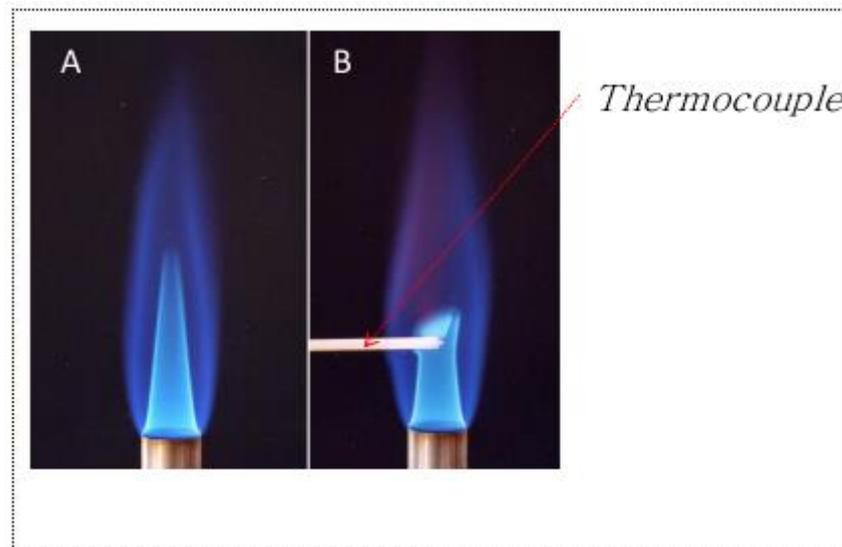


Figure I. 40 : Photos montrant l'effet d'une mesure intrusive de température par thermocouple sur une flamme de pré mélange (A) Flamme non perturbée (B) Flamme perturbée (Aldén, 2006)

La visualisation de l'écoulement se distingue des autres méthodes expérimentales par le fait que certaines propriétés du champ de l'écoulement sont directement accessibles à la perception visuelle. Les sections suivantes (4.1 à 4.4) présentent quelques concepts expérimentaux utilisés dans les écoulements réactifs.

6.1 Visualisation directe par camera rapide (non intrusive)

Ce concept est facile à mettre en œuvre, il suffit juste de positionner une caméra dont la cadence est fonction du phénomène physique à vouloir capturer. En combustion induite par des phénomènes plasma, les échelles de temps peuvent être comprises entre des nanosecondes (temps des pulses d'énergie d'amorçage) et des temps de l'ordre de plusieurs secondes (temps de la cinétique chimique et de la physique de combustion). Cette technique nécessite au préalable un accès optique direct (*Figure I. 41A*) ou l'existence de fenêtres optiques de visualisation lorsqu'il s'agit de phénomènes de combustion dans des volumes confinés (voir *Figure I. 41B-1* et *Figure I. 41B-2*).

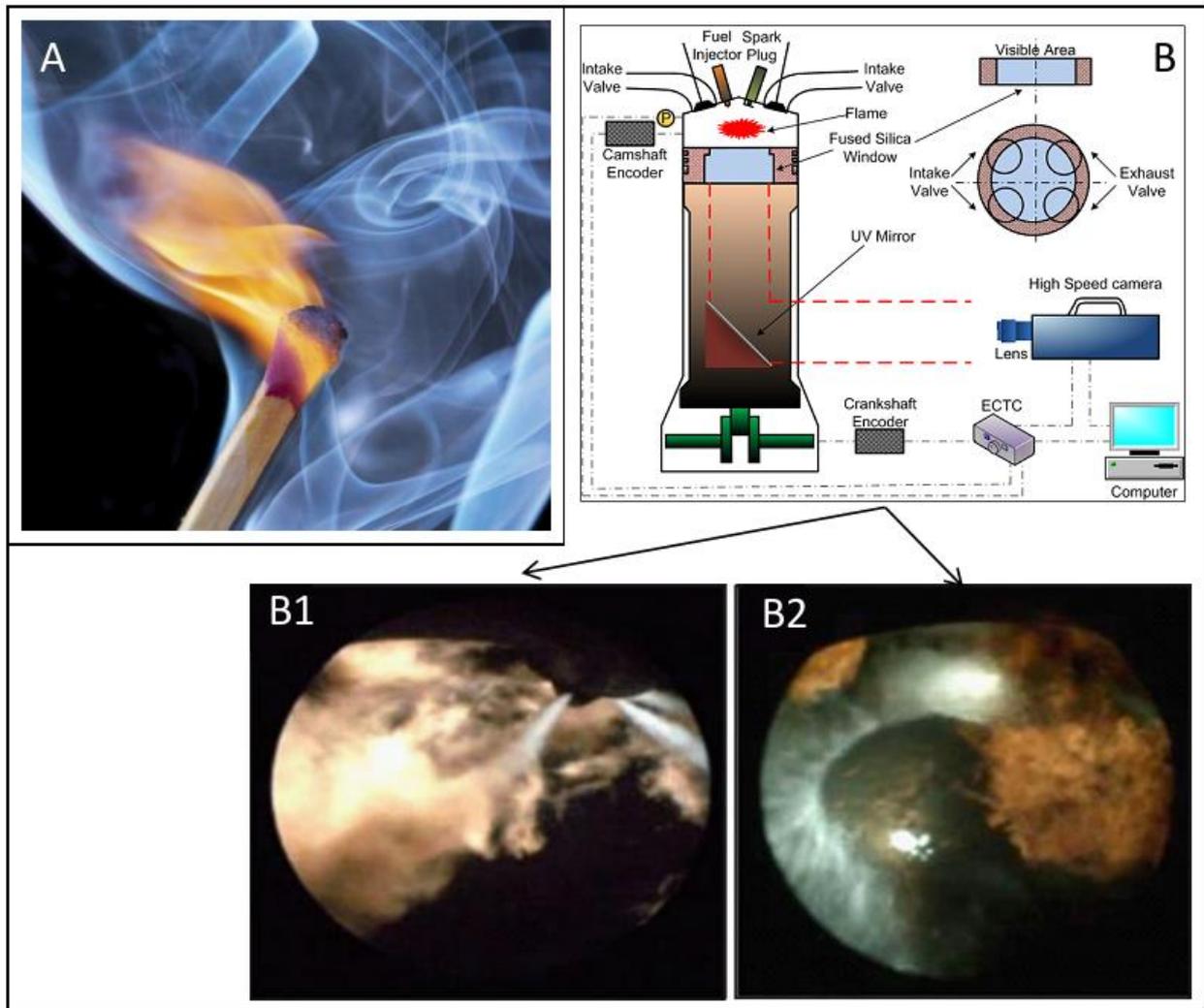


Figure I. 41 : Visualisation directe par caméra : (A) Accès direct : Combustion d'une allumette (Dynamics, 2016) (B) Accès indirect : schéma de visualisation pour un banc d'essais moteur optique (X. Ma, 2010) ; (B1) Phase d'injection dans moteur chaud Diesel; (B2) Film de carburant proche de paroi et départ de flamme visualisation par la technique présentée en (B) source de (B1 et B2) : (R. Teichmann et al, 2012) .

6.2 Visualisation par fluorescence induite par laser (PLIF) (non intrusive)

Le Plan de Fluorescence Induit par Laser (PLIF) est une technique de diagnostic puissante appliquée souvent aux domaines des écoulements réactifs et des sprays d'injection. Cette technique permet une visualisation instantanée de plusieurs propriétés de l'écoulement à l'exemple des champs de vitesse, de la concentration des espèces sondées et de leurs profils spatiaux, du champ de température, de la densité et de la topologie des flammes. Les principes de cette technique sont bien décrits dans la revue de (Kohse-Höinghaus, 1994).

La fluorescence LIF peut s'étendre sur plusieurs bandes de longueur d'onde. L'avantage de la méthode est de pouvoir exciter une espèce sélectionnée et sondée parmi des centaines d'espèces différentes. La sélectivité de l'espèce sondée (OH, CH, NO, NH...) se fait par le choix de la

longueur d'onde de la nappe laser. L'excitation de l'espèce se fait par l'absorption de résonance qui engendre par la suite la fluorescence dans le plan de la nappe laser qui sera imagée par une caméra (Figure I. 42). Les lasers d'excitation utilisés sont souvent de type Nd-YAG et Dye laser et la technique permet aussi une multi-détection d'espèces (ALDÉN, 1999).

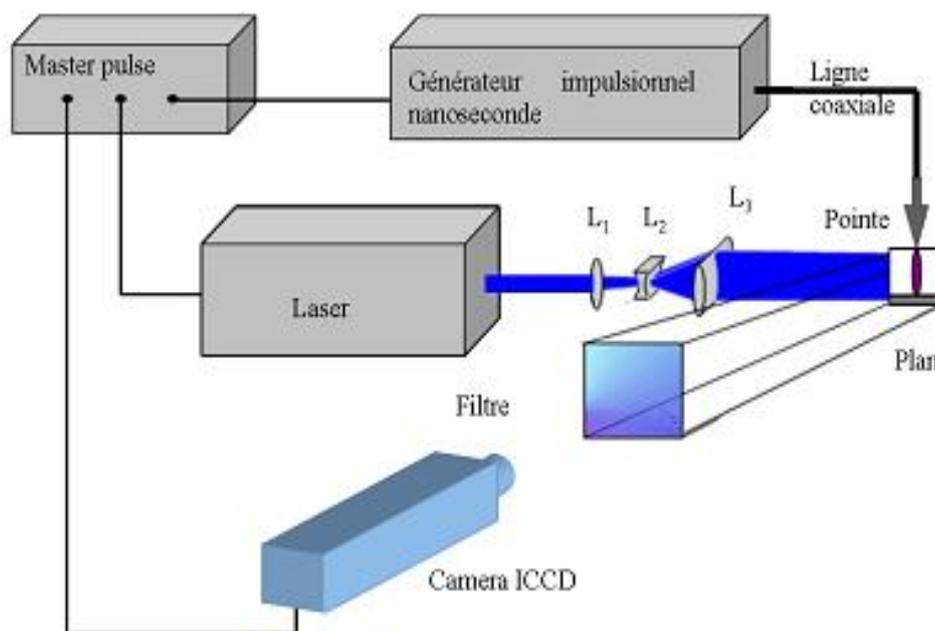


Figure I. 42 : Principe de la PLIF (Bentaleb, 2012)

Le Tableau I. 11 montre quelques longueurs UV d'excitation à 2 photons de quelques espèces particulières et leurs longueurs d'ondes d'émissions.

Tableau I. 11 : Excitation à deux photons (Two-photon excitation LIF), les espèces, les longueurs d'ondes d'excitation et les longueurs d'ondes d'émission (Aldén, 2006)(ALDÉN, 1999).

Espèce sondée	Longueur d'excitation UV à 2 photons [nm]	Longueur de fluorescence ou d'émission [nm]
H	2*205	656
O	2*226	845(777)
N	2*211	870(822.744)
C	2*280	910
CO	2*230	400-725
H ₂	2*193	830
H ₂ O	2*248	400-500
NH ₃	2*305	550-575(720)

Le schéma d'excitation et de collection concernant le radical OH est décrit dans la Figure I. 43.

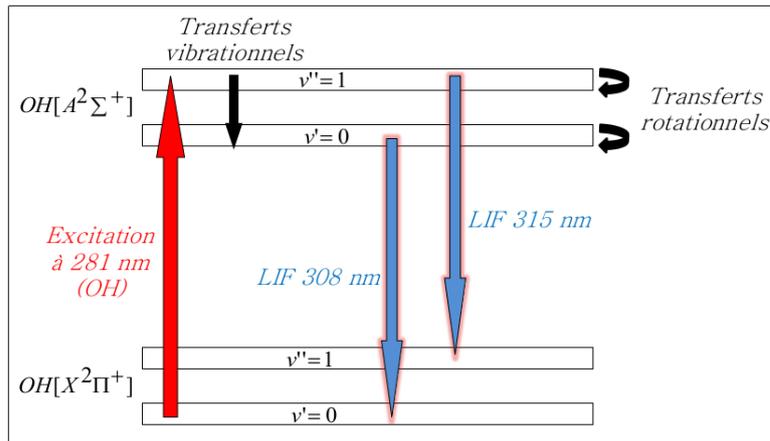


Figure I. 43 : Physique d'excitation et de collection LIF sur le radical OH.

Plusieurs articles scientifiques présentent des résultats expérimentaux issus de cette technique, à l'exemple de l'étude des mécanismes de combustion comportant des HSO et des H_2CS générés comme des composants instables durant la combustion des fuels comportant du soufre (K. Iinuma et al, 1987). Dans une autre étude récente, l'effet de la diffusion préférentielle et de l'étirement sur la structure de la flamme de pré mélange de $CO/H_2/air$ sont étudiés. La Figure I. 44 montre l'effet de la concentration de l'hydrogène sur la fluorescence OH d'un plan central d'une flamme de pré mélange (Fu, Tang, Jin, & Huang, 2014).

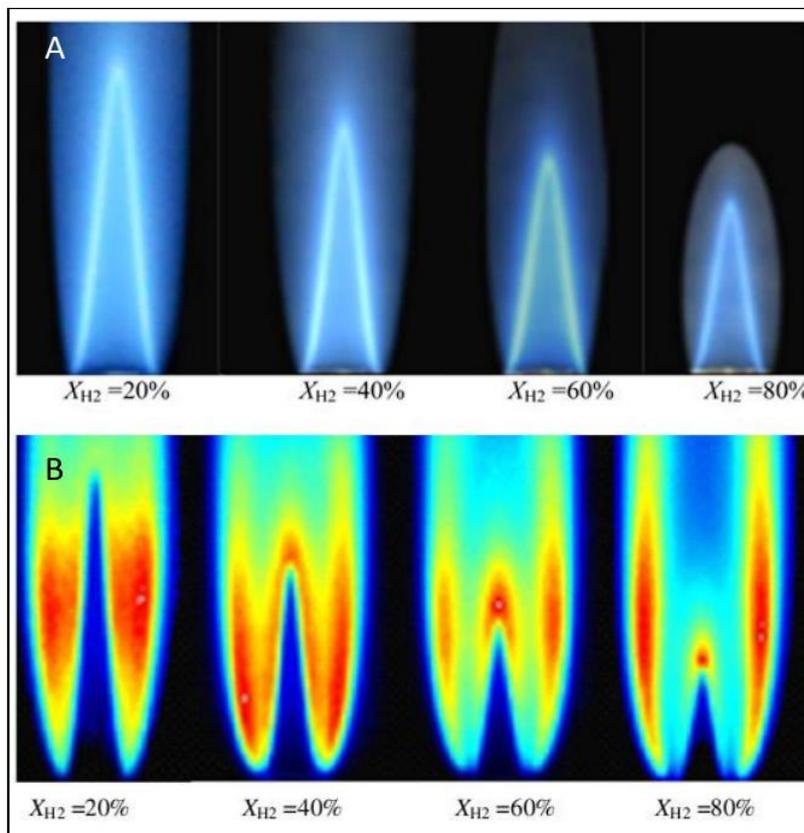


Figure I. 44 : PLIF-OH dans le cas des mélanges pauvres $CO/H_2/air$: (A) visualisation directe par CCD Camera $\phi = 1.0$; (B) PLIF-OH à $\phi = 1.0$ pour 4 fractions d'hydrogène différentes (Fu et al., 2013).

Les effets de parois ont pu être mis en évidence par cette technique (voir les travaux de Haolin Yang (Yang et al., 2013)).

Pour récupérer des champs de température 2D, l'extension de la PLIF vers la TLAF (Two-line atomic fluorescence) s'avère être une technique précise. Un exemple de choix se pose sur le radical OH et le radical NO. L'inconvénient de la technique est qu'elle sollicite de très hautes intensités laser dans le domaine UV et une inefficacité dans les mélanges riches. La solution proposée vis-à-vis de ces inconvénients est un ensemencement aux particules métalliques (In, Th, Ga.) (Aldén, 2006).

6.3 Incandescence Induite par Laser (LII) (diagnostic des suies)

Cette technique est complémentaire de la PLIF car l'Incandescence Induite par Laser (LII) a pour but de mesurer en temps réel la formation et la caractérisation des tailles de suies qui se forment lors et à la fin de la combustion. De telles informations vont permettre d'adapter et de corriger la cinétique des schémas de combustion qui vont permettre de prédire la formation de ces derniers (suies de combustion). Cette technique est récente car le modèle a été développé durant la période 2001-2007, l'exploitation de la technique a commencé à partir de 2008 par l'analyse des courbes de signaux en utilisant un modèle théorique de LII. Les résultats donnent des mesures en temps réel par un modèle à deux couleurs LII (2C-LII) pour la mesure de taille des suies dans la flamme et dans les gaz de combustion. Le système est représenté sur la *Figure I. 45*. Un seul mode est utilisé à 1064 nm par laser Nd:YAG qui délivre des impulsions à une fréquence de 10 Hz et d'une durée de 10 ns. Le faisceau laser est élargi par un extenseur de faisceau et la partie homogène en intensité est imagée pour avoir la position des suies. Cette partie homogène de faisceau est suivie sur une caméra CCD par la suite, i.e. après la flamme. La position est contrôlée par une lentille.

De l'autre côté de la détection, se trouve une double configuration de photomultiplicateurs (PMT) construits dans des boîtes en aluminium. De cette façon, les mesures se font avec une haute résolution spatiale pouvant être faite avec deux longueurs d'onde de détection différentes simultanément (résolution temporelle avec 2 couleurs LII). Ces mesures seront possibles avec les deux systèmes de détection par l'intermédiaire d'un dispositif diviseur de faisceaux, bien aligné. Chaque système est intégré dans un boîtier étanche muni d'une ouverture recouverte par un filtre monochromatique à bande étroite. Une lentille à l'intérieur de chaque boîte concentre la lumière sur la zone sensible du détecteur PMT (Z. Li, 2009).

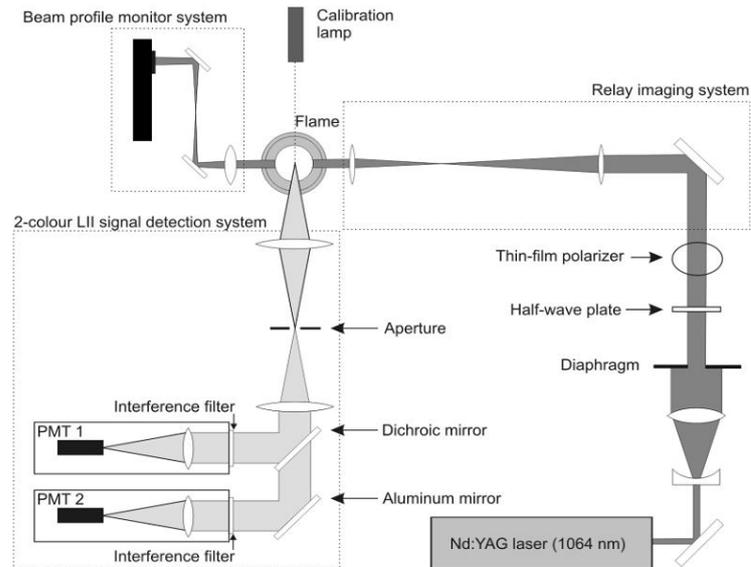


Figure I. 45 : Shéma expérimental de la 2C-LII

6.4 Visualisation par les techniques de gradient (ombroscopie, Schlieren...)

La technique de gradient a commencé avec la technique d'ombroscopie (Marat, 1780) puis a été développée par Dvorak en 1880. Elle consiste à récupérer le reflet d'un phénomène physique (jet de gaz...) traversé par un flux de photons venant d'une source lumineuse. Le rayonnement traversant le phénomène est freiné et change de direction selon l'indice de réfraction du milieu qui est fonction de la densité, de la température et de la composition du milieu. Dans cette méthode, l'éclairement relatif sur l'ombre est proportionnel à la dérivée seconde des gradients transverses de la densité traversée. Tandis que pour la technique Schlieren (Strioscopie) développée par Foucault (1859), les variations d'indice de réfraction mis en évidence sont du premier ordre, ce qui permet d'avoir des reflets nets pour des caractérisations géométriques et dynamiques ; cette visualisation a été utilisée par Toepler (1864) dans le domaine des écoulements pour la première fois. La densité optique peut être analysée par trois principes : ombroscopie, strioscopie et interférométrie. La différence entre les trois techniques est présentée dans la *Figure I. 46*.

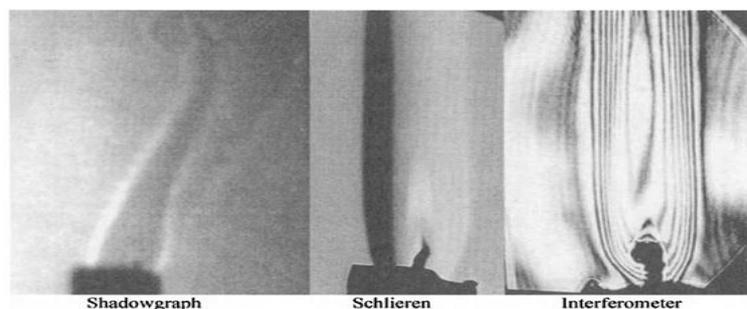


Figure I. 46 : Comparaison entre les trois méthodes de visualisation (Mercer, 2003)

Les schémas expérimentaux souvent utilisés en dynamique de combustion de laboratoire concernant la méthode de gradient sont représentés dans la *Figure I. 47* (Pierre Slangen, 2012).

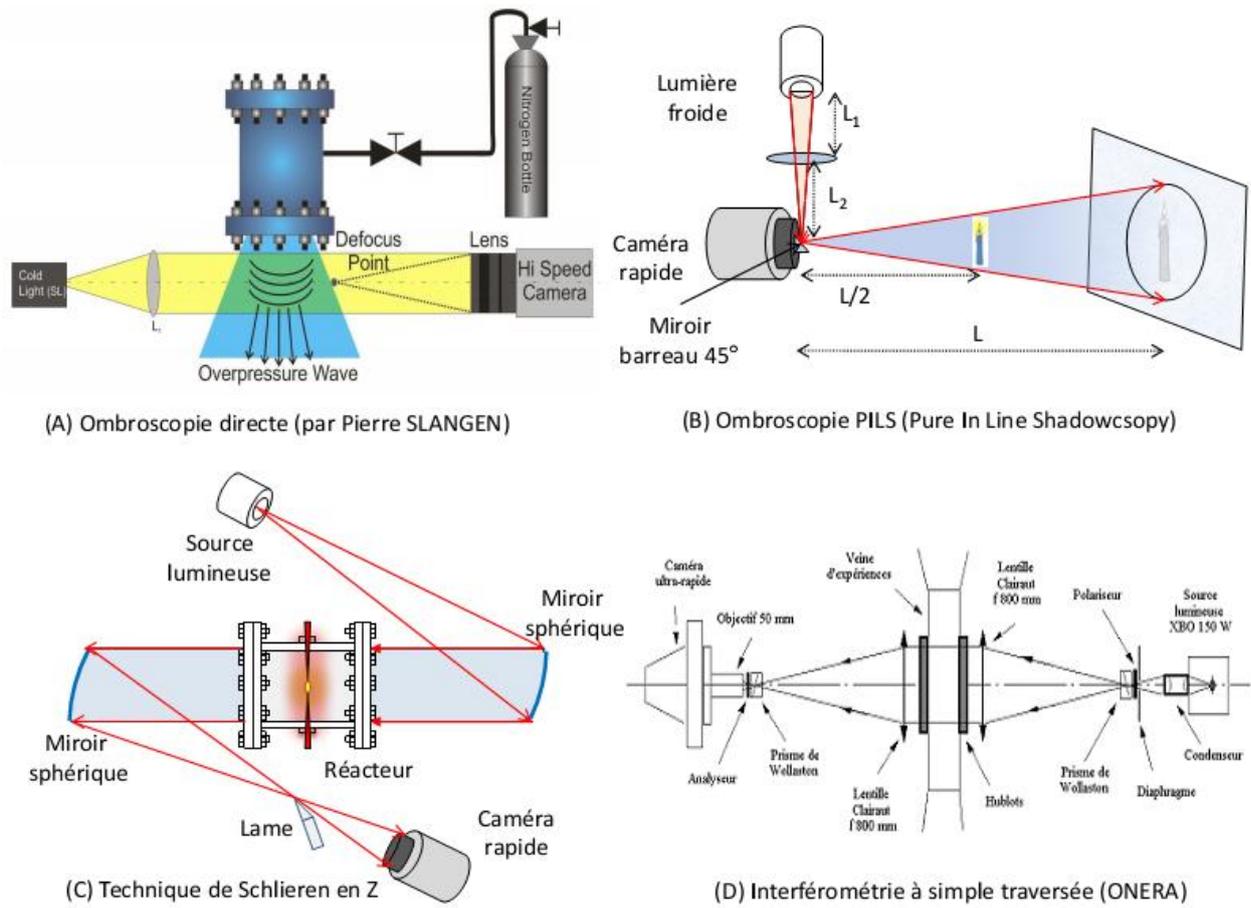


Figure I. 47 : Quelques schémas expérimentaux de la méthode de gradient (Pierre Slangen, 2012).

Ces techniques sont non intrusives et donc largement utilisées (*Figure I. 48*) dans le domaine des écoulements, même de faible magnitude à l'exemple de la convection naturelle (Atul Srivastava et al, 2004), de la combustion (Kleine Harald et al, 2006) et dans le domaine de la détonique (Settles, 1985).

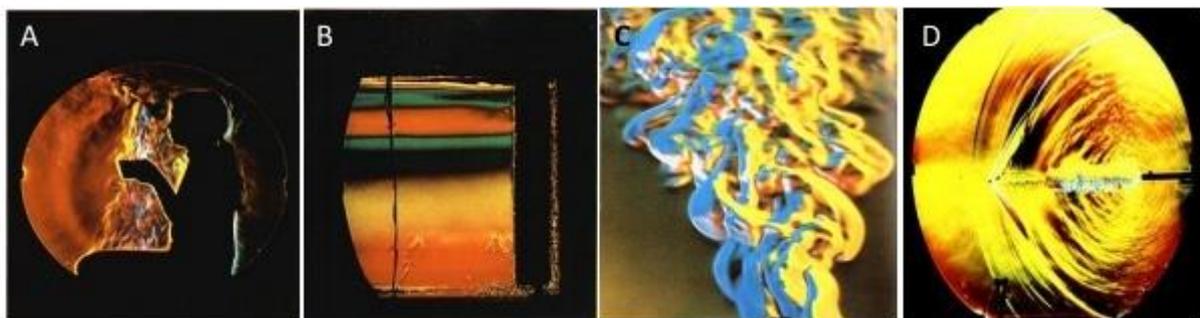


Figure I. 48 : Photographies Schlieren : (A) convection naturelle autour du corps humain; (B) stratification thermique; (C) Flamme turbulente et colonnes de convections ;(D) Ondes de choc d'un tir de balle (Settles, 1985).

6.5 Spectroscopie (LIBS) et détection des espèces

L'émission lumineuse d'un matériau pur ou d'un gaz pur est bien spécifique à sa nature (Voir *Figure I. 49*). De ce fait, cette technique peut s'appliquer à la détection des espèces. Elle est largement utilisée dans l'étude des états excités ou ionisés des atomes et des molécules, à l'exemple de son utilisation dans les études des phénomènes plasma ou des phénomènes de combustion.

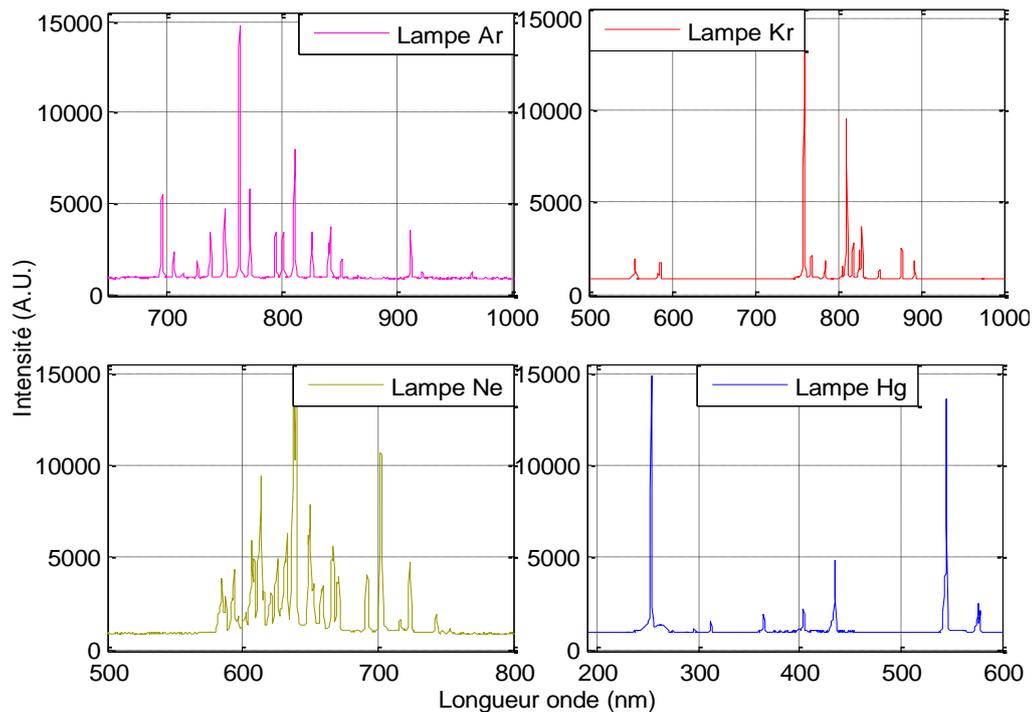


Figure I. 49 : Emissions chromatiques des lampes de laboratoire (Ar, Kr, Ne, Hg).

L'analyse spectroscopique la plus utilisée est la LIBS (Laser Breakdown Spectroscopy) qui permet des acquisitions souvent très résolues temporellement et spatialement. Le schéma de la technique (LIBS) est porté sur la *Figure I. 50*.

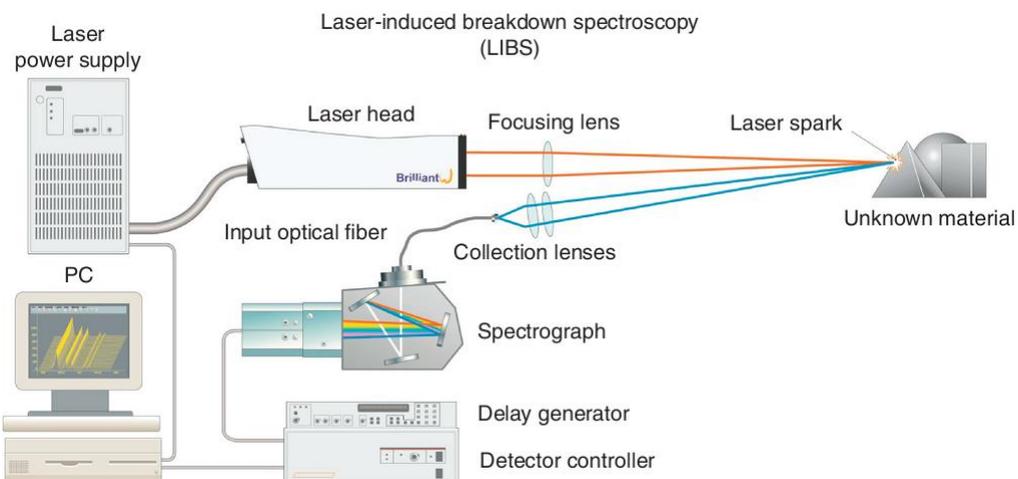


Figure I. 50 : Schéma de la technique LIBS (Diane M Wong et al, 2010)

Ceci permet de suivre l'évolution d'une espèce atomique ou moléculaire localement en temps réel. De ce fait, les états des espèces excitées et ionisées par claquage peuvent être mis en évidence et nous renseigner sur la nature et la physique du milieu.

Cette technique va être utilisée dans cette thèse dans le cadre d'un plasma de claquage non résonant inducteur de combustion dans des mélanges $C_{10}H_{22}/N_2+O_2$. La configuration expérimentale utilisée sera présentée, ainsi que les résultats dans le chapitre 2.

6.6 Temps d'induction chimique

Dans ce rapport, le temps d'induction chimique est défini comme étant un temps d'apparition d'une espèce ou d'un radical correspondant à une longueur d'onde monochromatique bien spécifique de ce dernier lors d'une combustion. La meilleure technique permettant de remonter à ces temps est l'utilisation des cellules photomultiplicateurs reliées à des filtres interférentiels très étroits correspondant au radical ou à l'espèce choisie. La deuxième technique est l'utilisation de la spectroscopie à large fenêtre d'ouverture et le suivi en temps réel de la naissance et de l'évolution du signal de l'espèce ciblée. Par exemple, la caractérisation spectrale en temps réel d'une combustion peut se faire de cette manière : le radical OH 309 nm (précurseur de combustion), le radical CH 331 nm (pour caractériser la durée de la combustion) et le formaldéhyde CH_2O (pour caractériser la fin de combustion). Cette technique demande une vitesse d'acquisition à l'échelle des temps de la cinétique chimique qui s'exerce, souvent de l'ordre la microseconde à l'exemple des études concernant les tubes à chocs. C'est pour cela que les PMT sont les plus privilégiés par rapport aux spectroscopes dont les temps d'acquisition sont très longs, de l'ordre de la ms (HR2000ES+).

6.7 Mesure de température

La température dans les chambres des réacteurs est un paramètre essentiel à mesurer avant, pendant et après la réaction de combustion. La même chose vaut pour les investigations visant à déterminer la température du front de flamme, où d'énormes progrès ont récemment été accomplis en ce qui concerne l'analyse des champs de température par des techniques optiques.

Globalement, les appareils les plus utilisés pour la détermination des températures dans les systèmes de combustion sont les thermocouples. Le principe physique de base est l'effet Seebeck, qui décrit l'apparition d'une tension électrique dépendante du matériau lorsqu'une différence de température existe entre les deux différents matériaux conducteurs qui forment une

boucle fermée à la jonction. Les principales paires de matériaux de thermocouples et leurs plages de température mesurable sont données dans cette référence (Alfred Leipertz et al, 2010).

La résistivité électrique de certains matériaux répond bien au changement de température et représente une autre technique efficace pour mesurer cette dernière, à l'exemple du platine (Pt100) dans lequel la réponse en termes de résistance électrique est linéaire au changement de température. Le principal inconvénient de la thermométrie de résistance par rapport aux thermocouples est sa gamme d'application limitée à environ 1300 K et des temps de réponse longs. Par contre, la précision de la technique est supérieure à celle du thermocouple (MISHRA, 2013).

Cependant, l'inconvénient des deux méthodes est que la sonde doit être placée directement dans le volume de mesure, ce qui les rend intrusives et perturbatrices de l'écoulement. Les mesures restent moins coûteuses et souvent acceptées pour de nombreuses applications, notamment des applications dans le domaine du diagnostic en combustion en régime stationnaire.

Les techniques non intrusives sont demandées lorsqu'il s'agit de milieux sensibles et à hautes températures (plasma, flamme de haute température). Pour ces mesures, les techniques restent des techniques de mesure optiques à l'exemple de la diffusion Rayleigh, de la spectroscopie Raman, des technique CARS et la LIF présentées précédemment (K. Iinuma et al, 1987). La méthode qualitative de base pour des approximations de la température électronique des plasmas reste l'utilisation de la loi de Boltzmann en tenant compte des conditions d'équilibre thermodynamique local (ETL). Dans cette condition, les densités des états excités suivent chacune une distribution de Boltzmann.

$$N_i = \frac{g_i N}{Z(T)} \exp\left(\frac{-E_i}{k_B T}\right) \quad (\text{EQ I.30})$$

g_i est la dégénérescence de l'état excité à l'énergie E_i , K_B est la constante de Boltzmann, T la température, N est la densité totale des particules, $Z(T)$ est la fonction de partition. L'intensité $I_{i \rightarrow j}$ émise par une raie lors d'un passage d'un état supérieur i vers un état inférieur j est donné par l'EQ I.31

$$I_{i \rightarrow j} = \frac{1}{4\pi} \frac{hc}{\lambda_{i \rightarrow j}} \frac{Ng_i A_{i \rightarrow j}}{Z(T)} \exp\left(\frac{-E_i}{k_B T}\right) \quad (\text{EQ I.31})$$

Ici, n est le nombre des systèmes excités de l'élément ciblé. Le choix se porte sur un même état d'ionisation. Dans le cas de deux transitions radiatives 1 et 2 correspondantes aux niveaux énergétiques E_1 et E_2 respectivement supérieur et inférieur, la température peut s'écrire :

$$k_B T = \frac{E_2 - E_1}{\ln \left(\frac{I_1 \lambda_1^3 g_2 f_2}{I_2 \lambda_2^3 g_1 f_1} \right)} \quad (\text{EQ I.32})$$

La méthode la plus précise pour un tel type de calcul est la représentation Boltzmann de plusieurs raies de même espèce avant de tracer $\ln(I_1 \lambda_1^3 g_2 f_2 / I_2 \lambda_2^3 g_1 f_1)$ en fonction de $E_2 - E_1$.

La pente obtenue permet de déterminer la température et l'équilibre thermodynamique local peut être vérifié par la linéarité de la droite tracée. D'autres techniques peuvent être complémentaires de cette méthode, à l'exemple de l'étude d'élargissement Doppler (Ursu, 2011).

6.8 Mesure de la pression

La mesure de pression dans les chambres de combustion est un paramètre essentiel car elle joue un rôle très important pour l'étude des risques d'explosion et pour aussi bien dimensionner les enceintes de combustion. La pression comme variable d'état est régie par l'équation de Bernoulli :

$$\begin{cases} P + \frac{1}{2} \rho V^2 + \rho g H = Cte \dots \dots \dots \text{fluide incompressible} \\ \frac{\gamma}{\gamma - 1} \frac{P}{\rho} + \frac{1}{2} V^2 = Cte \dots \dots \dots \text{fluide compressible} \end{cases} \quad (\text{EQ I.32})$$

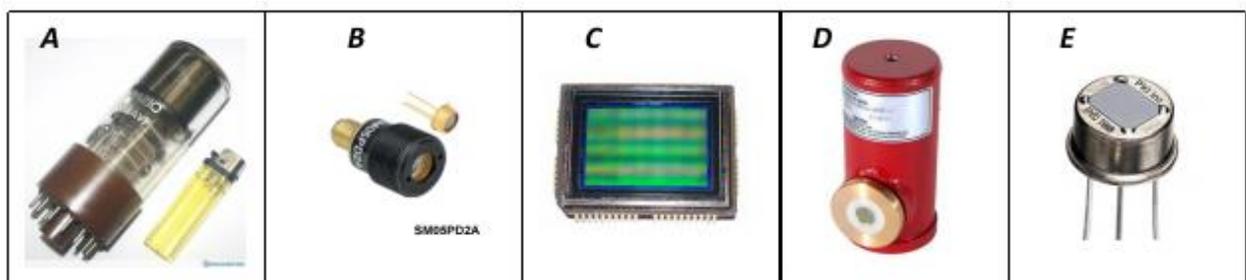
La connaissance des pressions dans les différentes étapes d'un procès est capitale, par exemple les valeurs des pressions d'un cycle Joule idéal fourniraient des informations directes sur l'efficacité thermique d'une machine. Dans le cas des applications moteur, en particulier, la mesure des pressions des cylindres, de la pression d'admission de compresseur ou même la pression rampe peuvent fournir des indications décisives sur l'état et les performances complètes du moteur.

En fonction de la gamme de température, de pression de travail (atmosphère) et aussi de la durée et de la fréquence du phénomène étudié, on trouve différents types de méthodes pour mesurer la pression. Le lecteur pourra se référer à (MISHRA, 2013).

Pour presque toutes les gammes de pression de basses fréquences d'échantillonnage, un simple manomètre peut suffire. Les capteurs piézoélectriques ou de type jauge de contrainte en couche mince sont des capteurs de pression souvent utilisés dans le cas de fréquences d'échantillonnage plus élevées. L'exemple pour d'autres applications spécifiques est la mesure de pression dans des environnements réactifs (combustion). Les oscillations de pression dans le cas de flammes de pré mélanges sont dues aux fluctuations de chaleur libérée par les réactions entraînant une acoustique dans la chambre de combustion qui peut entraîner des bruits de combustion sévères, avec des amplitudes de pression de plusieurs centaines de millibars. Dans ce cas, les capteurs de pression piézo-électriques (Ex : Kistler 6203) sont les mieux adaptés pour la détection et la mesure des phénomènes de pression dynamique rapides à des fréquences élevées (Bao, 2000)(Tipek, 2007). Il convient de noter, toutefois, qu'un refroidissement supplémentaire et une protection de la partie frontale du capteur seraient nécessaires lorsque le point de mesure est en contact avec le front de flamme ou la projection de matières. Récemment, des capteurs de pression type fibre optique à faible coût ont également été introduits (FISO Technologies, 2006).

6.9 Mesure de l'intensité lumineuse de la flamme

Les photos de lumière venant d'une excitation ou d'une ionisation des éléments atomiques ou moléculaires, à l'exemple d'un plasma accompagné d'une combustion, peuvent être détectées par plusieurs capteurs photométriques à l'exemple de ces dispositifs (*Figure I. 51*):



**(A) Photomultiplicateur; (B) Photodiode; (C) Détecteur CCD;
(D) Détecteurs photoconductifs; (E) Détecteurs pyroélectrique;**

Figure I. 51 : Exemples de quelques détecteurs photométriques.

- ✓ **Photomultiplicateurs (PMT)** : représentent des dispositifs très sensibles à la lumière, surtout dans le domaine ultraviolet, leur sensibilité décroît dans le proche infrarouge. Ils sont recommandés pour des faibles émissions lumineuses.
- ✓ **Photodiodes** : Elles utilisent le principe des jonctions p-n ou p-i-n des semi-conducteurs pour détecter la lumière. Quand la photodiode est illuminée, les électrons de la bande de

valence sont excités vers une bande de conduction en créant des paires d'électrons trous grâce au fort gradient de potentiel de la jonction. Celui-ci les accélère (les électrons et les trous) dans des directions opposées, ce qui crée un écoulement de courant. Les photodiodes demandent des circuits d'adaptation pour une bonne mesure, i.e. une alimentation avec voltage de Bias de quelque volts et un courant inverse de quelque mA.

- ✓ **Détecteur CCD** (*charge-coupled detector arrays*) : Permettent des mesures simultanées d'intensités sur plusieurs points. On trouve des capteurs *CCD linéaires* qui se composent d'une rangée de photo-capteurs couplés à un registre horizontal dont le signal sera filtré, amplifié et numérisé par la suite. On trouve aussi des capteurs surfaciques qui représentent un empilement de rangées de CCD linéaires pour former une surface (mesures plan). Le troisième type est les capteurs CCD frame-transfert, ils sont composés de deux surfaces identiques : une dédiée au captage des photos et une deuxième représentant la zone mémoire masquée sur laquelle l'information de la zone illuminée est transférée. (F.M. Li A. Nathan, 2013)(Gerald C. Holst, 1998)
- ✓ **Détecteurs photoconductifs** : ils sont utilisés comme détecteurs dans les bandes infrarouges, ils sont souvent à base de Hg-Cd-Te. Dans un tel détecteur, l'absorption des photons infrarouges produit des porteurs de charge libres qui modifient la conductivité électrique du matériau détecteur. Il se compose d'une mince surface rectangulaire de (10 à 20 μm) de Hg-Cd-Te avec des contacts métallisés. La réponse spectrale est déterminée par l'intervalle d'énergie entre les bandes de valence et de conduction, qui peut être contrôlée en faisant varier le rapport de Hg-Te à Cd-Te dans le matériau. Ces détecteurs couvrent une gamme spectrale de longueurs d'onde de 2 à 20 μm (HARIHARAN, 2015).
- ✓ **Détecteurs pyroélectrique** : Le principe de ce détecteur est d'utiliser des matériaux ferroélectriques tels que le Zirconate de Plomb avec céramique, ou avec une matière plastique, telle que le fluorure de polyvinylidène, qui est polarisé électriquement par refroidissement à partir d'une température appropriée dans un champ électrique. Si le matériau est ensuite placé entre deux électrodes, tout changement en termes de température due à l'absorption du rayonnement infrarouge produit un courant dans le circuit externe de mesure. Des matériaux similaires sont utilisés dans des réseaux de CCD pyroélectrique. Les capteurs pyroélectrique sont sensibles dans la région infrarouge, mais ne répondent qu'aux changements de l'intensité lumineuse, ils peuvent

donc être utilisés uniquement avec des sources modulées (HARIHARAN, 2015) (Batra, 2013).

6.10 Techniques physico chimiques

En plus des techniques de détection mentionnées ci-dessus, on trouve aussi des techniques de diagnostic thermo-physico-chimiques avec prélèvement des échantillons des substances à étudier, à l'exemple de l'analyse par chromatographie phase gazeuse et la spectroscopie de masse dont la *Figure I. 52* explique le principe.

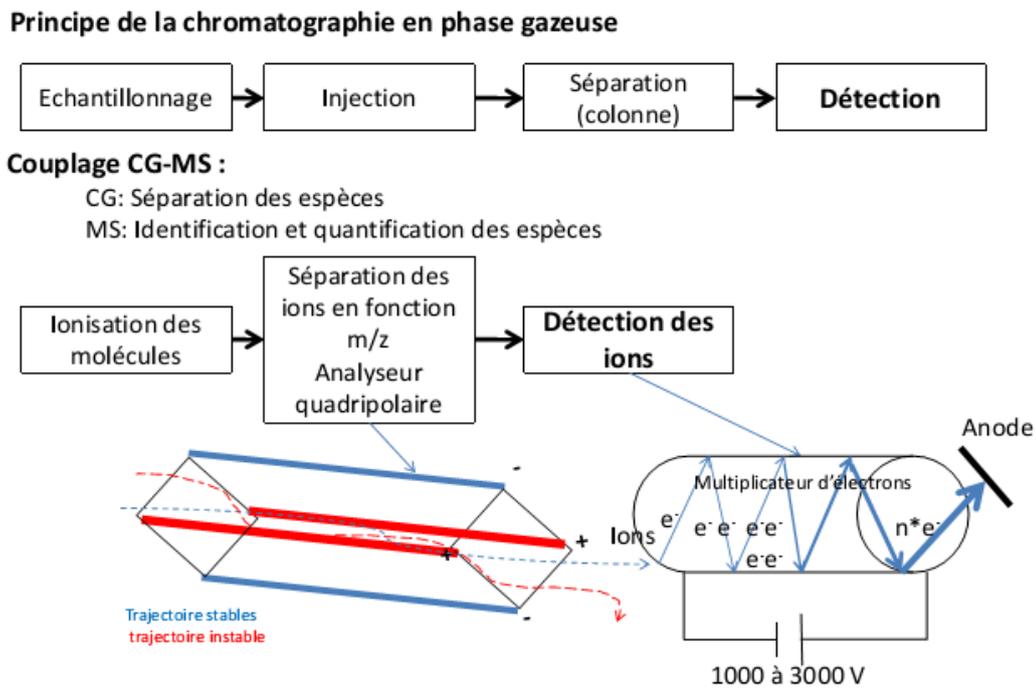


Figure I. 52 : Principe de la chromatographie phase gazeuse et la spectroscopie de masse couplée GC

Ces techniques sont largement utilisées dans les laboratoires pour détecter et caractériser les concentrations d'espèces souvent prélevées des milieux réactifs (combustion). La chromatographie en phase gazeuse (GC) et la spectrométrie de masse (MS) sont souvent couplées pour permettre une large gamme de détection et de quantification hautement précise (seuil de détection 10 ppb). Les deux systèmes GC et MS offrent la possibilité d'une analyse quantitative de trace pour plusieurs familles d'espèces, sur la base d'un système à un seul détecteur (JACK CAZES, 1997). La GC phase gazeuse est utilisée dans plusieurs études à l'exemple des mesures de concentrations de quelques hydrocarbures dans le cas d'une flamme pré-mélangée partiellement (Mishra, 2005). La technique de spectroscopie de masse (MS) est utilisée pour l'étude des ions des flammes à pression atmosphérique afin de mettre en évidence les effets des champs électriques appliqués (S. D. T. AXFORD et al, 1998).

Les deux techniques sont employées aussi dans plusieurs études, à l'exemple de l'étude de la combustion sur les suies de charbon (Shu, Xu, Xu, & Ge, 1996). Les propriétés physiques et chimiques des particules de suies sont étudiées par MS couplée à un laser vaporiseur (Onasch et al., 2012). Des caractérisations de particules de suies en temps réels sont faites par le même système MS dans le cas des émissions des gaz d'échappement (Cross, 2012).

7 Conclusion

La combustion est une filière qui s'étend sur plusieurs domaines. À ce jour, l'humanité ne peut plus s'en passer sachant qu'une grande partie de l'économie du monde est liée à ce phénomène. La combustion est belle et bien bénéfique pour l'humanité tant que ce phénomène reste industriellement utilisé avec modération i.e. combustions propres et bien contrôlées se plaçant dans le respect des différentes directives environnementales à l'échelle mondiale, continentale, nationale et locale.

La plupart des solutions technologiques et environnementales limitant le côté sombre de ce phénomène existe déjà, comme ce qui vient d'être cité en section 2.5, 3 et 4 et d'autres sont en phase de développement. Parmi ces solutions nouvelles, on trouve la plupart des techniques d'allumages, à l'exemple de l'allumage par claquage laser et les différentes techniques de dépollution.

Dans le but de mettre au point ces différentes solutions technologiques et donner preuve de leur efficacité, plusieurs techniques expérimentales sont disponibles dans les centres de recherche. Ces dernières ont pour objectif de chercher une bonne efficacité, un bon rendement concernant les systèmes de conversion d'énergie. Mais il s'agit aussi de mieux comprendre les phénomènes physiques pour mieux les utiliser, à l'exemple des techniques énumérées dans la section 6.

Bibliographie (I)

- ADEME. (2014). Emissions de particules et de NOx par les véhicules routiers. *LES AVIS DE L'ADEME*, 4, 2–7. Retrieved from <http://www.ademe.fr>
- Ademe. (2015). Les chiffres clés 2014, Climat, air et énergie, 172.
- Ahmad, S. R., & Cartwright, M. (2015). *Laser Ignition of Energetic Materials*. doi:10.1002/9781118683521
- Alain, S., Emmanuel, R., & Gérard, B. (2011). Post-traitement des émissions polluantes des moteurs thermiques à combustion interne Moteurs à allumage commandé. *Techniques de L'ingénieur*, 33(BM 2508).
- ALDÉN, M. (1999). Laser spectroscopic techniques for combustion diagnostics. *Combustion Science and Technology*, 149(1-6), 1–18. doi:10.1080/00102209908952096
- Aldén, M. (2006). *Development and application of atomic and molecular laser spectroscopy for combustion diagnostics*. Sweden.
- Alfred Leipertz et al. (2010). *Handbook of Combustion: An Overview of Combustion Diagnostics*. *Handbook of Combustion* (Vol. 2).
- Arbab, M. I., Varman, M., Masjuki, H. H., Kalam, M. A., Imtenan, S., Sajjad, H., & Rizwanul Fattah, I. M. (2015). Evaluation of combustion, performance, and emissions of optimum palm-coconut blend in turbocharged and non-turbocharged conditions of a diesel engine. *Energy Conversion and Management*, 90, 111–120. doi:10.1016/j.enconman.2014.11.017
- ATKINS, P. and L. J. (2013). *BOOK OF CHIMICAL PRINCIPALES*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 5). W. H. Freeman and Company New York. doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Atul Srivastava et al. (2004). Imaging of a convective field in a rectangular cavity using interferometry, Schlieren and shadowgraph. *Optics and Lasers in Engineering*, 42(4), 469–485. doi:10.1016/j.optlaseng.2004.03.003
- Bao, M.-H. (2000). *Micro mechanical transducers: pressure sensors, accelerometers, and gyroscopes*. *Handbook of sensors and actuators* (Vol. 8). doi:<http://www.sciencedirect.com/science/handbooks/13862766>
- BARNARD, J.A. (1985). *Flame and Combustion*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (2nd ed., Vol. 53). SPRINGER-SCIENCE+BUSINESS MEDIA B.V. doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Bash, E. (2015). *Diesel Engine Transient Operation*. *PhD Proposal* (Vol. 1). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Batra, A. K. (2013). *Pyroelectric Materials*. SPIE P.O. Box 10 Bellingham, Washington 98227-0010 USA.
- Bentaleb, S. (2012). *Etude du déclenchement de combustion de mélanges air-propane et air-heptane par décharge mono-impulsionnelle nanoseconde*. Université Paris Sud - Paris XI, 2012.
- Bermúdez, V., Serrano, J. R., Piqueras, P., & García-Afonso, O. (2015). Pre-DPF water injection technique for pressure drop control in loaded wall-flow diesel particulate filters. *Applied Energy*, 140, 234–245. doi:10.1016/j.apenergy.2014.12.003
- Bond, J. (1991). *Sources of Ignition Flammability Characteristics of Chemicals and Products*. *Sources of Ignition* (Butterwort.). Butterworth-Heinemann Ltd Halley Court, Jordan Hill, Oxford OX2 8EJ. doi:10.1016/B978-0-7506-1180-0.50010-6
- Bradley, D. et al. (1988). Fine Dust-Air Explosions. *Twenty-Second Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, 1988/pp. 1767 1775 BURNING*.
- Bradley, D., & Mitcheson, A. (1976). Mathematical solutions for explosions in spherical vessels. *Combustion and Flame*, 26(C), 201–217. doi:10.1016/0010-2180(76)90072-9
- Bruneel, E., Van Brabant, J., Le, M. T., & Van Driessche, I. (2012). Deposition of a Cu/Mo/Ce catalyst for diesel soot oxidation on a sintered metal fiber filter with a CeO₂ anti corrosion coating. *Catalysis Communications*, 25, 111–117. doi:10.1016/j.catcom.2011.12.017
- Buckmaster, J. D., Ludford, G. S. S., & Emmons, H. W. (1983). *Theory of Laminar Flames*. *Journal of Applied Mechanics* (Vol. 50). doi:10.1115/1.3167129
- Catoire, L., & Naudet, V. (2005). Estimation of temperature-dependent lower flammability limit of pure

- organic compounds in air at atmospheric pressure. *Process Safety Progress*, 24(2), 130–137. doi:10.1002/prs.10072
- Champion, M., & Deshaies, B. (1986). Spherical flame ignition: Theory versus Experiment for lean propane-air mixtures. *Combustion and Flame*, 65, 319–337.
- Choi, J.-S., Shin, Y.-J., Lee, K.-Y., & Choi, J.-H. (2015). Two-dimensional simulation of hydrogen iodide decomposition reaction using fluent code for hydrogen production using nuclear technology. *Nuclear Engineering and Technology*, 47(4), 424–433. doi:10.1016/j.net.2015.01.006
- Chou, M. S., & Zukowski, T. J. (1991). Ignition of {H₂/O₂/NH₃, H₂/air/NH₃} and {CH₄/O₂/NH₃} Mixtures by Excimer-Laser Photolysis of {NH₃}. *Combustion and Flame*, 87(2), 191–202.
- CORKY Bell. (1997). *Maximum_Boost_Designing_Testing.pdf*.
- Coronado, C. J. R., Carvalho, J. A., Andrade, J. C., Cortez, E. V., Carvalho, F. S., Santos, J. C., & Mendiburu, A. Z. (2012). Flammability limits: A review with emphasis on ethanol for aeronautical applications and description of the experimental procedure. *Journal of Hazardous Materials*, 241-242, 32–54. doi:10.1016/j.jhazmat.2012.09.035
- Cross, E. S. et al. (2012). Real-Time Measurements of Engine-Out Trace Elements: Application of a Novel Soot Particle Aerosol Mass Spectrometer for Emissions Characterization. *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, 134(July 2012), 072801. doi:10.1115/1.4005992
- Degtyarev, A., Kushnaryov, A., Shulga, V., & Ventskovsky, O. (2016). Yuzhnoye's New Liquid Rocket Engines As Enablers for Space Exploration. *Acta Astronautica*. doi:10.1016/j.actaastro.2016.04.006
- Diane M Wong et al. (2010). Laser Induced Breakdown Spectroscopy. 2010 Elsevier Ltd., 427. doi:10.1007/s13398-014-0173-7.2
- Dynamics, D. (2016). Optimizing Combustion Processes. *Dantec Dynamics, a Nova Instruments Company*, p. 12. UNITED KINGDOM Dantec Dynamics Ltd. uk@dantecdynamics.com. doi:275_v5
- Eckhoff, R. K. (2005). *Explosion Hazards in the Process Industries*. Gpp (First Edit., Vol. 1). Gulf Publishing Company. doi:10.1016/B978-0-9765113-4-2.50010-5
- Esposito, E. (1995). Combustion en prémélange gazeux. *Techniques de l'Ingénieur*, 33(0), 21.
- F.M. Li A. Nathan. (2013). *CCD Image Sensors in Deep-Ultraviolet*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 53). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- FAESSLER, Jérôme, et al. (2012). Aspects énergétiques de la mobilité électrique : état des lieux et enjeux généraux pour le territoire du canton de Genève. *Université de Genève Report*, (Institut Forel / Institut des Science de l'Environnement Site Battelle - Bat D - 7 route de Drize - CH 1227 Carouge), 1–81. Retrieved from <http://archive-ouverte.unige.ch/unige:23585> Disclaimer:
- Fallis, A. . (2013). *Handbook of Diesel Engines*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 53). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- FISO Technologies. (2006). FOP-M Pressure Sensor. Retrieved from Email info@fi so.com
- Forch, B. E., & Miziolek, A. W. (1986). Oxygen-atom two-photon resonance effects in multiphoton photochemical ignition of premixed H₂ / O₂ flows, 11(3), 129–131.
- Fu, J., Tang, C., Jin, W., & Huang, Z. (2014). Effect of preferential diffusion and flame stretch on flame structure and laminar burning velocity of syngas Bunsen flame using OH-PLIF. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(23), 12187–12193. doi:10.1016/j.ijhydene.2014.06.043
- Fu, J., Tang, C., Jin, W., Thi, L. D., Huang, Z., & Zhang, Y. (2013). Study on laminar flame speed and flame structure of syngas with varied compositions using OH-PLIF and spectrograph. *International Journal of Hydrogen Energy*, 38(3), 1636–1643. doi:10.1016/j.ijhydene.2012.11.023
- Gerald C. Holst. (1998). *CCD Arrays, Cameras and Displays*.
- Golio, M. (2001). *Editor in Chief Mike Golio Boca Raton: CRC Press LLC , 2001*. (M. Golio, Ed.)*Engineering* (©2001 CRC .). original U.S. Government works.
- HARIHARAN, P. (2015). *Basics of INTERFEROMETRY*. *Academic Press is an imprint of Elsevier* (2nd ed., Vol. 2). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Hatwar, P., & Verma, D. (2012). Laser Ignition in Internal Combustion Engines, 2(2), 341–345.
- Hilliard, J. (1984). *Fuel Economy in Road Vehicles Powered by Spark Ignition Engines*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (John C. Hi., Vol. 53). Combustion and Fuel Research, Inc. Ann Arbor, Michigan: OriginallypublishedbyPlenumPress,NewYorkin1984 Softcoverreprint tofthehardcover1stedition1984 All rightsreserve. doi:10.1017/CBO9781107415324.004

- Hugh MACLNNES. (1976). *TURBOCHARGERS*.
- J. Göttgens et al. (1992). Analytic Approximations of Burning Velocities and Flame Thicknesses of Lean Hydrogen, Methane, Ethylene, Ethane, Acetylene, and Propane Flames, 129–135. doi:10.1016/S0082-0784(06)80020-2
- JACK CAZES. (1997). *Chromatographic detectors: Design, function, and operation. Analytica Chimica Acta* (Vol. 353). doi:10.1016/S0003-2670(97)90131-8
- Jaszczur, M., Rosen, M. a., Śliwa, T., Dudek, M., & Pieńkowski, L. (2016). Hydrogen production using high temperature nuclear reactors: Efficiency analysis of a combined cycle. *International Journal of Hydrogen Energy*, 1–11. doi:10.1016/j.ijhydene.2015.11.190
- Joassard, Irénée, F. W.-X. D. (2016). Chiffres clés du climat France et Monde-Édition 2016. *Service de L'observation et Des Statistiques*, (I4CE – Institute for Climate Economics), 60. Retrieved from www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr
- Jozef JAROSINSKI, B. V. (2009). *COMBUSTION PHENOMENA “Selected Mechanisms of Flame Formation, Propagation, and Extinction.”* (F. 33487-2742 CRC Press Taylor & Francis Group 6000 Broken Sound Parkway NW, Suite 300 Boca Raton, Ed.). © 2009 by Taylor & Francis Group, LLC CRC Press is an imprint of Taylor & Francis Group, an Informa business. Retrieved from <http://www.taylorandfrancis.com>
- Jr., J. L. P. (1998). *Performance of a Plasma Torch With Hydrocarbon Feedstocks for Use in Scramjet Combustion by Performance of a Plasma Torch With Hydrocarbon Feedstocks for Use in Scramjet Combustion by (ABSTRACT)*. Thesis Submitted to the Faculty of the Virginia Polytechnic Institute and State University. Virginia Polytechnic Institute and State University.
- K. Iinuma et al. (1987). *Laser Diagnostics and Modeling of Combustion*. (K. Hnuma, Ed.)Springer. Verlag Berlin Heidelberg New York London Paris Tokyo. doi:10.1007/978-3-642-45635-0
- Karim, G. A. (2015). *Dual-Fuel Diesel Engines*. Retrieved from <https://books.google.com/books?id=ala3BgAAQBAJ>
- Kimura, I., Aoki, H., & Kato, M. (1981). The use of a plasma jet for flame stabilization and promotion of combustion in supersonic air flows. *Combustion and Flame*, 42(C), 297–305. doi:10.1016/0010-2180(81)90164-4
- Kleine Harald et al. (2006). Simultaneous shadow, Schlieren and interferometric visualization of compressible flows. *Optics and Lasers in Engineering*, 44(3-4), 170–189. doi:10.1016/j.optlaseng.2005.04.009
- Ko, Y. (1991). Spark Ignition of Propane-Air Mixtures Near the Minimum Ignition Energy : Part II . A Model Development Cd. *COMBUSTION AND FLAME* 83:88-105, 105, 88–105. doi:10.1016/0010-2180(91)90205-P
- Ko, Y., Anderson, R. W., & Arpaci, V. S. (1991). Spark ignition of propane-air mixtures near the minimum ignition energy: Part I. An experimental study. *Combustion and Flame*, 83(1-2), 75–87. doi:10.1016/0010-2180(91)90204-O
- Kohse-Höinghaus, K. (1994). Laser techniques for the quantitative detection of reactive intermediates in combustion systems. *Progress in Energy and Combustion Science*, 20(3), 203–279. doi:10.1016/0360-1285(94)90015-9
- Kok, R. (2015). Six years of CO₂-based tax incentives for new passenger cars in The Netherlands: Impacts on purchasing behavior trends and CO₂ effectiveness. *Transportation Research Part A: Policy and Practice*, 77, 137–153. doi:10.1016/j.tra.2015.04.009
- Lattimore, T., Herreros, J. M., Xu, H., & Shuai, S. (2016). Investigation of compression ratio and fuel effect on combustion and PM emissions in a DISI engine. *Fuel*, 169(x), 68–78. doi:10.1016/j.fuel.2015.10.044
- Lavid, M., & Stevens, J. G. (1985). Photochemical ignition of premixed hydrogen oxidizer mixtures with excimer lasers. *Combustion and Flame*, 60(2), 195–202. doi:10.1016/0010-2180(85)90007-0
- LE BRAS, S. (2015). *Etude de catalyseurs Pt-Pd supportés sur spinelle MgAl₂O₄ pour la dépollution automobile : synthèse, stabilité hydrothermale et performances catalytiques*. UNIVERSITE DE LIMOGES.
- Li, F., Yu, X. L., Tong, Y. G., Shen, Y., Chen, J., Chen, L. H., & Chang, X. Y. (2013). Plasma-assisted ignition for a kerosene fueled scramjet at Mach 1.8. *Aerospace Science and Technology*, 28(1), 72–78. doi:10.1016/j.ast.2012.10.005
- Li, Z. (2009). Activity Report from the Division of Combustion Physics. *Combustion*.

- Lipatnikov, A. (2012). *Fundamentals of Premixed Turbulent Combustion*. doi:10.1201/b12973
- Lorelei, L. (2013). *Règlementation européenne sur les émissions de CO2 des véhicules particuliers*. Retrieved from <http://www.rac-f.org/>
- Lucas et al. (1987). Ignition by Excimer Laser Photolysis of Ozone, *184*, 171–184.
- Luján, J. M., Climent, H., Novella, R., & Rivas-Perea, M. E. (2015). Influence of a low pressure EGR loop on a gasoline turbocharged direct injection engine. *Applied Thermal Engineering*, *89*, 432–443. doi:10.1016/j.applthermaleng.2015.06.039
- Ma, T. (2015). *Ignitability and Explosibility of Gases and Vapors*. Springer Science+Business Media LLC New York is part of Springer Science+Business Media. doi:10.1007/978-1-4939-2665-7
- Maly, R., & Vogel, M. (1979). Initiation and propagation of flame fronts in lean CH₄-air mixtures by the three modes of the ignition spark. *Symposium (International) on Combustion*, *17*(1), 821–831. doi:10.1016/S0082-0784(79)80079-X
- Mannan, M. S. (2012). *Lees' Loss Prevention in the Process Industries*. College Station, Texas.
- Marat, J. (1780). *Recherches physiques sur le feu*, Jombert, Paris.
- Mattingly, J. D., & Ohain, H. Von. (2006). *Elements of propulsion: Gas turbines and rockets*. *Mechanical Engineering*. doi:10.2514/4.861789
- Mercer, C. R. (2003). *Optical Metrology for Fluids, Combustion and Solids*. EBook. doi:10.1007/978-1-4757-3777-6
- Metghalchi, M., & Keck, J. C. (1982). Burning velocities of mixtures of air with methanol, isooctane, and indolene at high pressure and temperature. *Combustion and Flame*, *48*(C), 191–210. doi:10.1016/0010-2180(82)90127-4
- Mishra, T. K. et al. (2005). Concentration measurements of selected hydrocarbons in methane/air partially premixed flames using gas chromatography. *International Journal of Thermal Sciences*, *44*(11), 1078–1089. doi:10.1016/j.ijthermalsci.2005.03.014
- MISHRA, D. P. (2013). *Experimental Combustion An Introduction*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 1). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- Moorhouse, J., Williams, A., & Maddison, T. E. (1974). An investigation of the minimum ignition energies of some C1 to C7 hydrocarbons. *Combustion and Flame*, 203–213.
- Morfin, F., Sabroux, J. C., & Renouprez, A. (2004). Catalytic combustion of hydrogen for mitigating hydrogen risk in case of a severe accident in a nuclear power plant: Study of catalysts poisoning in a representative atmosphere. *Applied Catalysis B: Environmental*, *47*(1), 47–58. doi:10.1016/j.apcatb.2003.07.001
- Nguyen-Schäfer, H. (2015). *Rotordynamics of Automotive Turbochargers*. (S. I. P. A. S. is part of S. S. Media, Ed.) (Second Edi.). Stuttgart, Germany. doi:10.1007/978-3-319-17644-4
- Nishi, M., Kanehara, M., & Iida, N. (2016). Assessment for innovative combustion on HCCI engine by controlling EGR ratio and engine speed. *Applied Thermal Engineering*, *99*, 42–60. doi:10.1016/j.applthermaleng.2015.11.126
- Onasch, T. B., Trimborn, a., Fortner, E. C., Jayne, J. T., Kok, G. L., Williams, L. R., ... Worsnop, D. R. (2012). Soot Particle Aerosol Mass Spectrometer: Development, Validation, and Initial Application. *Aerosol Science and Technology*, *46*(7), 804–817. doi:10.1080/02786826.2012.663948
- Palma, V., Ciambelli, P., Meloni, E., & Sin, A. (2013). Study of the catalyst load for a microwave susceptible catalytic DPF. *Catalysis Today*, *216*, 185–193. doi:10.1016/j.cattod.2013.07.012
- Pan, Y., Jiang, J., Wang, R., Cao, H., & Zhao, J. (2008). Prediction of auto-ignition temperatures of hydrocarbons by neural network based on atom-type electrotopological-state indices. *Journal of Hazardous Materials*, *157*(2-3), 510–517. doi:10.1016/j.jhazmat.2008.01.016
- Park, J., & Song, S. (2014). Predicting the performance and NO_x emissions of a turbocharged spark-ignition engine generator fueled with biogases and hydrogen addition under down-boosting condition. *International Journal of Hydrogen Energy*, *39*(16), 8510–8524. doi:10.1016/j.ijhydene.2014.03.150
- Pesant, L. (2005). *Elaboration d'un nouveau système catalytique à base de carbure de silicium (β-SiC) pour la combustion des suies issues des automobiles à moteur Diesel*. Université Louis Pasteur.
- Peters, N. . R. B. (1985). *Lecture Notes in Physics 1969–1985*. *Lecture notes in physics*. New series m, *Monographs*. doi:10.1007/978-3-662-29391-1_1
- Pierre Alain De Smedt. (2008). En savoir plus? www.enrouteversdemain.be 1. *Revue Éditée Par FEBIAC, La Fédération Belge de l'Automobile et Du Cycle*, (Éditeur responsable: Pierre Alain De

- Smedt), 1–24. Retrieved from www.enrouteversdemain.be
- Pierre Slangen. (2012). Voir l' invisible. Ecole des Mines d'Alès - LGEI Institut des Sciences des Risques.
- Qian, B., Li, X., & Shen, X. (2016). Preparation and accelerated carbonation of low temperature sintered clinker with low Ca/Si ratio Binbin. *Journal of Cleaner Production*, 120, 249–259. doi:10.1016/j.jclepro.2016.01.024
- R. Teichmann et al. (2012). Optical Diagnostic Techniques Introduction Optical Methods : An Overview. In *Combustion Diagnostics* (p. 28). <http://www.springer.com>. Retrieved from <http://www.springer.com/978-3-642-02951-6>
- Reif, K. (2004). *Diesel Engine Management - Systems and Components*. doi:10.1007/978-3-658-03981-3
- Reif, K. (2014). *Gasoline Engine Management*. Wiley.
- Rogério dos Santos et al. (2014). Adbleu. *Igarss 2014*, (1), 1–5. doi:10.1007/s13398-014-0173-7.2
- ROMP, I. H. A. (1937). *OIL BURNING*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 1). doi:10.1017/CBO9781107415324.004
- S. D. T. AXFORD et al. (1998). Mass-spectrometric sampling of ions from flames at atmospheric pressure: The effects of applied electric fields and the variation of electric potential in a flame. *Combustion and Flame*, 114(3-4), 294–302. doi:10.1016/S0010-2180(97)00321-0
- Settles, G. S. (1985). Colour-coding Schlieren techniques for the optical study of heat and fluid flow. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 6(1), 3–15. doi:10.1016/0142-727X(85)90024-4
- Sheng Yang et al. (2016). On colliding spherical flames: Morphology, corner dynamics, and flame-generated vorticity. *Combustion and Flame*, 167. doi:10.1016/j.combustflame.2015.10.029
- Sher, E. (1998). *Handbook of Air Pollution From Internal Combustion Engines*.
- Shu, X., Xu, J., Xu, J., & Ge, L. (1996). Study of spontaneous combustion coals by GC and GC-MS. © Springer-Verlag 1996, 390–392. doi:355:390–392
- Siwale, L., Krist??f, L., Adam, T., Bereczky, A., Mbarawa, M., Penninger, A., & Kolesnikov, A. (2013). Combustion and emission characteristics of n-butanol/diesel fuel blend in a turbo-charged compression ignition engine. *Fuel*, 107, 409–418. doi:10.1016/j.fuel.2012.11.083
- Starik, a M., Kuleshov, P. S., & Titova, N. S. (2009). Comprehensive analysis of combustion initiation in methane–air mixture by resonance laser radiation. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 42(17), 175503. doi:10.1088/0022-3727/42/17/175503
- Steven F. Adams. (2010). Resonant Laser Induced Breakdown for Fuel-Air Ignition. *48th AIAA Aerospace Sciences ...*, (January), 1–5. doi:10.2514/6.2010-646
- Takita et al. (2005). A novel design of a plasma jet torch igniter in a scramjet combustor. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30 II(2), 2843–2849. doi:10.1016/j.proci.2004.08.110
- Takita et al. (2007). Optimization of double plasma jet torches in a scramjet combustor. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31 II, 2513–2520. doi:10.1016/j.proci.2006.07.054
- Takita, K. (2002). Ignition and flame-holding by oxygen, nitrogen and argon plasma torches in supersonic airflow. *Combustion and Flame*, 128(3), 301–313. doi:10.1016/S0010-2180(01)00354-6
- Tanaka, N. (2010). *CO2 emissions from fuel combustion*. *Statistics* (Vol. 30). doi:10.1787/9789264096134-en
- TERNEL, C. (2006). *Contribution au développement de l'allumage par laser pour les moteurs à combustion interne*. PHD. FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE ROUEN.
- Thibault, E. G. et J.-P. (2008). *CYCLES THERMODYNAMIQUES DES MACHINES THERMIQUES*. Simulation. GRENOBLE INSTITUT POLYTECHNIQUE CYCLES.
- Tipek, P. R. A. (2007). *Modern Sensors Handbook* (© ISTE Ltd.). ISTE Ltd 6 Fitzroy Square London W1T 5DX UK.
- Tomita, I., An, B., & Nanbu, T. (2014). A new operating range enhancement device combined with a casing treatment and inlet guide vanes for centrifugal compressors, (5), 79–87. doi:10.1016/B978-0-081000-33-5.50007-X
- Tran Manh Vu et al. (2014). Stability enhancement of ozone-assisted laminar premixed Bunsen flames in nitrogen co-flow. *Combustion and Flame*, 161(4), 917–926. doi:10.1016/j.combustflame.2013.09.023
- Trapy, J. (2013). Moteur à allumage commandé. In I. français du pétrole (IFP) (Ed.), *Techniques de l'Ingénieur* (pp. 0–22).
- Tsai, F.-Y., Chen, C.-C., & Liaw, H.-J. (2012). A Model for Predicting the Auto-ignition Temperature

- using Quantitative Structure Property Relationship Approach. *Procedia Engineering*, 45, 512–517. doi:10.1016/j.proeng.2012.08.195
- Ursu, C. (2011). *Caractérisation par méthodes optiques et électriques du plasma produit par ablation laser*. UNIVERSITE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES.
- Veynante, D. (1999). Flamme de diffusion laminaire. *Techniques de l'Ingénieur*, 33(0), 19.
- Warnatz, J., Maas, U., & Dibble, R. W. (2006). *J. Warnatz · U. Maas · R.W. Dibble Combustion*. New York. Retrieved from <http://books.google.com/books?hl=en&lr=&id=2bgQBgnOpoC&oi=fnd&pg=PA1&dq=Combustion+Physical+and+chemical+fundamentals,+modeling+and+simulation,+experiments,+pollutant+formation&ots=MccdCmtDBz&sig=9qb73lg-8DQNOYCMvzLWnJ02lXo>
- Williams, F. A. (2000). Progress in knowledge of flamelet structure and extinction. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26(4), 657–682. doi:10.1016/S0360-1285(00)00012-5
- Wu Jin et al. (2015). Cellular instabilities of non-adiabatic laminar flat methane/hydrogen oxy-fuel flames highly diluted with CO₂. *Fuel*, 143, 38–46. doi:10.1016/j.fuel.2014.11.036
- X. Ma, C. J. (2010). *Optical Diagnostics of Flow and Combustion. Introduction Laser & Spectrograph Diagnostics Optical Engine & Imaging Techniques*.
- Xie, F., Li, X., Su, Y., Hong, W., Jiang, B., & Han, L. (2016). Influence of air and EGR dilutions on improving performance of a high compression ratio spark-ignition engine fueled with methanol at light load. *Applied Thermal Engineering*, 94, 559–567. doi:10.1016/j.applthermaleng.2015.10.046
- Yang, H., Feng, Y., Wang, X., Jiang, L., Zhao, D., Hayashi, N., & Yamashita, H. (2013). OH-PLIF investigation of wall effects on the flame quenching in a slit burner. *Proceedings of the Combustion Institute*, 34(2), 3379–3386. doi:10.1016/j.proci.2012.07.038
- Zamboni, G., & Capobianco, M. (2012). Experimental study on the effects of HP and LP EGR in an automotive turbocharged diesel engine. *Applied Energy*, 94, 117–128. doi:10.1016/j.apenergy.2012.01.046
- Zhang, B., & Ng, H. D. (2015). Explosion behavior of methane - dimethyl ether / air mixtures. *25th ICDERS – August 2-7, 2015 - Leeds*, 1–6.
- Zhao, H. (2010). *Advanced Direct Injection Combustion Engine Technologies and Development - Volume 1: Gasoline and Gas Engines*. doi:10.1533/9781845697457
- Zheng, Z., Yue, L., Liu, H., Zhu, Y., Zhong, X., & Yao, M. (2015). Effect of two-stage injection on combustion and emissions under high EGR rate on a diesel engine by fueling blends of diesel/gasoline, diesel/n-butanol, diesel/gasoline/n-butanol and pure diesel. *Energy Conversion and Management*, 90(X), 1–11. doi:10.1016/j.enconman.2014.11.011
- Zhi Wang et al. (2015). Experimental study of microwave resonance plasma ignition of methane-air mixture in a constant volume cylinder. *Combustion and Flame*, 162(6), 2561–2568. doi:10.1016/j.combustflame.2015.03.004

Table des Figures (I)

FIGURE I. 1 : TRIANGLE DU FEU	11
FIGURE I. 2 : DIAGRAMME D'OSTWALD (ROMP, 1937)	12
FIGURE I. 3 : CONFIGURATION DE L'INJECTION INDIRECTE. (REIF, 2014)	16
FIGURE I. 4 : CONFIGURATION DE L'INJECTION DIRECTE(REIF, 2014)	16
FIGURE I. 5 : MOTEURS D'HELICOPTERES ET LEURS SCHEMAS DE FONCTIONNEMENT (A : MOTEUR ARRIEL 2C AVEC B : TURBINE LIBRE LIAISON EXTERNE) (C : ARRIUS 2B2 AVEC D : TURBINE LIBRE LIAISON CENTRALE).....	17
FIGURE I. 6 : EVOLUTION DES PROPULSEURS D'AVIONS (A : MOTEUR A PISTONS MERLIN. (ROLLS-ROYCE). B : TURBO- PROPULSEUR. C : TURBO REACTEUR MONO FLUX. D : TURBO FAN (DOUBLE FLUX). E : RAMJET. F : GEOMETRIES DE RAMJET ET DE SCRAMJET	18
FIGURE I. 7 : EVOLUTION DES MOTEURS D'AVION ET LEURS LIMITES EN TERMES D'ALTITUDE ET NOMBRE DE MACH	19
FIGURE I. 8 : MOTEURS FUSEES (SOLIDROCKETMOTOR.SVG).....	20
FIGURE I. 9 : SCHEMA DU CYCLE D'EFFET DE SERRE (HTTP://IMPACT-EFFET-DE-SERRE.BLOGSPOT.FR/)	21
FIGURE I. 10 : NORMES RESTRICTIVES A TRAVERS LE MONDE (REIF, 2014)	23
FIGURE I. 11 : SOURCES DE PRODUCTION TOTALE BRUTE D'ELECTRICITE EN FRANCE	24

FIGURE I. 12 : EMISSIONS MOYENNES EN CO ₂ DES VOITURES ENREGISTREES EN 2011 EN FONCTION DE LA MOYENNE DE LEURS POIDS POUR CHAQUE CONSTRUCTEUR (LORELEI, 2013)	26
FIGURE I. 13 : SCHEMA D'UN SYSTEME EGR DANS UN MOTEUR SIMPLE SANS TURBO	27
FIGURE I. 14 : CONFIGURATION DE DEUX VANNES EGR VEHICULE PARTICULIER (A) ET VANNE POUR MOTEUR MARITIME (B) (COURTESY OF ALFA LAVAL AALBORG)	27
FIGURE I. 15 : CONFIGURATION D'UN TURBOCOMPRESSEUR DES VEHICULES COMMERCIALISES (REIF, 2004)	28
FIGURE I. 16 : SCHEMA D'UN SYSTEME TURBOCOMPRESSE COUPLE A L'EGR BP	29
FIGURE I. 17: SYSTEME DE STOCKAGE CATALYTIQUE DES NOX (NSC)	33
FIGURE I. 18 : REDUCTION CATALYTIQUE SELECTIVE DES NOX (SCR) :	34
FIGURE I. 19: PRINCIPE DE CIRCULATION DES GAZ D'ECHAPPEMENT DANS UN FILTRE A PARTICULE	36
FIGURE I. 20 : A : TEMPERATURE MINIMALE D'AUTO INFLAMMATION EN FONCTION DU NOMBRE D'ATOMES DE CARBONE(BOND, 1991).B : EFFET DU VOLUME SUR LA TEMPERATURE D'AUTO INFLAMMATION (MANNAN, 2012)....	39
FIGURE I. 21 : BOUGIE D'ALLUMAGES CONVENTIONNELLE ET SES COMPOSANTS (TRAPY, 2013).....	40
FIGURE I. 22 : GEOMETRIES USUELLES DES BOUGIES D'ALLUMAGE ET LES DIFFERENTS CONCEPTS D'ECLATEMENT	41
FIGURE I. 23 : SIGNAL DE TENSION ET DE COURANT MONTRANT LES ETAPES DE CREATION D'UN ARC ELECTRONIQUE	42
FIGURE I. 24 : (A) PARAMETRES DU PLASMA SUR LA PHASE DE CLAQUAGE A 300 K, 1 BAR, ET G=1 MM. DUREE DE COURANT DE CLAQUAGE: 10 NSEC. ORIGINE DE L'ECHELLE DE TEMPS ARBITRAIRE. E _{el} L'ENERGIE ELECTRIQUE FOURNIE AUX ELECTRODES; T _e LA TEMPERATURE DES ELECTRONS ; T _G TEMPERATURE DE GAZ, N _e : DENSITE ELECTRONIQUE ; P SURPRESSIONS ; D : DIAMETRE DU CANAL PLASMA (B). DISTRIBUTION TEMPORELLE DES APPROVISIONNEMENTS EN ENERGIE ELECTRIQUE DANS UN PLASMA DE CLAQUAGE DU POTENTIEL ELECTRIQUE A L'ENERGIE THERMIQUE (HILLIARD, 1984).....	44
FIGURE I. 25 : PROFIL RADIAL DES TEMPERATURES DES DIFFERENTES PHASES :	46
FIGURE I. 26 : DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE TAKITA ET AL 2007	47
FIGURE I. 27 : SCHEMA SIMPLIFIE D'UNE TORCHE PLASMA	48
FIGURE I. 28 : COMPARAISON ENTRE L'ALLUMAGE PAR BOUGIE ELECTRIQUE ET L'ALLUMAGE PAR DECHARGE MICROONDE EN RESONANCE (ZHI WANG ET AL, 2015).....	48
FIGURE I. 29 : CLASSIFICATION DES ONDES EN TERMES DE FREQUENCES ET DE LONGUEUR D'ONDE (GOLIO, 2001)	49
FIGURE I. 30 : DECHARGE ELECTRIQUE ENTRE ELECTRODES COUPLEE A UN CLAQUAGE LASER RESONANT (STEVEN F. ADAMS, 2010).....	51
FIGURE I. 31: QUELQUES FORMES GEOMETRIQUES D'UN FRONT DE FLAMME LAMINAIRE.	54
FIGURE I. 32 : SCHEMATISATION PHYSIQUE ET THERMODYNAMIQUE D'UNE FLAMME DE PRE MELANGE.....	55
FIGURE I. 33 : MODELE ANALYTIQUE DE CALCUL DE VITESSE DE FLAMME POUR L'HYDROGENE (LES RONDS REPRESENTENT LES RESULTATS DE SIMULATIONS NUMERIQUES)(J. GÖTTGENS ET AL, 1992).	57
FIGURE I. 34 : COMPARAISON ENTRE LE MODELE DE BRADLEY ET LES SIMULATIONS PAR CHEMKIN-PREMIX.	58
FIGURE I. 35 : LIMITES D'INFLAMMABILITES INFERIEURES ET SUPERIEURES D'UN COMBUSTIBLE EN FONCTION DE LA CONCENTRATION ET DE LA TEMPERATURE	60
FIGURE I. 36 : (A) ENERGIE MINIMALE D'INFLAMMATION POUR QUELQUES ALCANES (ECKHOFF, 2005) ;(B) EFFET DES BANDES DE LIAISON ET DU NOMBRE D'ATOMES DE CARBONE SUR LA MIE (BOND, 1991).....	63
FIGURE I. 37 : SCHEMATISATION DU RAYON CRITIQUE.....	63
FIGURE I. 38 : (A) EVOLUTION DU RAYON CRITIQUE EQUIVALENT DU FOYER D'ALLUMAGE; (B) PREDICTION DE LA TEMPERATURE DU FOYER D'ALLUMAGE REUSSI ET NON REUSSI.	64
FIGURE I. 39: SCHEMATISATION PHYSIQUE ET THERMODYNAMIQUE D'UNE FLAMME DE DIFFUSION.	65
FIGURE I. 40 : PHOTOS MONTRANT L'EFFET D'UNE MESURE INTRUSIVE DE TEMPERATURE PAR THERMOCOUPLE SUR UNE FLAMME DE PRE MELANGE(A) FLAMME NON PERTURBEE (B) FLAMME PERTURBEE (ALDEN, 2006).....	66
FIGURE I. 41 : VISUALISATION DIRECTE PAR CAMERA : (A) ACCES DIRECT : COMBUSTION D'UNE ALLUMETTE (DYNAMICS, 2016) (B) ACCES INDIRECT : SCHEMA DE VISUALISATION POUR UN BANC D'ESSAIS MOTEUR OPTIQUE (X. MA, 2010) ; (B1) PHASE D'INJECTION DANS MOTEUR CHAUD DIESEL;(B2) FILM DE CARBURANT PROCHE DE PAROI ET DEPART DE FLAMME VISUALISATION PAR LA TECHNIQUE PRESENTEE EN (B) SOURCE DE (B1 ET B2 :(R. TEICHMANN ET AL, 2012))	67
FIGURE I. 42 : PRINCIPE DE LA PLIF (BENTALEB, 2012)	68

FIGURE I. 43 : PHYSIQUE D'EXCITATION ET DE COLLECTION LIF SUR LE RADICAL OH.....	69
FIGURE I. 44 : PLIF-OH DANS LE CAS DES MELANGES PAUVRES CO/H ₂ /AIR : (A) VISUALISATION DIRECTE PAR CCD CAMERA.....	69
FIGURE I. 45 : SCHEMA EXPERIMENTAL DE LA 2C-LII	71
FIGURE I. 46 : COMPARAISON ENTRE LES TROIS METHODES DE VISUALISATION (MERCER, 2003).....	71
FIGURE I. 47 : QUELQUES SCHEMAS EXPERIMENTAUX DE LA METHODE DE GRADIENT (PIERRE SLANGEN, 2012).	72
FIGURE I. 48 : PHOTOGRAPHIES SCHLIEREN : (A) CONVECTION NATURELLE AUTOUR DU CORPS HUMAIN; (B) STRATIFICATION THERMIQUE; (C) FLAMME TURBULENTE ET COLONNES DE CONVECTIONS ;(D) ONDES DE CHOC D'UN TIR DE BALLE (SETTLES, 1985).	72
FIGURE I. 49 : EMISSIONS CHROMATIQUES DES LAMPES DE LABORATOIRE (AR, KR, NE, HG).	73
FIGURE I. 50 : SCHEMA DE LA TECHNIQUE LIBS (DIANE M WONG ET AL, 2010).....	73
FIGURE I. 51 : EXEMPLES DE QUELQUES DETECTEURS PHOTOMETRIQUES.	77
FIGURE I. 52 : PRINCIPE DE LA CHROMATOGRAPHIE PHASE GAZEUSE ET LA SPECTROSCOPIE DE MASSE COUPLEE GC.....	79

Table des Tableaux (I)

TABEAU I. 1 :EVOLUTION DES SYSTEMES D'INJECTION DANS LES MOTEURS ESSENCE (1967 A 1987)(REIF, 2014).....	15
TABEAU I. 2 : GAZ A EFFET DE SERRE ET CONTRIBUTION DANS LE RECHAUFFEMENT CLIMATIQUE.(SHER, 1998)	22
TABEAU I. 3:EXEMPLE DE DIRECTIVES ET LEURS OBJECTIFS (JOASSARD, IRENEE, 2016).....	24
TABEAU I. 4: ENERGIE FINALE PAR MODE DE TRANSPORT EN 2005(FAESSLER, JEROME, 2012).....	25
TABEAU I. 5: NORMES EURO POUR LES VEHICULES ESSENCE ET DIESEL LEGERS (PIERRE ALAIN DE SMEDT, 2008)	25
TABEAU I. 6 : ACTIVITE PREFERENTIELLE DES METAUX PRECIEUX VIS-A-VIS DES HC, CO ET NO _x	31
TABEAU I. 7 : QUANTIFICATION DES PERTES PENDANT LES DIFFERENTES PHASES DE LA DECHARGE ELECTRIQUE (HILLIARD, 1984).	45
TABEAU I. 8 : LONGUEUR D'ONDE DE PHOTODISSOCIATION (LAVID & STEVENS, 1985)	52
TABEAU I. 9 : COEFFICIENTS D'APPROXIMATION DE L' EQ 14 (J. GÖTTGENS ET AL, 1992)	57
TABEAU I. 10 : LIMITES D'INFLAMMABILITE DE QUELQUES HYDROCARBURES (ESPOSITO, 1995)	61
TABEAU I. 11 : EXCITATION A DEUX PHOTONS (TWO-PHOTON EXITATION LIF), LES ESPECES, LES LONGUEURS D'ONDES D'EXCITATION ET LES LONGUEURS D'ONDES D'EMISSION (ALDEN, 2006)(ALDÉN, 1999).	68

CHAPITRE II

ALLUMAGE PAR FOCALISATION LASER ET PLASMA

TABLE DES MATIERES (II)

<i>Avant-propos</i>	93
<i>1 Composants optiques</i>	94
1.1 <i>Miroirs</i>	95
1.2 <i>Lentilles</i>	96
1.3 <i>Aberrations optiques</i>	96
1.3.1 <i>Aberrations géométriques</i>	98
1.3.2 <i>Aberrations chromatiques</i>	98
<i>2 Laser</i>	98
2.1 <i>Modèle mathématique des pulses lasers ultracourts</i>	101
2.2 <i>Profil spatial du faisceau laser</i>	102
2.3 <i>Caractéristiques d'un faisceau laser</i>	102
2.4 <i>Focalisation d'un faisceau laser Gaussien</i>	104
2.5 <i>Volume focal</i>	105
2.6 <i>Effet des grandeurs physiques sur l'irradiance focale (λ, M^2, f, d)</i>	106
<i>3 Interaction champ laser intense - matière</i>	108
3.1 <i>Ablation laser (solides et liquides)</i>	109
3.2 <i>Claquage laser d'un gaz</i>	110
3.3 <i>Processus et physique d'un claquage laser</i>	111
3.3.1 <i>Régime impulsionnel</i>	112
3.3.2 <i>Transition plasma</i>	118
3.3.3 <i>Régime de relaxation (régime thermique)</i>	119
3.4 <i>Pertes d'énergie pendant les différents régimes (L_e)</i>	120
<i>4 Génération de l'onde de choc et expansion</i>	123
4.1 <i>Taille du plasma créé par laser (onde plasma)</i>	125
4.2 <i>Détachement de l'onde hydrodynamique</i>	126
4.3 <i>Effondrement du choc et allumage</i>	128
<i>5 Quelques effets influençant le claquage et l'expansion</i>	132
5.1 <i>Effet de la nature des mélanges (gaz/liquide)</i>	132

5.2	<i>Effet de l'énergie déposée sur l'expansion du choc</i>	133
5.3	<i>Délai de claquage, effet de la température et de la distance focale</i>	134
5.4	<i>Effets du type de gaz et de la pression sur la vitesse d'expansion</i>	135
5.5	<i>Observation d'un claquage laser par spectroscopie d'émission</i>	135
5.6	<i>Influence de la durée de l'impulsion laser</i>	137
5.7	<i>Effet de la pression sur le profil de pulse transmis</i>	138
6	<i>Conclusion</i>	140
	<i>Bibliographie (II)</i>	141
	<i>Table des figures (II)</i>	145
	<i>Table des tableaux (II)</i>	146

Avant-propos

L'allumage des combustibles grâce à la haute puissance des impulsions laser pourrait être une solution pour accroître l'efficacité et la puissance des moteurs à combustion interne. Les systèmes d'allumage traditionnels approchent rapidement de leurs limites et la technologie utilisée n'a pas vraiment évolué (bougie d'allumage). Pour éviter cela, les fabricants de moteurs à combustion interne cherchent de nouvelles technologies plus adaptées. Les systèmes d'allumage par claquage laser (LISI) peuvent être un moyen fiable pour atteindre cet objectif. Sachant aussi que la phase d'allumage affecte fortement la formation de polluants et le rendement de combustion, le fait de corriger et d'améliorer les phases d'allumage est crucial. Si l'on considère la même échelle de temps d'amorçage (pulse électrique et pulse laser) entre le système d'allumage traditionnel électrique et le système d'allumage laser, la comparaison ci-dessous montre les différences et les avantages entre les deux systèmes.

Inconvénients de l'allumage par bougie :

- Non flexibilité de position de la bougie d'allumage,
- Pertes de chaleurs immenses à travers les parois,
- Impossible d'allumer à l'intérieur du jet de carburant (moteur noyé),
- Difficulté de fonctionnement avec des mélanges pauvres,
- Dégradation des électrodes vers les régimes de haute pression et de température,
- Vitesse de flamme faible par l'effet intrusif de la bougie,
- Allumage multipoints impossible,
- Turbulence nécessaire dans la chambre de combustion.

Avantages de l'allumage par bougie :

- Système avec une technologie bien connue qui n'est pas cher.

Avantages de l'allumage laser :

- Possibilité de fonctionnement avec des mélanges pauvres,
- Possibilité d'allumer dans les jets du carburant,
- Fonctionnement à haute pression et à haute température,
- Fonctionnement avec des taux de compression élevés,
- Propagation de la flamme très rapide car allumage loin des parois,
- Efficacités considérable par l'allumage multipoint,
- Propriété d'auto-nettoyage des fenêtres optiques en éliminant les dépôts de carbone,
- Contrôle de l'énergie déposée.

Inconvénients de l'allumage par laser :

- Système restant très couteux pour une utilisation standard sur des véhicules terrestres mais envisageable pour des applications aéronautiques à haute altitude.

Plusieurs travaux de recherches ont assuré la faisabilité et l'intégration de systèmes d'allumage laser dans le cas des moteurs à combustion interne, à l'exemple des travaux de TERNEL

(TERNEL, 2006), El-Rabii (El-rabii, 2004), Duarte (Duarte, 2010) ou encore des travaux de Guillaume Tison qui portent sur l'étude, la réalisation et les applications d'une chaîne amplificatrice laser compacte pour l'allumage de turbomoteurs (TISON, 2013)...

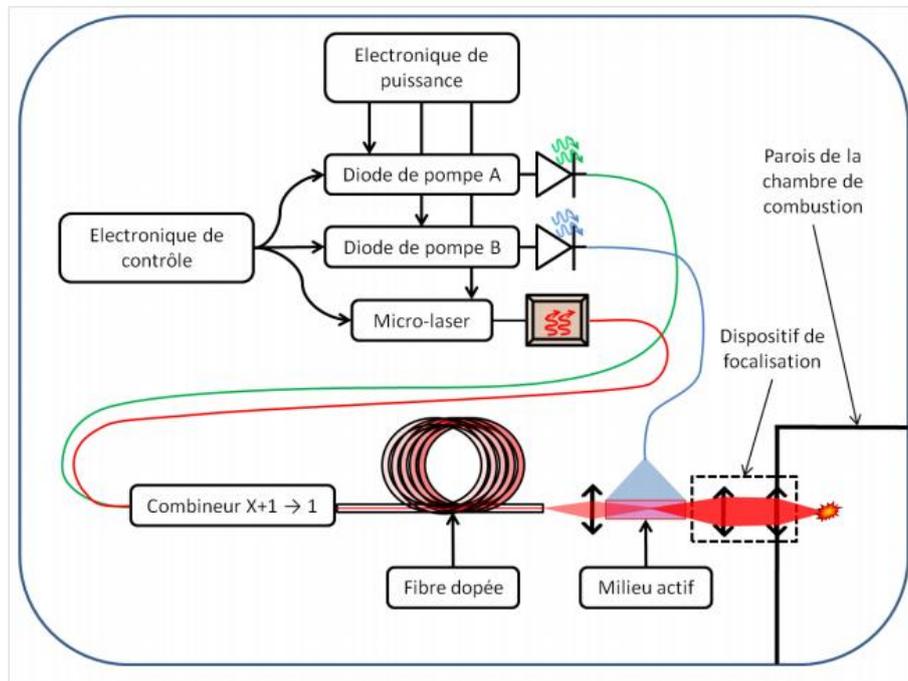


Figure II. 1: Architecture de la solution laser (LISI) apportée par TISON (TISON, 2013).

Tous ces travaux montrent que cette technique est prometteuse. Ce chapitre présente quelques définitions fondamentales associées aux lasers et à quelques dispositifs optiques (focalisation). Le claquage laser et l'expansion du plasma induit par focalisation seront présentés dans ce chapitre à la fois dans le cas d'un plasma non inducteur et inducteur d'allumage. Ce dernier, i.e. le plasma chaud, se forme souvent lors d'un claquage si l'énergie est suffisante et déclenche le processus de combustion auto-propagée dans le cas des mélanges réactifs au sein des chambres de combustion.

1 Composants optiques

Toutes les surfaces réfractantes à base de dioptries ou réfléchissantes catadioptries permettant la transmission et l'orientation de la lumière sont des composants optiques, à l'exemple des miroirs et lentilles.

Le principe de transmission de la lumière dans un composant optique est représenté sur la Figure II. 2 où n_1 et n_2 sont respectivement les indices de réfraction des milieux où les rayonnements incident et réfracté se propagent. L'indice de réfraction représente le rapport de la vitesse dans le vide par rapport à celle du milieu considéré (verre, eau, huile...). Dans le cas

de deux milieux différents *Figure II. 2*, la réfraction est régie par la loi de Descartes (René Descartes 1596-1650) appelée aussi loi de Snell (Willebrord Snel Van Royen, 1580-1626).

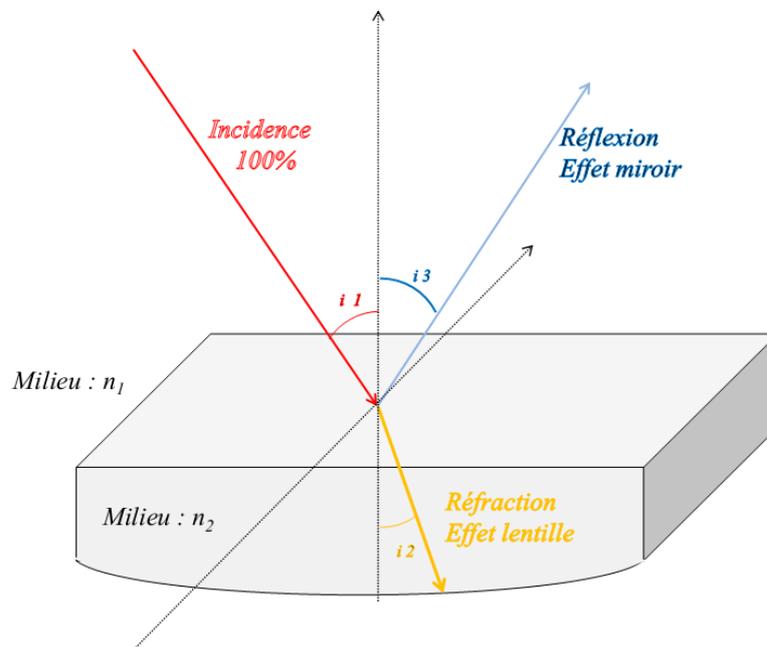


Figure II. 2: Transmission de la lumière par réflexion et par réfraction

$$\frac{n_2}{n_1} = \frac{\sin(i_1)}{\sin(i_2)} \quad (\text{EQ II. 1})$$

L'indice de réfraction d'un milieu lui-même dépend directement de la longueur d'onde le traversant, aussi bien que de plusieurs paramètres comme la pression et la température (Bach & Neuroth, 1995).

L'intensité du rayon incident est la somme des intensités de rayonnement réfléchi (bleu sur la figure) et réfracté (orange sur la figure).

1.1 Miroirs

Le principe d'un miroir se base sur la réflexion de la lumière. Toute surface capable de réfléchir la totalité de la lumière (souvent grâce à des dépôts métalliques) est un miroir dont l'angle d'incidence est égal à l'angle de réflexion : $i_1 = i_3$ quelle que soit l'incidence de celle-ci (la lumière). On trouve plusieurs types de miroirs selon leurs géométries. Les géométries les plus intéressantes sont : les miroirs plans ; les miroirs concaves convergeant pour focaliser ; les miroirs convexes pour diverger le rayonnement (Southall, 1918).

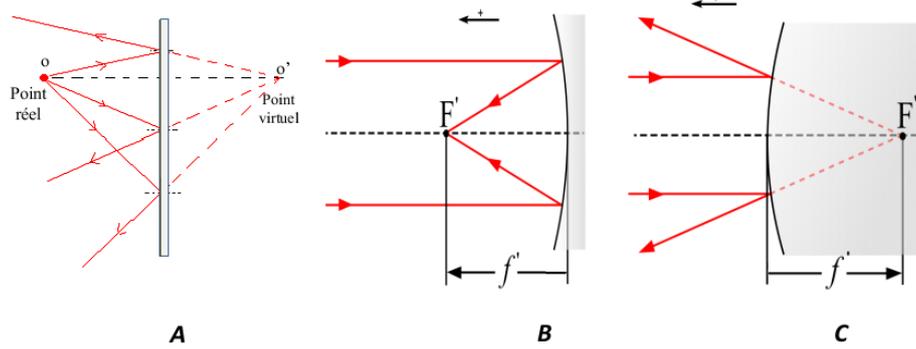


Figure II. 3: Géométrie de miroirs (A) miroir plan, (B) miroir concave, (C) Miroir convexe

1.2 Lentilles

Une lentille est formée de l'association de plusieurs dioptres d'indice de réfraction différents. En d'autres termes, elle représente un milieu homogène, isotrope, transparent, dont au moins l'une des faces n'est pas plane. La première caractéristique d'une lentille est sa distance focale. Les lentilles peuvent être aussi caractérisées par leurs formes, i.e. leurs cambrures. On trouve deux types de lentilles : les lentilles convergentes et les lentilles divergentes (Milton Laikin, 2006).

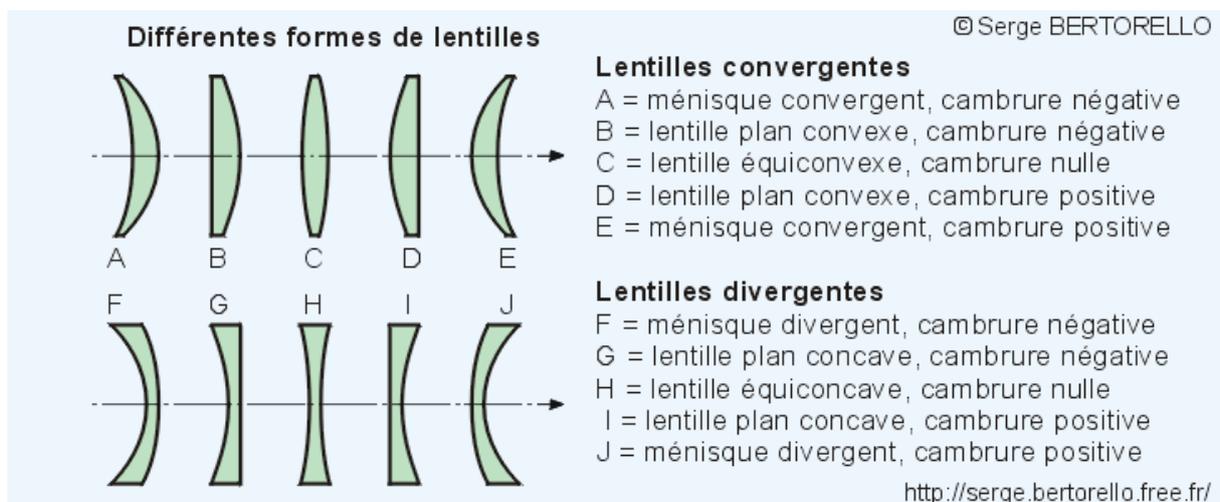


Figure II. 4: Différents types et cambrures de lentilles

1.3 Aberrations optiques

Les aberrations sont des défauts appartenant à des systèmes optiques (sauf pour les miroirs où l'on parle de réflexion). Elles montrent le fait que les rayons lumineux ne convergent pas vers un point prédit par l'optique géométrique. Ces dernières sont classées en deux catégories principales : les aberrations chromatiques responsables d'erreurs colorimétriques et les

aberrations géométriques qui ont un impact sur la résolution du système (Gerald F. Marshall, 2004; Steen, 2003).

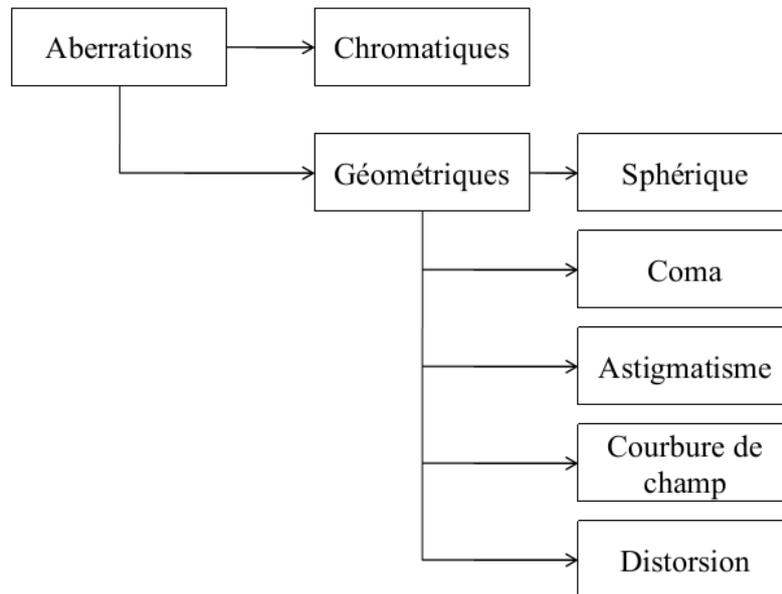


Figure II. 5 : Différents aberrations optiques

Un exemple d'aberrations optiques peut être constaté dans la Figure II. 6 qui présente une forme d'un volume focal déformé (Chen, 2000).

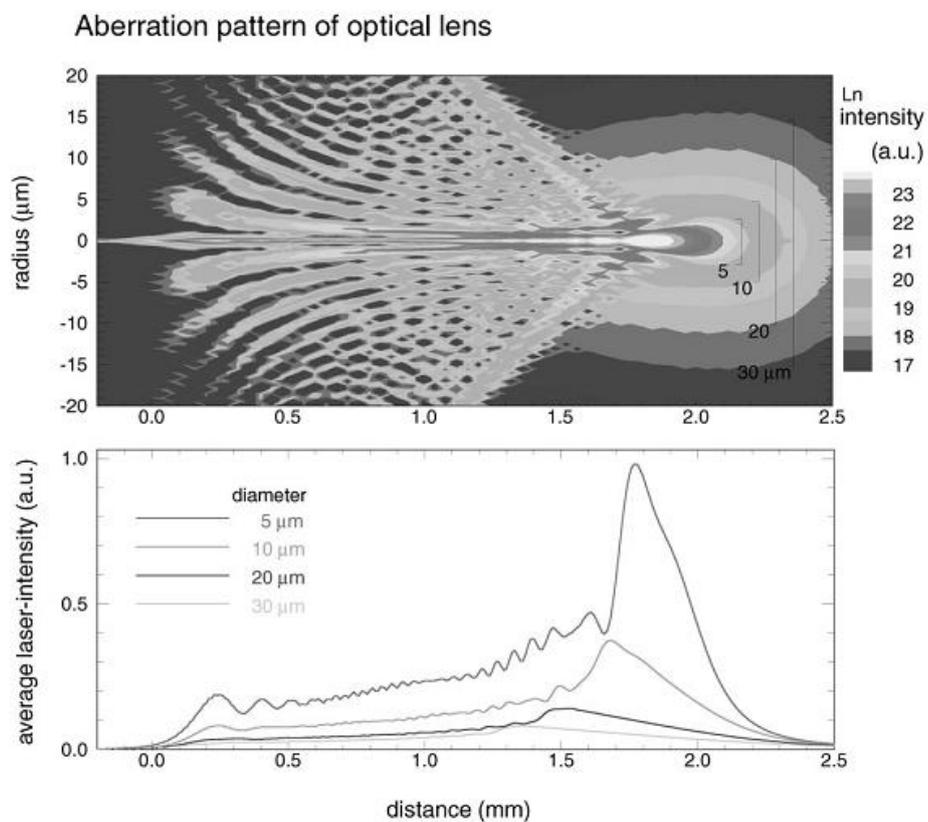


Figure II. 6 : Influence des aberrations optiques sur la forme du volume focal (Chen, 2000).

1.3.1 Aberrations géométriques

Ce genre d'aberrations est dû à l'écart des conditions de Gauss. En effet, au fur à mesure que les rayons s'éloignent de l'axe optique, l'optique devient astigmatique. Un faisceau parallèle venant d'une source lumineuse à l'infini ne donnera pas un point ponctuel sur le plan focal, mais une tache déformée.

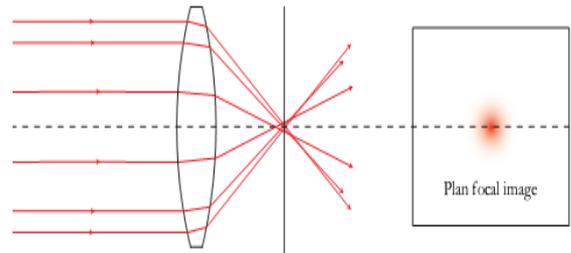


Figure II. 7: Aberration géométrique

1.3.2 Aberrations chromatiques

Les matériaux optiques ont un indice de réfraction qui dépend de la longueur d'onde. La loi de variation de ce dernier en fonction de λ est connue sous le nom de loi de Cauchy.

$$n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} \quad (\text{EQ II.2})$$

A et B sont des constantes qui dépendent du milieu. Dans ce cas, les longueurs d'ondes ne suivent pas le même trajet, ce qui donne un foyer à chaque longueur d'onde traversant l'optique.

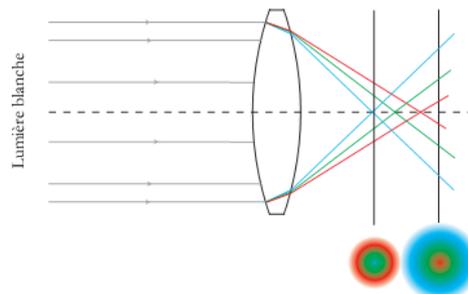


Figure II. 8 : Aberration chromatique

Notons que la plupart des aberrations peuvent être corrigées par d'autres dispositifs optiques (Michael Bass, 2004).

2 Laser

Un laser est un dispositif amplificateur et condenseur de la lumière. Le faisceau induit constitue un rayonnement cohérent des paquets de photons intenses. Ces derniers sont monochromatiques unidirectionnels. Le premier laser est apparu pendant les années 1960 en Californie. Il s'agit d'un laser rubis fonctionnant en impulsion dans le rouge (Maiman, 1960).

Le principe de fonctionnement d'une cavité optique appelée aussi résonateur optique est représenté sur *Figure II. 9*

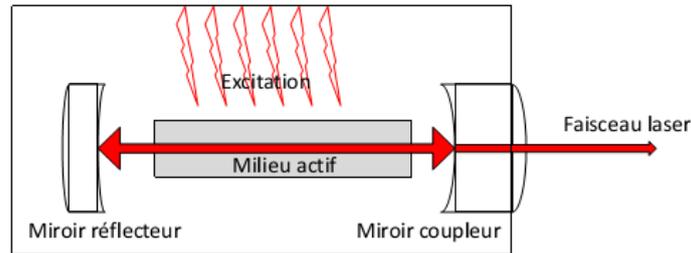


Figure II. 9: Fonctionnement d'une cavité laser

À l'intérieur de cette cavité, certains photons lumineux sont susceptibles de rester confinés entre deux miroirs réfléchissants. La cavité est indispensable au laser pour que la lumière se condense et s'amplifie grâce au milieu amplificateur (milieu actif).

L'intensité de la lumière après un aller-retour dans la cavité peut être exprimée à partir de l'équation suivante :

$$I(2L) = R_1 R_2 I_0 \exp(G2L) \quad (\text{EQ II. 3})$$

L est la longueur de la cavité laser

R_1 et R_2 sont les réflectances des deux miroirs

Afin de maintenir l'amplification de l'émission stimulée du milieu actif, il est nécessaire que $I(2L) > I_0$. Ce qui permet de remonter à la condition pour l'émission laser.

$$G \geq \frac{1}{2L} \ln(R_1 R_2) \quad (\text{EQ II. 4})$$

Cette équation est utilisée pour dimensionner les cavités laser (résonateurs). La réflexion du miroir de sortie peut être calculée pour une longueur déterminée du milieu actif. Par exemple, si la longueur du tube laser est de 150 mm et le facteur gain est de 0.0005 cm^{-1} , si encore la réflexion de $R_1=100\%$, la réflexion du R_2 doit être égale ou supérieure à 98.5% afin de maintenir l'émission laser (Toru Yoshizawa, 2009).

On trouve plusieurs types de lasers, les familles principales sont les suivantes :

- **Lasers chimiques** : à l'exemple des lasers à fluorure d'hydrogène dont la longueur d'onde est de 2,7 à 2,9 μm sa transmission dans l'atmosphère est $< 80 \%$. Sa source d'excitation est une réaction chimique d'un jet d'éthylène et de tri-fluorure d'azote (NF_3) enflammé.
- **Lasers à excimère ou à exciplexe** : ce sont des lasers ultraviolets bien utilisés dans la chirurgie oculaire et dans l'industrie des semi-conducteurs. Les lasers sont constitués d'un gaz rare ou d'un gaz rare mélangé avec un halogène. Les constituants utilisés sont comme suivant dans les deux cas :

Excimère : Ar_2^* (126 nm), Kr_2^* (146 nm), Xe_2^* (172-175 nm)

Exciplexe : NeF^* (108 nm), ArF^* (193 nm), KrF^* (248 nm), XeF^* (351 nm), $KrCl^*$ (222 nm), $ArCl^*$ (308 nm), $XeBr^*$ (282 nm),

- **Lasers à semi-conducteurs** : laser à base de diode opérant à 0,4-20 μm , selon la partie active du matériau utilisé. La source d'excitation dans ce cas est le courant électrique. Ils peuvent aussi être utilisés comme source d'excitation pour d'autres lasers.
- **Lasers Dye** : à l'exemple du laser stilbène qui fonctionne sur une longueur d'onde de 390-435 nm, le cas du laser (coumarine 102) 460-515 nm. Et encore le cas des rhodamines 6G qui fonctionnent à 570-640 nm. La source d'excitation représente souvent un autre laser ou une lampe flash. Ce type de lasers est largement utilisé dans la spectroscopie.
- **Lasers à solides** : les plus utilisés sont les lasers ND-YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) opérant à 1064 nm, la source d'excitation est une lampe flash ou une diode laser. Ce type de laser sera utilisé dans le cas de notre étude pour l'allumage par claquage de milieux réactifs. Ils peuvent aussi être utilisés comme source d'excitation pour d'autres lasers (associé avec un doubleur de fréquence pour produire un faisceau vert opérant à 532 nm). C'est un des lasers de haute puissance les plus connus. On l'utilise en général en mode pulsé (avec des pulses de l'ordre de quelques nanosecondes).

Le domaine d'application en général est très varié, quelques applications sont mentionnées dans la *Figure II. 10* en fonction de l'irradiance appliquée et du temps d'interaction laser matière.

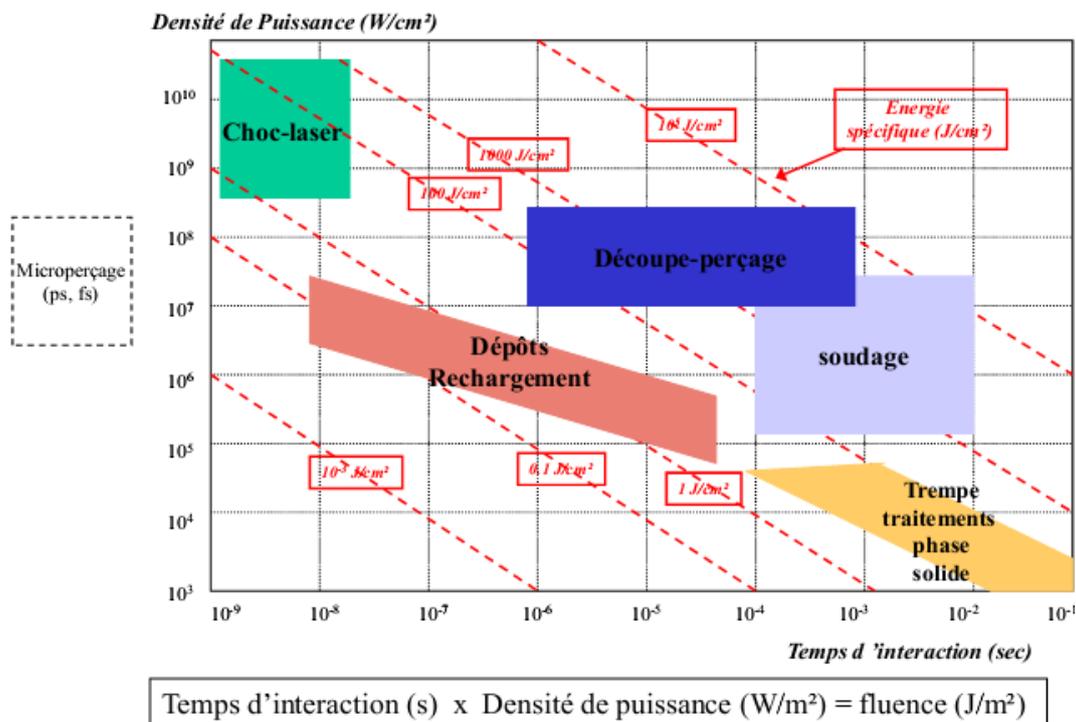


Figure II. 10 : Domaine d'application des lasers (P.Peyre, 2014)

2.1 Modèle mathématique des pulses lasers ultracourts

La lumière est un phénomène physique qui transporte de l'énergie sans un transport de matière. Celle-ci est régie comme étant une onde électromagnétique qui se propage à travers un milieu donné, les propriétés du champ électromagnétique peuvent être décrites par les équations de Maxwell bien connues à partir desquelles l'équation d'onde scalaire sur le champ électrique \vec{E} peut être obtenue dans le cas de quelques hypothèses (propagation dans le vide où le voisinage est neutre, pas de charge, pas de courant).

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E}(x, y, z, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(x, y, z, t)}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}(x, y, z, t)}{\partial t^2} \quad (\text{EQ II. 5})$$

Où μ_0 est la perméabilité magnétique de milieu, le terme source contient la polarisation \vec{P} qui décrit l'influence du milieu sur le champ \vec{E} ainsi que la réponse du milieu. La polarisation est décomposée en deux parties $\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}$ une partie linéaire représentant la réponse du milieu à l'exemple de la diffraction, dispersion, réfraction... et une autre partie non linéaire comptant l'absorption, le gain et tous les procès Raman (Diels & Rudolph, 2006). Souvent la partie \vec{P} n'est pas prise en compte pour simplifier (équations différentielles compliquées).

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E}(x, y, z, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(x, y, z, t)}{\partial t^2} \quad (\text{EQ II. 6})$$

(x, y) : coordonnées cartésiennes du plan de propagation, z : direction de propagation, t : variable temps et c : vitesse de la lumière dans le milieu.

Par conséquent, le modèle mathématique pris pour la propagation d'un rayonnement laser doit être une solution de cette équation. Dans ces conditions, l'onde lumineuse peut être entièrement caractérisée par la connaissance de son champ électrique d'amplitude $\vec{E}(x, y, z, t)$ désigné par l'équation suivante :

$$E(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \tilde{u}(x, y, z, t) \tilde{\mathcal{E}}(t) \exp[i(\omega t - kz)] \quad (\text{EQ II. 7})$$

Ici k est le nombre d'onde, $k = 2\pi n/\lambda$, n est l'indice de réfraction du milieu et ω est la fréquence porteuse ou la pulsation. Le scalaire $\tilde{u}(x, y, z, t)$ représente le profil transversal du faisceau supposé varier très lentement avec z et $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ est l'enveloppe complexe variant lentement. Les oscillations rapides suivant z du champ électrique sont décrites par le terme exponentiel. Le terme contre propagation est omis pour plus de simplicité.

2.2 Profil spatial du faisceau laser

Dans le cas d'un profil Gaussien, la distribution spatiale de la fonction scalaire $\tilde{u}(x, y, z,)$ prend la forme suivante :

$$\tilde{u}(x, y, z,)=\frac{\mu_0}{q(z)}\exp\left(-ik\frac{x^2+y^2}{2q(z)}\right) \quad (\text{EQ II. 8})$$

Avec

$$\frac{1}{q(z)}=\frac{1}{R(z)}-\frac{i\lambda}{\pi w^2(z)}=\frac{1}{q_0+z} \quad (\text{EQ II. 9})$$

Dans cette équation, $R(z)$ est le rayon de courbature du front de l'onde dépendant de la direction de propagation z . $w(z)$ représente le rayon du faisceau pour 1/e de l'intensité du faisceau $I(x, y)$. $q(z)$ est le paramètre complexe du faisceau. Cette quantité permet une définition spatiale complète du faisceau gaussien avec la relation $q(z)=q_0+z$. En prenant l'origine de l'axe de propagation, $z=0$ à la position correspondant au rayon $w(z)=w_0$ on aura $R(z)=\infty$. Cela signifie qu'à cette position le front d'onde est un plan perpendiculaire à l'axe de propagation z . Le paramètre complexe de faisceau s'écrit comme suivant :

$$q(0)=q_0=\frac{\pi w_0^2(z)}{i\lambda} \quad (\text{EQ II. 10})$$

En remplaçant q_0 dans l'équation précédente (EQ II. 9), cela nous donnera la partie réelle comme étant l'évolution du rayon de courbature du front de l'onde et la partie imaginaire l'évolution du rayon de faisceau laser au cours de sa propagation.

$$\begin{cases} R(z)=z+\frac{z_r^2}{z} \\ w(z)=w_0\sqrt{1+\frac{z^2}{z_r^2}} \end{cases} \quad (\text{EQ II. 11})$$

$z_r = \pi w_0^2 / \lambda$ représente la longueur sur laquelle le rayon du faisceau reste inférieur à $\sqrt{2}w_0$ qui définit aussi le paramètre co-focale $^2 z_r$. Pour plus d'informations sur les caractéristiques et les évolutions temporelles des pulses laser et leurs propagation, le lecteur peut se référer à ces ouvrages (Diels & Rudolph, 2006; Mauclair, 2010; Siegman, 1986).

2.3 Caractéristiques d'un faisceau laser

Le faisceau laser est caractérisé par plusieurs grandeurs à l'exemple de sa longueur d'onde qui est fonction du milieu actif émetteur, de son diamètre de sortie $d=2w_0$, de sa divergence, qui

est très faible θ (EQ II. 13), de son facteur de qualité M^2 , de sa durée d'impulsion à mi-hauteur τ_{FWHM} (FWHM : Full width at half maximum) et de sa puissance maximale P_{max} . Dans le cas des valeurs de z très élevées le rayon du faisceau peut être approximé par cette relation :

$$w(z) \cong \frac{\lambda z}{\pi w_0} \quad (\text{EQ II. 12})$$

$$\theta \cong \tan \theta \cong \frac{w(z)}{z} = \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad (\text{EQ II. 13})$$

La puissance instantanée du pulse laser est donnée par l'EQ II. 14

$$P(t) = P_{max} \exp\left(-\frac{t^2}{t_0^2}\right) \quad (\text{EQ II. 14})$$

Avec t_0 le temps caractéristique du laser pour une puissance $P = P_{max} / e$.

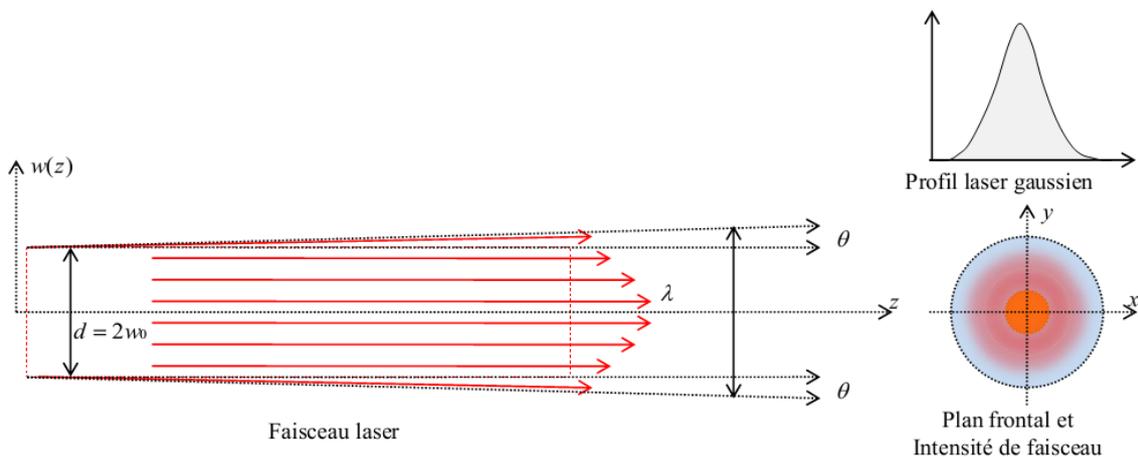


Figure II. 11: Evolution et caractéristiques d'un faisceau laser

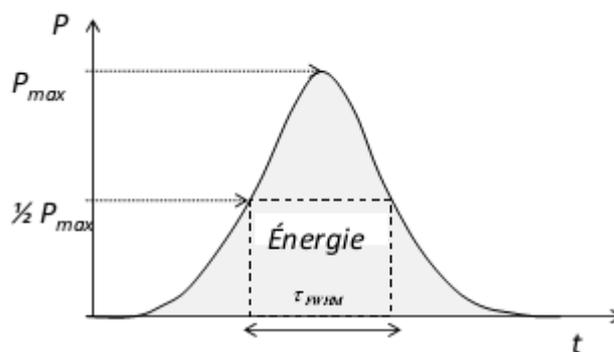


Figure II. 12 : Puissance instantanée du pulse laser $P(t)$

La durée d'impulsion à mi-hauteur τ_{FWHM} est donnée par $\tau_{FWHM} = 2\sqrt{\ln 2} t_0$. L'énergie totale du pulse laser délivrée représente l'aire de la gaussienne, elle est donnée par l'EQ II 15.

$$E_{pulse} = P_{max} t_0 \sqrt{\pi} = P_{max} \tau_{FWHM} \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \quad (\text{EQ II. 15})$$

La majorité des faisceaux n'est pas parfaitement gaussienne. Pour caractériser leurs défauts on définit le mode transverse qui correspond à la répartition de l'intensité dans une section transversale du faisceau laser. Ce dernier est quantifié par le facteur de qualité M^2 . Un faisceau laser de qualité parfaite aura une répartition dite TEM00, (TEM : Transverse Electric Magnetic). Cette répartition est appelée gaussienne, dans ce cas le facteur de qualité est $M^2 = 1$. Le facteur de forme est quantifié par l'EQ II 16 en fonction de diamètre du faisceau laser d de sa longueur d'onde λ et de sa divergence θ . (Srivastava, Wintner, & Agarwal, 2014)

$$M^2 = 0.25 \frac{\pi \theta d}{\lambda} \quad (\text{EQ II. 16})$$

A partir de ces données, on peut définir l'irradiance d'un faisceau laser comme étant sa puissance sur la surface irradiée donnée par des W/cm^2 .

$$Irradiance = \frac{P}{S} = \frac{E_{pulse}}{\tau_{FWHM} S} \quad (\text{EQ II. 17})$$

2.4 Focalisation d'un faisceau laser Gaussien

L'intérêt de la focalisation dans notre cas d'étude est de faire concentrer l'énergie d'un faisceau laser dans un plan donné. Les outils qui peuvent permettre cette concentration de la lumière sont les lentilles (réfractives ou diffractives) et les miroirs courbes (réflexion) caractérisés par leurs longueurs focales caractéristiques f (Voir Figure II. 13). Les équations de propagation dans le cas d'une focalisation restent les mêmes si on considère le cas sans les différentes pertes (Cremers & Radziemski, 2006)(Steen, 2003).

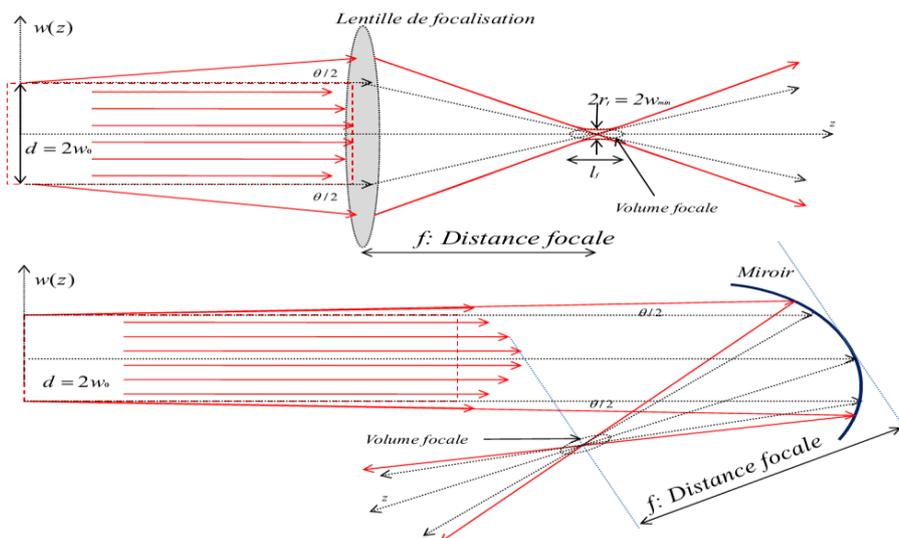
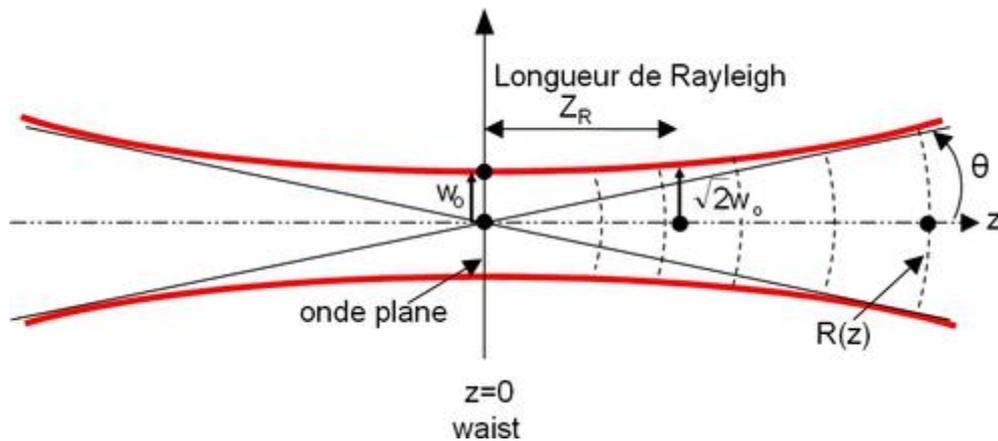


Figure II. 13: Principe de focalisation par lentille et par miroir

Cela nous donne le rayon minimum du faisceau au plan focal dans le cas où le faisceau est parfaitement gaussien (EQ II. 18).

$$w(f) = w_0 \sqrt{1 + \frac{f^2}{z_r^2}} \quad (\text{EQ II. 18})$$

Dans le cas où le faisceau n'est pas parfaitement gaussien, le rayon focal est relié au facteur de forme du faisceau laser par l'équation (EQ II. 19).



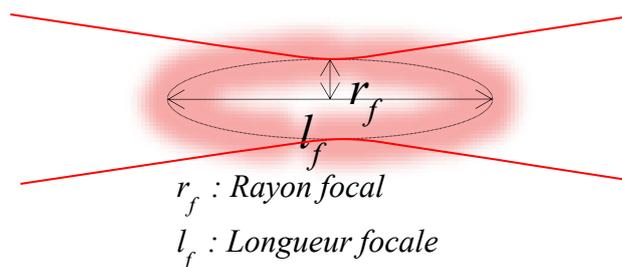
$$r_f = \frac{2\lambda f M^2}{\pi d} \quad (\text{EQ II. 19})$$

2.5 Volume focal

Dans l'hypothèse où le faisceau est cylindrique et le profil laser est de forme gaussienne, le volume focal est caractérisé par les deux relations suivantes (J. Beduneau, 2003) :

$$\begin{cases} r_f = \left(\frac{2\lambda}{\pi}\right) \left(\frac{f}{d}\right) \\ l_f = (\sqrt{2} - 1) \frac{\theta}{d} f^2. \end{cases} \quad (\text{EQ II. 20})$$

r_f est le rayon focal et l_f est la longueur du volume focal. Ainsi, ce volume dépend de la longueur d'onde, de la focale, du diamètre et de la divergence du faisceau laser. La représentation de l'EQ II. 20 est portée sur la *Figure II. 14* dans le but de montrer l'effet des paramètres f , d , M^2 et λ sur la taille du volume focal.



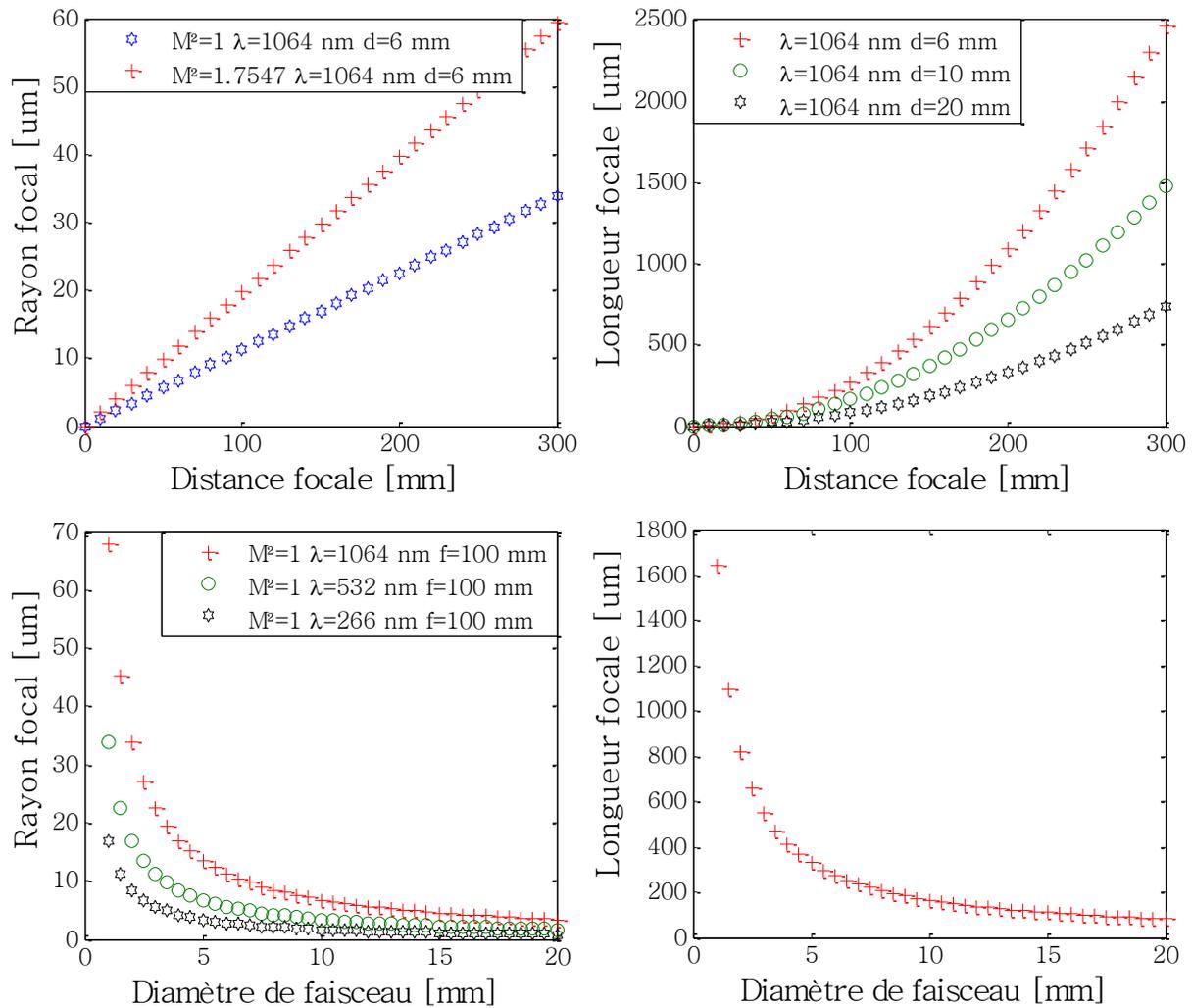


Figure II. 14 : Caractéristiques du faisceau sur la taille du volume focal (r_f et l_f)

Souvent, pour porter un choix sur une configuration géométrique on joue sur le diamètre de faisceau en utilisant un expandeur optique (lentille divergente puis lentille convergente), sur la lentille de focalisation en portant un choix sur la distance focale et la longueur d'onde par l'utilisation d'un doubleur de fréquences ou sur le choix d'un autre laser.

2.6 Effet des grandeurs physiques sur l'irradiance focale (λ, M^2, f, d)

La caractéristique géométrique d'un volume focal se traduit sur la valeur de l'irradiance du faisceau laser. Cette dernière a un lien direct sur la capacité de pouvoir former un plasma de claquage dans les gaz ou dans les solides pour former un plasma d'ablation. La Figure II. 15, montre l'effet des caractéristiques optiques sur les valeurs de l'irradiance pour une énergie d'un pulse de $E_{laser} = 20$ mJ et temps de pulse de 4.48 ns. Le champ électrique et la densité du flux

de photons dans le plan focal sont évalués par l'équation EQ II. 21(Tran X. Phuoc, 1999)

$$\left\{ \begin{array}{l} Irradiance [W/cm^2] = \frac{P_{laser}}{S_f} = \frac{E_{laser} / \tau_{FWHM}}{\pi r_f^2} \\ E_{electrique.} [V/cm] = 11.55 \times \frac{Irradiance^{0.5}}{r_f} \\ F_{ph} [photon/cm^2.s] = 1.7 \times 10^{18} \times \frac{Irradiance}{r_f^2} \end{array} \right. \quad (EQ II. 21)$$

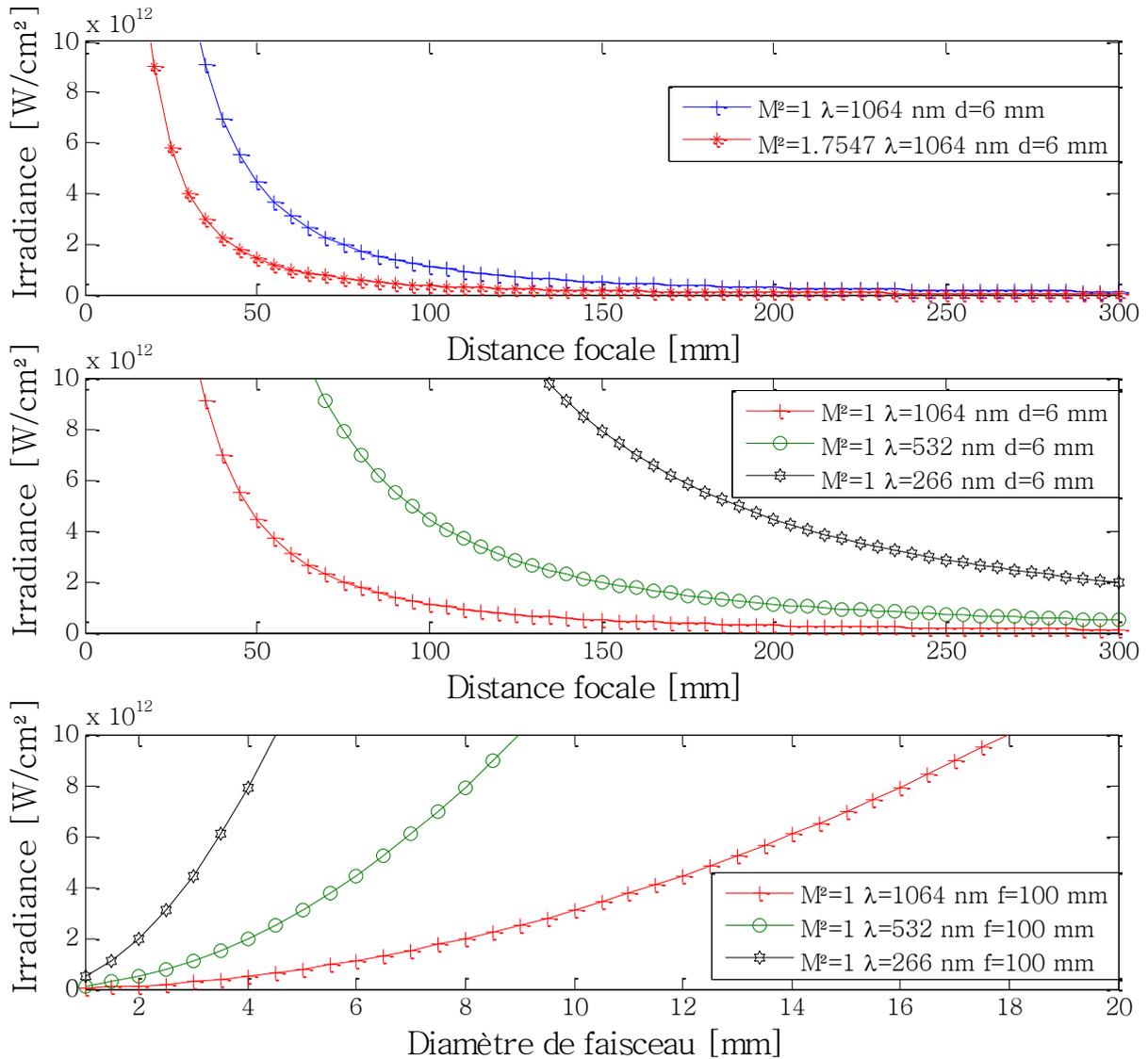


Figure II. 15: Irradiance focale en fonction de quelques caractéristiques optiques

($E=20$ mJ, $\tau_{FWHM}=4.48$ ns)

Le résultat montre que pour augmenter l'irradiance, il faut focaliser dans un volume le plus petit possible (i.e. : employer des faibles f , faibles λ ; grand diamètre de faisceau d ; $M^2 \sim 1$).

3 Interaction champ laser intense - matière

L'interaction d'un faisceau laser intense avec la matière (solide, liquide ou gaz) représente un sujet d'actualité car c'est de ce phénomène que dérivent toutes les techniques d'analyse spectroscopique pour quantifier plusieurs quantités physiques en partant de certaines hypothèses à l'exemple de l'équilibre thermodynamique local appliqué pour l'étude des plasmas (David A. Cremers et al, 2013). Souvent, ces derniers sont des plasmas de claquage par laser. Le claquage laser est bel et bien d'actualité pour l'allumage des hydrocarbures (Céline Cardin et al, 2013; Cordier, 2013; Tran X. Phuoc, 1999)

Pour donner une idée de l'intérêt porté à ce phénomène de claquage (LB : laser breakdown) on peut voir le nombre de papiers scientifiques qui lui sont dédiés dans la *Figure II. 16*.

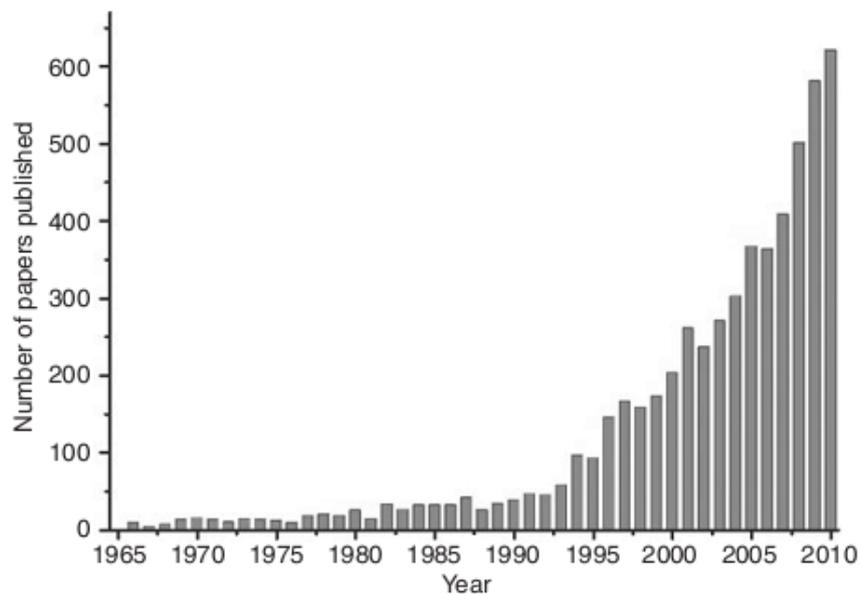


Figure II. 16 : Nombre d'articles dédiés aux phénomènes de claquage laser (David A. Cremers et al, 2013).

L'intensité d'un champ électrique due à un rayonnement laser appliqué sur un milieu peut induire des modifications importantes lors de son passage. Ces modifications représentent l'énergie pondéromotrice. Celle-ci décrit directement l'énergie d'oscillation moyenne acquise par un électron libre dans le champ de l'impulsion laser. L'énergie pondéromotrice est donnée par l'EQ II. 21.

$$U_{pm} = \frac{q^2}{2m_e \varepsilon_0 \omega^2 c} I \quad (\text{EQ II. 21})$$

Avec q la charge de l'électron, m_e la masse d'un électron, ε_0 la constante diélectrique du vide, ω la fréquence de radiation laser et I l'irradiance de laser. c représente la vitesse de la

lumière. Cette énergie dépend du carré de la longueur d'onde et est linéairement dépendante de l'irradiance laser.

$$U_{pm}[eV]=9.34 \times 10^{-20} \times \lambda^2[nm] \times I[Wcm^{-2}] \quad (\text{EQ II. 22})$$

L'énergie pondéromotrice est un critère qui vérifie si le champ laser est assez fort pour impliquer une ionisation d'une espèce ou pas. Si $U_{pm}[eV] > E_{ionisation}$ l'ionisation commence.

3.1 Ablation laser (solides et liquides)

L'ablation est la perte d'une partie par fusion ou vaporisation lors d'une interaction d'un solide avec un faisceau laser intense. L'absorption de l'énergie des photons émis par le laser par le solide provoque la fusion, la sublimation, l'ionisation, l'érosion, et souvent une explosion accompagnée d'éjection de matière. Des exemples d'application d'ablation laser sont présentés sur la figure II.17.

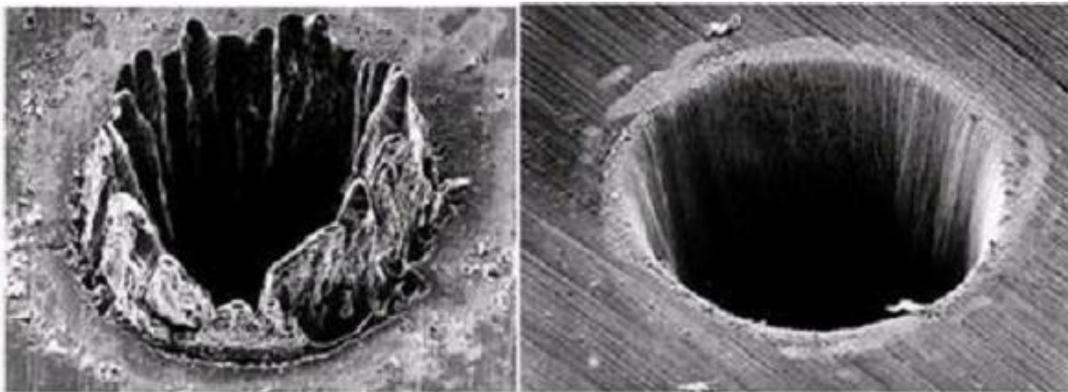


Figure II. 17 : Application de l'ablation laser pour des perçages sur matériaux laser nanoseconde (à gauche) et avec un laser femto seconde (à droite). La découpe au laser femto seconde est plus propre (Chichkov, 1996).

Cette technique permet d'usiner et de sonder des surfaces de l'ordre de quelques micromètres, comme par exemple pour l'aluminium (cf. Figure II.18).

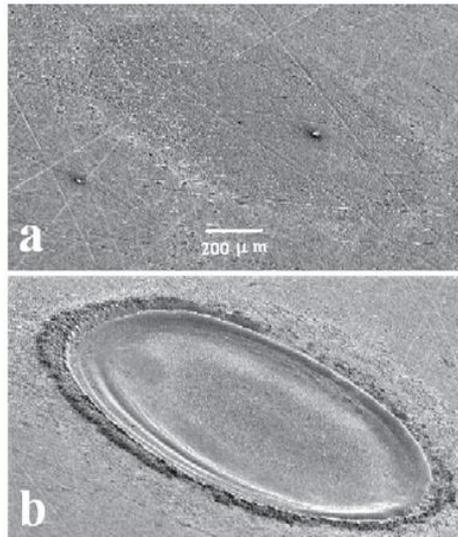


Figure II. 18: cratère d'ablation d'une surface d'aluminium (a) : avec un pulse laser, (b) avec 1000 pulse laser (Pasquine, 2007).

Les processus de formation d'un plasma d'ablation sont définis dans la Figure II. 19 (Singh & Thakur, 2006).

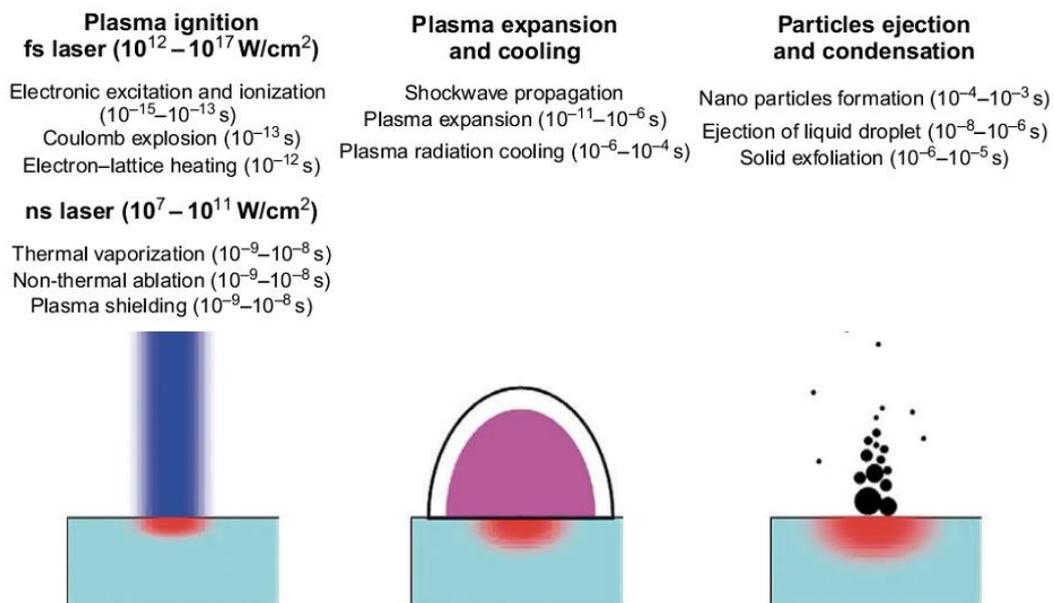


Figure II. 19 : Processus de formation d'un plasma d'ablation (Lazic & Jovićević, 2014).

L'ablation laser peut s'étendre aussi sur les matières liquides. Souvent ces études sont faites dans le but de remonter à leurs compositions chimiques (LIBS). Les processus et les aspects analytiques sont décrits dans le papier de Lazic (Lazic & Jovićević, 2014).

3.2 Claquage laser d'un gaz

Les études de claquage dans l'air remontent à l'apparition des lasers vers 1962 (Chalmerton, 1969). Cette avancée dans les technologies des lasers de puissance a permis l'élaboration de

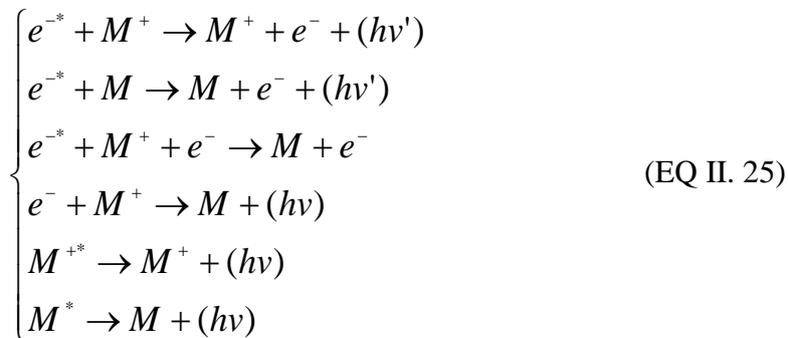
faisceaux lumineux monochromatiques très intenses. La concentration d'un tel faisceau au moyen du composant optique convergent permet d'atteindre des irradiances dépassant les 10^{15} W/cm². L'ensemble des processus élémentaires qui interviennent dans un claquage laser d'un gaz sont principalement comme suivant (DELCROIX, 1968) :

- Ionisation multi photonique MPI et production des électrons primaires,
- Echauffement par Bremsstrahlung inverse et ionisation par collisions électroniques,
- Excitation par choc électronique,
- Ionisation par choc électronique des atomes excités,
- Pertes par diffusion,
- Refroidissement des électrons par collisions élastiques.

Les processus d'avalanche électronique et mécanique aboutissent très rapidement à l'ionisation totale du gaz dans le volume focal et en même temps ils forment une onde de choc d'un type particulier (sphérique).

3.3 Processus et physique d'un claquage laser

Pour des lasers opérant à des échelles de l'ordre de la nanoseconde, le claquage d'un gaz suit principalement les processus physiques décrits dans les relations EQ II. 23, EQ II. 24 qui définissent en d'autres termes le régime impulsif et l'EQ II. 25 définissant le régime de relaxation appelé aussi le régime thermique. Entre ces deux régimes on trouve la phase de transition plasma.



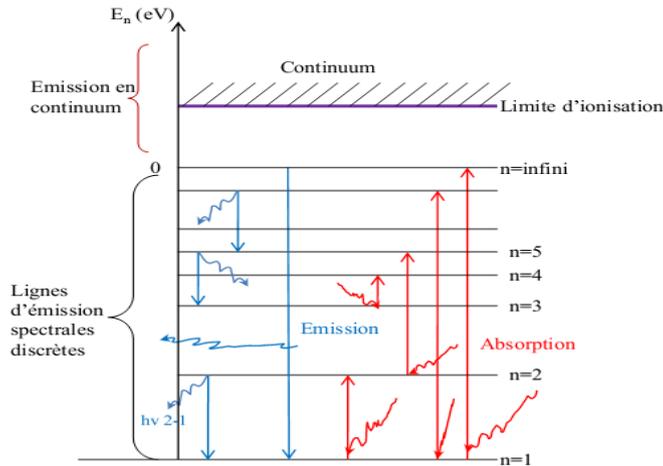


Figure II. 20 : suivi spectral pendant le processus de claquage

n : nombre de photons pour une MPI

h : constante de Planck $6.626068 \cdot 10^{-27}$ erg s^{-1} .

1erg = 10^{-7} joule.

ν : Fréquence du rayonnement électromagnétique laser.

ν' : Fréquence d'émission du rayonnement spontané (front spectral continu).

M : Composants du mélange réactif (N_2 , O_2 , $C_xH_yO_z\dots$).

La description des étapes du processus en suivant l'enchaînement des équations décrites ci-dessus définit trois régimes (Wang, 2015), sachant que dans le claquage laser la durée de vie de chaque processus dépend principalement de la longueur d'onde de la nature du mélange de gaz claqué, de l'irradiance et des conditions de focalisation.

3.3.1 Régime impulsionnel

Toutes les transformations de ce régime se font pendant l'impulsion laser et la température électronique dans ce régime avoisine les 10^6 K et une pression de l'ordre de 10^3 bar (TERNEL, 2006). La vitesse de l'expansion du plasma peut atteindre quelques 100 km/s (Chen, 2000). Dans ces conditions, une onde plasma se développe très rapidement.

Le seuil d'énergie absorbée donnant lieu au claquage se caractérise par un paramètre appelé irradiance seuil de claquage (des valeurs seront présentées dans le troisième chapitre concernant quelques mélanges de gaz). La Figure II. 21 schématise quelques prédictions pour le phénomène d'absorption donnant naissance au claquage en fonction de l'intensité du pulse laser.

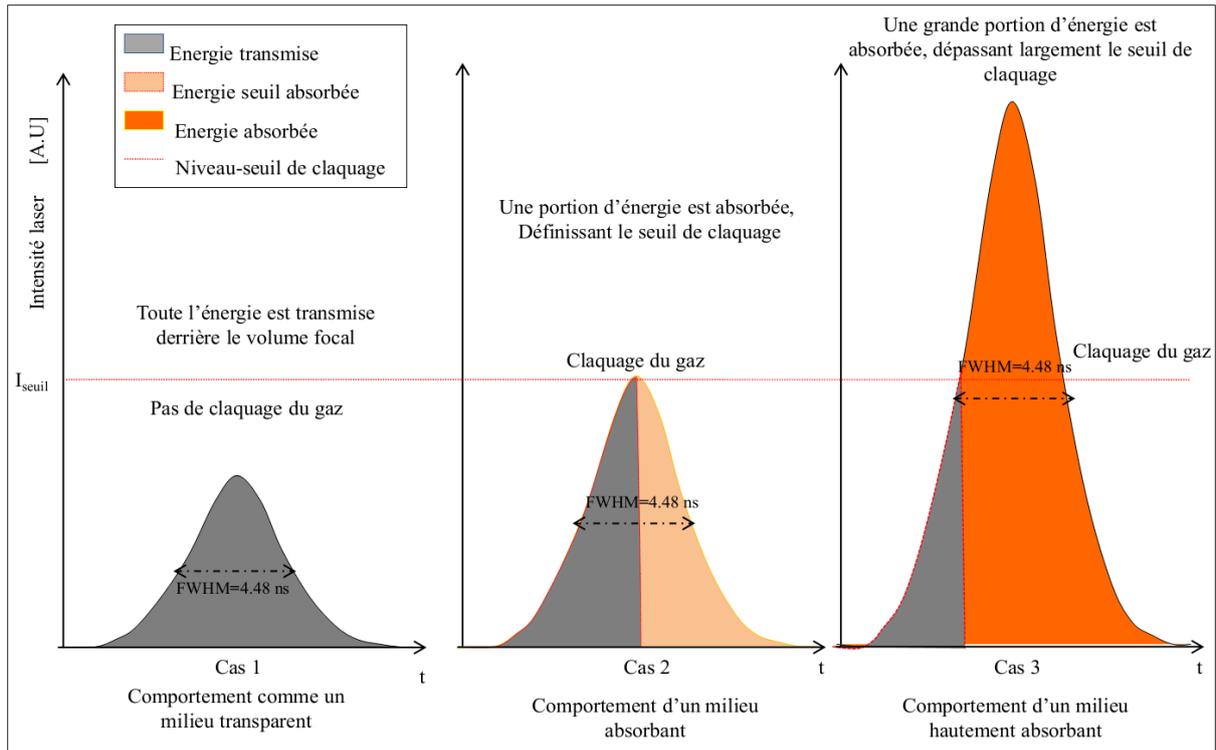


Figure II. 21 : Seuil de claquage et schématisation de l'absorption d'énergie par le gaz lors de passage du pulse laser (ns).¹

Dans le cas d'absorption d'une fraction d'énergie du pulse laser quantifié par un coefficient effectif $K'_{e,N}$ (i.e. Cas 2 et Cas 3 Figure II. 21), l'absorption et la cascade électronique pendant le claquage laser sont régies par l'EQ II. 26:

$$\frac{dn_e}{dt} = W_{MPI} N + n_e (v_i - v_d - v_r n_e) \quad (\text{EQ II. 26})$$

Dans cette équation W_{MPI} est le taux d'ionisation par atome, N est la concentration des atomes neutres, v_i est la fréquence totale d'ionisation due à un impact entre électrons et atomes et due aussi à des impacts d'excitation vers le première état et suivi rapidement par la photo ionisation, $v_r n_e$ est le taux de recombinaison et v_d est le taux de diffusion.

Le régime impulsionnel comprend les processus physiques décrits dans les deux sections suivantes.

3.3.1.1 Ionisation par absorption multi photonique MPI

Cette étape définit l'absorption d'un paquet de photons (plusieurs photons) par un atome neutre. Ces derniers lui font passer sa barrière de potentiel d'ionisation sachant que ce processus est efficace vers les petites longueurs d'ondes, la balance d'énergie est mentionnée dans EQ II. 27 :

¹ Cas 1 la physique dans le milieu gaz ne subit aucune absorption d'énergie à part les phénomènes de transmission d'énergie laser. Dans ce mode toute l'énergie du pulse se trouve transmise après le volume focal, i.e. le milieu a un comportement complètement transparent.

$$E_{electron} + E_{int} = nh\nu - E_{ionisation} \quad (\text{EQ II. 27})$$

$E_{electron}$ est l'énergie cinétique de l'électron éjecté, E_{int} est l'énergie interne du système qui représente l'énergie vibrationnelle et rotationnelle après l'ionisation.

L'ionisation peut se faire par plusieurs régimes, dans le cas de notre étude c'est la MPI perturbative *Figure II. 22*.

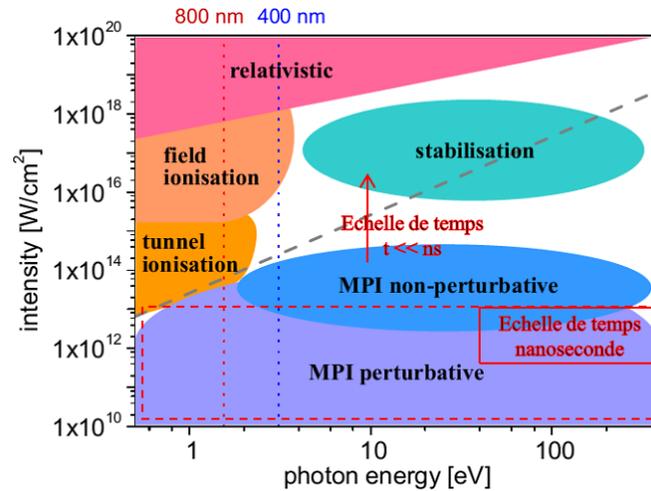


Figure II. 22 : Régimes d'ionisations en fonction de l'irradiance et des longueurs d'onde laser.

A ce premier processus de MPI s'ajoute les collisions ionisantes entre les atomes qui sont dues à la pression et la température interne élevée dans le volume focal. Ces processus génèrent par la suite les électrons primaires (EQ II. 23).

L'ionisation multi photonique a été étudiée par de nombreux auteurs et plusieurs travaux antérieurs sont disponibles à l'exemple des études de (Keldysh, 1965) (Gold & Bebb, 1965) (Morgan, 1975). Quelques calculs des taux de MPI ont été proposés dans les références précédentes. La plupart des résultats sont basés sur la théorie perturbative d'ordre m qui montre que la probabilité de transition pour l'absorption de m photons peut simplement s'exprimer comme suit :

$$W_{MPI} = AF^m \quad (\text{EQ II. 28})$$

Où m est le nombre de photons tel que l'énergie de ce nombre de photons doit être supérieure au potentiel d'ionisation de la molécule, F est le flux de photons donné en nombre de photons/cm²s. Gold et Bebb ont souligné que l'ionisation multi photonique prédit une très faible dépendance entre le seuil du flux laser et la pression du gaz. De plus, ils rapportent que la MPI seule ne définit pas entièrement dans la limite de basse fréquence (ω) l'expression du taux d'ionisation multi photonique (Keldysh, 1965).

$$A \approx \omega \left(\frac{\pi e^2}{m_e c \omega^2} \right)^m \left(\frac{e^*}{m_e} \right)^m \quad (\text{EQ II. 29})$$

Avec $e^* = 2.72$ Nombre de Neper, A est un facteur de l'ordre de l'unité, cette formule sous-estime les taux mesurés par plusieurs ordre de grandeurs. Morgane (Morgan, 1975) a proposé une expression de A plus précise que celle de Keldysh (voir EQ II. 30) (Phuoc, 2006) ; l'auteur a résolu une série d'équations couplées pour N atomes dans une unité de volume illuminée par un flux laser spatialement uniforme et temporellement constant créant le flux F (photons/(cm².s)). Les équations considérées ont été développées en supposant que, à un moment donné, un atome peut absorber suffisamment de photons et devient ionisé, un autre peut absorber plusieurs photons et rester momentanément dans un état d'énergie supérieure, tandis que d'autres peuvent absorber seulement un, deux ou même aucun photon. Le retour naturel des atomes d'un état d'énergie supérieur à un état inférieur se produit à un taux ζ_r , donné par une incertitude $\zeta_r \approx r/\tau_{1,r}$ avec $\tau_{1,r}$ la durée de vie moyenne d'un atome dans l'état r . L'émission stimulée à partir d'un état d'énergie supérieur vers un état d'énergie plus faible peut également se produire. En supposant que la section efficace d'absorption σ_r pour exciter un atome d'un état r vers un état $(r+1)$ est la même pour tout $r = 0$ à $m-1$ et où $r = m$ est l'état ionisé stable, l'équation adéquate est proposée de la manière suivante :

$$A = \frac{\sigma^m \tau_i^{m-1}}{(m-1)!} \quad (\text{EQ II. 30})$$

3.3.1.2 Bremsstrahlung inverse (IB)

Les électrons primaires créés pendant la MPI absorbent à leur tour encore plus de rayonnement laser et leur énergie cinétique augmente ce qui entraîne des collisions avec les particules du milieu. Ces phénomènes d'interactions décrivent une cascade d'énergie et d'ionisation qui s'amplifie au début et s'atténue au fur et à mesure (Diane M Wong et al, 2010). Les processus sont décrits par l'équation EQ II. 24. On définit deux coefficients d'absorptions effectifs électrons-neutres IB qui représentent un processus dominant à des températures inférieures à 10000 K et un coefficient d'absorption effectif électrons-ions IB qui est dominant à des températures supérieures à 10000 K (Bradley, 2004).

$$\begin{cases} K'_{e,N} = \left[1 - \exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) \right] \sum_j Q_j n_e N_j & \text{cm}^{-1} \text{ si } T < 10000 \text{ K} \\ K'_{e,i} = \left[1 - \exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) \right] \frac{4q_e^6 \lambda^3}{3m_e hc^4} \left(\frac{2\pi}{3m_e kT} \right)^{1/2} n_e \sum_i z_i^2 g_i n_i & \text{cm}^{-1} \text{ si } T > 10000 \text{ K} \end{cases} \quad (\text{EQ II. 31})$$

Dans l'équation ci-dessus n_e est la densité électronique, N_j est la densité des neutres (cm^{-3}), Q_j est la section efficace d'absorption des photons par les électrons à la longueur d'onde λ (cm) pendant une collision avec une espèce neutre j (cm^5), $k = 1.38 \times 10^{-16} \text{ erg} \cdot \text{K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann, $h = 6.625 \times 10^{-27} \text{ erg}$ représente la constante de Planck et $c = 2.998 \times 10^{10} \text{ cm s}^{-1}$ la vitesse de la lumière. z_i et n_i est la charge et la densité de l'espèce ionique i . $m_e = 9.109 \times 10^{-28} \text{ g}$ est la masse de l'électron, $q_e = 4.803 \times 10^{-10} \text{ esu}$ est la charge de l'électron et g_i est le facteur de Gaunt (Itoh, 2000). Le facteur peut être considéré comme vérifiant la relation $\sum_i z_i^2 g_i n_i = n_e$.

Lors d'un claquage à forte absorption par une longueur d'onde de 1064 nm, le coefficient d'absorption effectif électrons-ions de Bremsstrahlung inverse est donné par l'équation suivante : $K'_{e,i} = 0.1645 \times 10^{-34} \times (n_e^2 / T^{0.5}) [1 - \exp(-13500/T)] \text{ cm}^{-1}$.

L'absorption du Bremsstrahlung inverse est proportionnelle à la valeur cubique de la longueur d'onde λ^3 . Ce processus est majoritaire dans les phénomènes d'absorption des photons du pulse laser de haute énergie (Gallou, 2010).

La somme des deux processus MPI et le Bremsstrahlung inverse définissent la phase de claquage. La durée de vie des deux processus MPI et IB est souvent inférieure à la durée du pulse laser. Dans le papier de (Bradley, 2004) le processus de transfert d'énergie se fait majoritairement sur un temps de 10 ns pour une durée de pulse de 15 ns. La fréquence plasma sera $\omega_p = (n_e q_e^2 / \pi m_e)^{0.5}$ définissant les oscillations des charges électriques. Cette dernière doit être inférieure à la fréquence laser, sinon les photons ne peuvent pas pénétrer le plasma. A 1064 nm la densité d'électron critique est $n_c = 9.85 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Selon plusieurs auteurs, le maximum du chauffage laser est atteint à une densité électronique $n_e = n_c / 4$.

La présence d'impuretés, telles que des particules d'aérosol ou de vapeurs organiques à faible potentiel d'ionisation, peut également faciliter considérablement la génération des électrons primaires. Le processus de la cascade d'ionisation est efficace vers les hautes pressions et avec des impulsions laser longues. Dans ces conditions, les sections efficaces de collisions et d'absorption de photons sont très importantes. La durée de l'impulsion offre suffisamment de temps pour faire interagir les particules du gaz. Selon (Morgan, 1975), ce processus est un processus en compétition entre le processus par lequel l'énergie est gagnée (absorption des photons laser) provoquant une ionisation rapide et les processus par lesquels les électrons

disparaissent ou perdent de l'énergie (interaction entre atomes et phénomènes de recombinaisons).

La croissance de la densité d'électrons au cours du temps peut être analysée théoriquement par deux approches différentes : le processus d'absorption continue et le processus mécanique quantique. L'approche continue est utilisée lorsque l'énergie des photons est bien inférieure à l'énergie moyenne des électrons, $h\nu < \bar{\varepsilon}$ (avec $\bar{\varepsilon}$ l'énergie moyenne d'un électron qui est d'environ 1/3 à 1/4 du potentiel d'ionisation ε_i) (Phuoc, 2006). Dans cette approche, les électrons sont accélérés par le champ électrique du faisceau laser pour impliquer des collisions avec des atomes neutres. La collision a tendance à produire une distribution d'énergie des électrons isotrope. Si le champ laser est assez grand, certains électrons finissent par acquérir suffisamment d'énergie pour ioniser le gaz par des collisions.

Le taux d'ionisation est déterminé en assimilant simplement le taux du gain d'énergie par électron dans un champ électrique à l'énergie nécessaire pour libérer un électron par le processus d'ionisation par impact. Le taux net du gain d'énergie de l'électron à partir du champ électrique est donné par

$$E_g = q_e E \bar{v} - L_e \quad (\text{EQ II. 32})$$

L_e est le terme de perte d'énergie, q_e la charge d'électron, E le champ électrique créé par l'impulsion laser, $\bar{v} = q_e v_{c_e} E / m_e (\omega^2 + v_{c_e}^2)$ la vitesse moyenne de l'électron avec $m_e = 9.107 \times 10^{-31} \text{ kg}$ la masse de l'électron, $\omega = 2\pi / \lambda$ est la fréquence de laser et v_{c_e} est la fréquence de collision des électrons. Le champ électrique E est relié à la densité laser J par le théorème de Poynting $E^2 = 4\pi J / c$. Donc l'énergie gagnée par l'électron est donnée par l'équation (EQ II. 33).

$$E_g = \frac{4\pi q_e^2 v_{c_e} J}{m_e c (\omega^2 + v_{c_e}^2)} - L_e \quad (\text{EQ II. 33})$$

Si v_i est la fréquence des collisions ionisantes, l'énergie qu'il faut pour générer un électron sera donnée par l'EQ II. 34

$$E_i = v_i \varepsilon_i \quad (\text{EQ II. 34})$$

Le taux d'ionisation sera alors donné comme suivant :

$$v_i = \frac{4\pi q_e^2 v_{c_e} J}{\varepsilon_i m_e c (\omega^2 + v_{c_e}^2)} - \frac{L_e}{\varepsilon_i} \quad (\text{EQ II. 35})$$

Ce processus de mécanique quantique est utilisé lorsque l'énergie de photon est supérieure à la moyenne de l'énergie de l'électron $h\nu \gg \bar{\varepsilon}$. Cette approche décrit la translation temporelle des électrons libres dans l'espace de l'énergie en tant que résultat de l'effet Bremsstrahlung inverse impliquant l'absorption et l'émission de photons.

Dalgarno et Lane (Lane et Dalgarno, 1966) ont proposé une équation différentielle de l'EQ II. 31 qui met en relation le coefficient d'absorption de Bremsstrahlung inverse totale (K_a) à la section efficace de transfert σ_m par l'expression suivante :

$$K_a = 6.0 \times 10^{-25} \lambda^2 (\varepsilon + h\nu)^{\frac{1}{2}} \left[\left(1 + \frac{\varepsilon}{h\nu} \right) \sigma_m(\varepsilon) + \frac{\varepsilon}{h\nu} \sigma_m(\varepsilon + h\nu) \right] \quad (\text{EQ II. 36})$$

K_a est le coefficient d'absorption de BI donné en cm^5 , ε est l'énergie de l'électron en eV, σ_m est la section efficace de transfert en cm^2 et λ est la longueur d'onde en μm .

3.3.2 Transition plasma

A la fin de l'impulsion laser, la cascade électronique s'amplifie et continue l'ionisation du gaz, le plasma s'étend dans le gaz sous l'effet de sa haute pression et de sa température (gagnées pendant le régime impulsionnel). Cette étape définit ce qu'on appelle un plasma de transition dont la durée de vie est fonction de la longueur d'onde, de la durée de l'impulsion, de l'irradiance (énergie déposée) et de la nature du gaz ou des réactifs claqués. L'influence de l'énergie déposée est montrée sur la *Figure II. 23*². Celle-ci montre l'émission lumineuse du plasma et la disposition des régimes de formation pour plusieurs cas de paliers d'énergie déposée. Ce résultat montre que la phase de transition est retardée lorsqu'une faible énergie est déposée.

² C'est un travail réalisé sur notre montage et qui sera décrit dans le chapitre suivant.

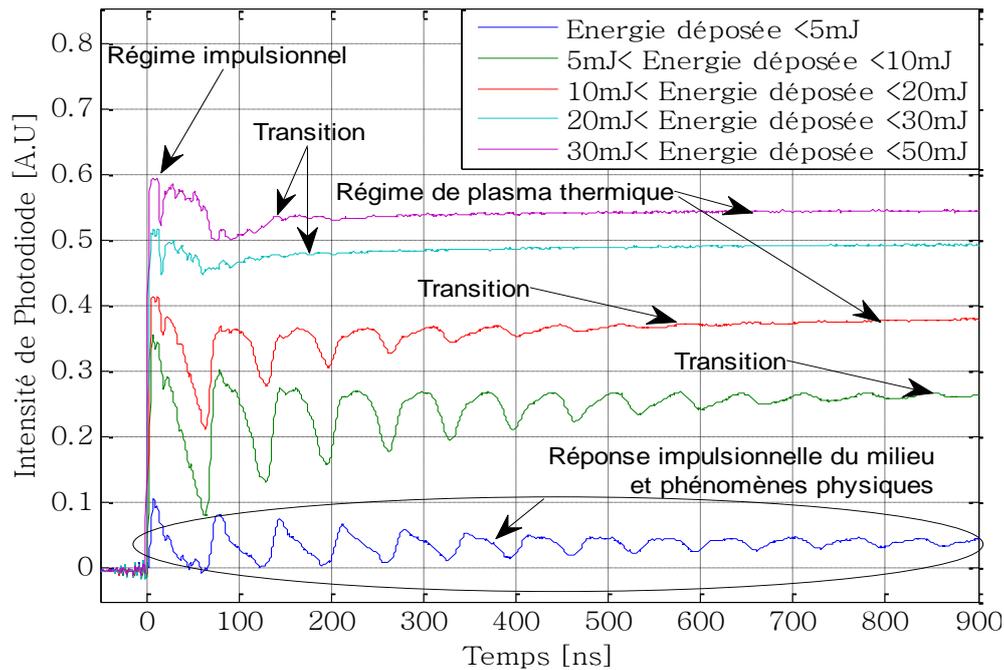


Figure II. 23: Mesures des signaux de photo diode pour des claquages du $C_{10}H_{22}+N_2+O_2$ à une richesse stoechiométrique.

A la transition, l'émission lumineuse du plasma se stabilise en présentant un régime d'émission constante sans ondulations. Celui-ci exprime d'une manière indirecte une pression de plasma stabilisée qui diminuera avec les pertes élastique et inélastique qui s'accroissent. La diminution du volume plasma oriente ce dernier vers un régime de dissipation thermique qui vient juste après la transition.

3.3.3 Régime de relaxation (régime thermique)

Après la transition, la dissipation de l'énergie à ce stade se fait par rayonnement, par échange thermique et par les différentes collisions des électrons primaires, les ions ainsi que les collisions avec les atomes du gaz neutre environnant. Ceci engendre la chute de température, de la densité électronique et ionique par les processus de recombinaisons. L'émission photodiode montre un signal d'intensité stable (*Figure II. 23*) qui commence à décroître après un temps d'environ 1 ms.

Ainsi l'excédent d'énergie se perd et la désexcitation se fait par les émissions de photons spontanés aussi bien que par les collisions avec les électrons libres du milieu. Les émissions de photons sont caractéristiques des différentes transitions des éléments atomiques et moléculaires composant le milieu claqué (ionisé). En conséquence, par un tel processus on peut remonter à la composition du mélange (par analyse spectroscopique) et aux propriétés du plasma généré en ciblant un délai de temps approprié donnant un bon rapport signal/bruit continu. Ce délai est faible à des hautes pressions de gaz et très long pour des faibles pressions.

Au début de la relaxation du plasma (retour à l'équilibre), l'intensité lumineuse est due principalement à l'effet Bremsstrahlung thermique (appelé aussi rayonnement de freinage) et aux recombinaisons radiatives.

3.3.3.1 Bremsstrahlung thermique

Ce processus provient des électrons libres du plasma qui perdent une partie de leurs énergies cinétiques par le freinage occasionné lors de leurs passages dans les champs coulombiens des ions et des particules neutres. Cette perte d'énergie se fait par dégagement de photons qui ne traduisent pas des transitions d'énergie entre des niveaux quantiques, ce qui se justifie par une émission spectrale en continuum sur un large spectre (Jung, 1994)(MOREL, 2011).

3.3.3.2 Recombinaisons radiatives

Elles définissent le même processus mais dans ce cas les électrons libres sont capturés par des ions. Ce rayonnement est prédominant lorsque la densité d'électron libre est importante puis décroît au fur à mesure que la température électronique chute. Ce rayonnement représente le fond continu du spectre d'émission. Ce fond continu s'accompagne des spectres des raies discrètes émises par le plasma qui sont directement liées aux transitions électroniques des espèces neutres et ionisées. Ce spectre discret permet de remonter à la composition du milieu. Souvent, le retour à l'équilibre initial n'est pas satisfait, surtout dans le cas des mélanges réactifs car les charges restantes qui sont libérées par ces moyens entrent en collision et excitent le mélange air/combustible qui à son tour donne naissance à plus de radicaux primaires libres (OH^* , CH^* ...) qui vont entamer les réactions en chaîne de chimie de combustion suite aux premiers phénomènes plasma et au volume chaud ainsi formé suite au claquage.

3.4 Pertes d'énergie pendant les différents régimes (L_e)

Les électrons perdent de leurs énergies lors des collisions en émettant des photons. Le coefficient d'émission stimulé des électrons est donné par l'EQ II 37.

$$\begin{cases} K_e = K_a \left(1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}\right)^{\frac{3}{2}} & \text{lorsque } \dots \varepsilon > h\nu \\ K_e = 0 & \text{lorsque } \dots \varepsilon < h\nu \end{cases} \quad (\text{EQ II. 37})$$

Pour des irradiances supérieures à 10^{10} W/cm^2 , la perte d'énergie des électrons par des collisions avec les neutres est faible comparée aux pertes par collisions inélastiques à l'exemple de l'excitation des états électroniques des neutres. Les pertes par émission stimulée sont aussi

faibles (<10%) comparé à l'énergie gagnée venant du champ laser (Rosen & Weyl, 1986). Dans le cas où toute l'énergie du champ laser est gagnée et résulte des collisions électroniques donnant naissance à l'ionisation, le taux d'ionisation sera donné alors par :

$$v_i = \frac{K_a N}{\varepsilon_i} J \quad (\text{EQ II. 38})$$

Avec N la densité de gaz, K_a le coefficient d'absorption de Bremsstrahlung inverse (BI) en utilisant l'énergie moyenne de l'électron $\bar{\varepsilon}$.

Les pertes d'énergie se font par plusieurs processus de collisions élastiques et inélastiques. Il y a aussi des pertes par diffusion et différentes recombinaisons électrons ions (Phuoc, 2006). Dans une collision élastique d'un électron avec un atome, l'électron perd de son énergie cinétique et l'état interne de l'atome reste inchangé.

$$L_e \text{ (pertes élastiques)} = \frac{2m_e}{M} \bar{\varepsilon} v_{c_e} \quad (\text{EQ II. 39})$$

M est la masse de l'atome.

Dans le cas inélastique, l'énergie interne de l'atome est modifiée après un échange de l'énergie cinétique. L'atome peut être excité à des états d'énergies supérieures. Si l'atome excité reste suffisamment longtemps dans le volume focal, il peut être photoionisé ou ionisé par une autre collision inélastique. L'atome excité tend vers une relaxation rapide en perdant son énergie par rayonnement et cette énergie est réabsorbée par les atomes voisins. Cette perte inélastique est proportionnelle à la vitesse à laquelle les atomes excités sont produits et par conséquent, elle est proportionnelle à la fréquence des collisions inélastiques.

Pour calculer la perte inélastique, il faut déterminer les états excités et le taux d'excitation de l'atome. Une approche plus simple a été utilisée par Chan et al. (Chan et al, 1973). Ils ont fait valoir qu'une fois que l'état excité est atteint, l'énergie peut être perdue de deux façons différentes. Premièrement la perte est indépendante du volume focal, deuxièmement la perte dépend du volume focal et sa dépendance est d'ordre Λ^2 . En combinant ces deux types de pertes l'équation suivante quantifie les pertes inélastiques.

$$L_e \text{ (pertes inélastiques)} = \frac{\varepsilon_i}{\ln 2} \left(\alpha + \frac{\beta}{\Lambda^2} \right) v_{c_e} \quad (\text{EQ II. 40})$$

Avec Λ la longueur de diffusion, $\Lambda = r_{focal} / 2.405$, α un paramètre adimensionnel et β un paramètre de dimension (cm^2). Chen a donné quelques valeurs de ces paramètres.

Tableau II. 1: Paramètres utilisés pour évaluer les pertes élastiques et inélastiques (Chan et al, 1973)

Gaz	Potentiel d'ionisation \mathcal{E}_i (eV)	Fréquence de collision des électrons ν_{c_e} [$10^9 \text{s}^{-1} \text{Torr}^{-1}$]	α [10^{-4}]	β [10^{-8}cm^2]
He	24,5	2,50	0,0	0,26
Ne	21,6	1,60	0,0	0,46
Ar	15,8	3,00	0,1	0,16
O ₂	12,1	4,40	2,6	1,64
Air	15,0	5,20	3,6	1,17

Les valeurs de α et β pour les gaz moléculaires sont plus importantes que les gaz atomiques (gaz inertes), ce qui explique les pertes inélastiques importantes dans les gaz moléculaires. D'après Smith (Smith, 2000), dans le cas des volume de claquage importants les pertes se font souvent par excitation autour de l'atome de l'azote (N).

Les pertes par diffusion sont plus importantes lorsque le volume de claquage est petit et que la fréquence de diffusion est donnée comme suivant selon (Phuoc, 2006).

$$\nu_d \approx \frac{D}{\Lambda^2} \quad (\text{EQ II. 41})$$

Avec D le coefficient de diffusion des électrons (cm^2/s). Chan donne l'équation pour remonter à ce coefficient de diffusion :

$$D = \frac{1}{3} \frac{\bar{v}^2}{\nu_{c_e}} = \frac{1}{\nu_{c_e}} \frac{2\bar{\mathcal{E}}}{3m_e} \quad (\text{EQ II. 42})$$

La fréquence de collision des électrons peut être évaluée en utilisant la section efficace cinétique du gaz, qui dans le cas usuel est de l'ordre de $\sigma_s = 10^{-15} \text{cm}^2$.

$$\nu_{c_e} \approx N \sqrt{\frac{2\bar{\mathcal{E}}}{m_e}} \sigma_s \quad (\text{EQ II. 43})$$

Avec N le nombre d'atomes qui dépend de la pression selon $N = N_0 P$ avec $N_0 \approx 2,69 \times 10^{19} \text{atome} / \text{cm}^3$ pour une atmosphère et P la pression (atm). L'énergie moyenne de l'électron est $\bar{\mathcal{E}}$ et varie entre 3 et 6 eV. Les pertes par recombinaison électron-ion sont importantes pour déterminer le taux d'ionisation pendant l'avalanche électronique, i.e. lorsque la densité d'électrons est élevée. Le taux de recombinaison peut être calculé en utilisant la relation suivante :

$$\nu_r = 8.8 \times 10^{-27} \frac{N_e^2}{T_e^{3.5}} \quad (\text{EQ II. 44})$$

où T_e est la température électronique en eV et N_e la densité des électrons (cm^{-3} .)

4 Génération de l'onde de choc et expansion

L'étude de l'expansion du plasma induit par laser dans les gaz (réactifs et non réactifs) est étudiée par plusieurs auteurs. Les premiers à s'intéresser à ce phénomène en le modélisant sont (Ramsden et Savic, 1964). Ces derniers considèrent le claquage comme une discontinuité de pression et de température qui survient dans le volume focal. Le phénomène, en absorbant une quantité de photon, prend du volume et se propage comme deux ondes de choc. Par conséquent, il y a naissance d'une première onde plasma de faible volume et de haute énergie (haute pression et haute température) et une deuxième onde hydrodynamique (de plus faible énergie) qui se détache après un certain temps de la première onde plasma ($\sim 1 \mu\text{s}$). L'onde hydrodynamique parcourt l'espace de proximité et s'atténue au fur et à mesure qu'elle interagit avec le milieu et les parois du réacteur. En même temps, le plasma dissipe son énergie par rayonnement et perd de son volume par décroissance de la température et de la pression. La pression et la température au voisinage du front de choc P_s, T_s sont données par les relations de Rankine et Hugoniot :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{P_s}{P_0} = \left(\frac{2\gamma}{\gamma+1} \right) \times \left(\frac{v_s}{v_a} \right)^2 - \left(\frac{\gamma-1}{\gamma+1} \right) \\ \frac{T_s}{T_0} = \left[\left(1 - \left(\frac{v_a}{v_s} \right)^2 \right) \left(\frac{\gamma-1}{\gamma+1} \right) + 1 \right] \times \left[\left(\left(\frac{v_s}{v_a} \right)^2 - 1 \right) \left(\frac{\gamma-1}{\gamma+1} \right) + 1 \right] \\ v_a = \sqrt{\frac{\gamma RT_0}{M}} \end{array} \right. \quad (\text{EQ II. 45})$$

où v_a est la vitesse de son et v_s est la vitesse de l'onde de choc.

Les propriétés du plasma et du choc à 15 ns sont données par Bradley *Tableau II. 2* concernant un mélange non-allumé propane/air. Cet auteur a quantifié le taux d'énergie déposée à 80% ($E_{abs}/E_{inc}=0.8$) de l'énergie laser totale incidente. De plus, il a évalué l'énergie dissipée par le choc à 85% de l'énergie absorbée ($E_0/E_{abs}=0.85$) (Bradley, 2004).

Concernant d'autres études, on distingue celle qui a été menée par Phuoc sur la combustion du méthane (Tran X. Phuoc, 1999).

Tableau II. 2: Propriétés du plasma et du choc à 15 ns d'un claquage induit par laser à partir de la théorie
 $E_{inc}=224 \text{ mJ}$, $\phi=0,45$ et $T_0=300 \text{ K}$.

P_0 (MPa)	v_s (m s^{-1})	P_s (MPa)	T_s (K)	r_0 at $0.4 \mu\text{s}$ (mm)	l_0 at $0.4 \mu\text{s}$ (mm)	n_e (10^{20} cm^{-3})	$k_{e,i}^{-1}$ (mm)	δ_ℓ (mm)	r_0/δ_ℓ
0.1	18,480	377	161,600	2.7	7.6	0.76	0.53	0.071	38
0.25	16,740	692	132,650	2.6	6.8	1.89	0.064	0.040	65
0.5	15,730	1222	117,220	2.5	5.6	3.8	0.013	0.026	96
1.0	15,295	2310	110,810	2.3	5.0	7.55	0.003	0.016	144

Concernant l'expansion dans les gaz hydrogène et argon, on peut se référer à l'étude de (Brieschenk, 2014) qui montre bien l'effet de la nature du gaz sur la phénoménologie du claquage et sur son expansion (Figure II. 24). Tableau II. 3

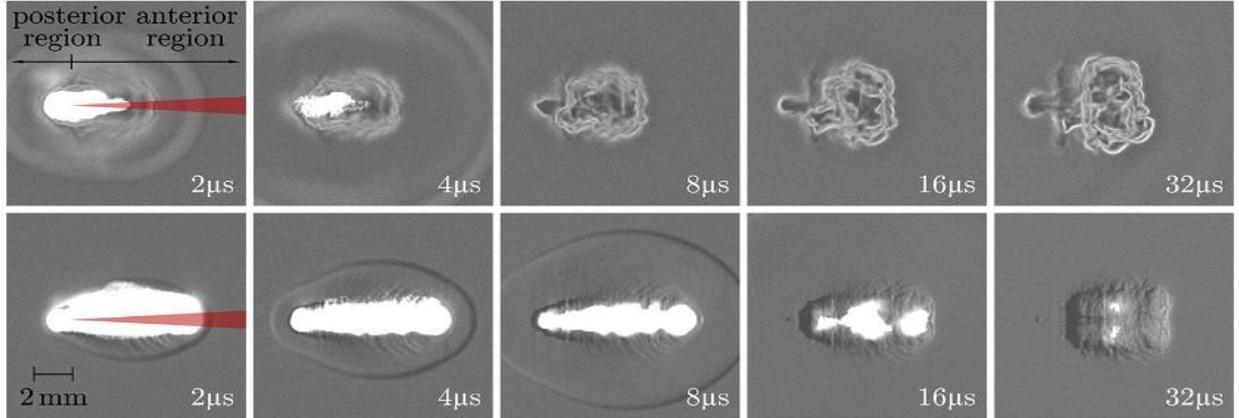


Figure II. 24 : Claquage laser de l'hydrogène(en haut) et de l'argon (en bas). Visualisation de l'onde plasma et de l'onde hydrodynamique qui se détache à $p = 5 \text{ bar}$ (Brieschenk, 2014)

Tableau II. 3: Conditions opératoires des visualisations de la Figure II. 24

Gas	H ₂	Ar
p (kPa)	500	500
T (K)	300	300
E_{abs} (mJ)	330(165)	350(175)
L (mm)	4	4
m_{gas} (kg)	3.35×10^{-27}	6.63×10^{-26}
γ (-)	1.4	1.67
J_0 (-)	0.877	0.585
λ_1 (-)	-1.989	-1.937
K_1 (m^4/s^2)	36.60	3.30
K_2 (m^2/s^2)	-3.44×10^6	-2.02×10^5

La visualisation Schlieren de la Figure II. 24 peut être complétée par la visualisation réalisée par (Pokrzywka, 2012) en utilisant une caméra ICCD intensifiée (voir Figure II. 25). A $1 \mu\text{s}$, l'onde de choc se sépare du plasma.

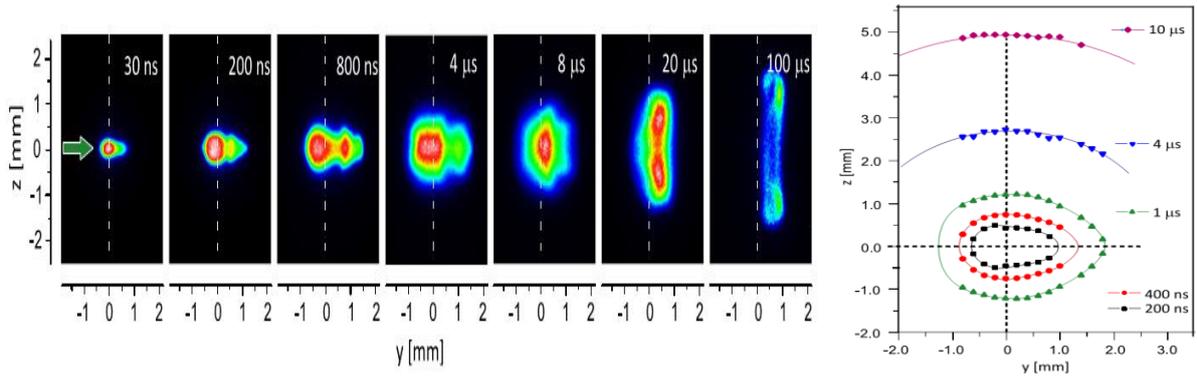


Figure II. 25 : Evolution temporelle de l'émission d'un plasma d'argon par Camera ICCD, la fluence laser dans ce cas est 2.0 kJ/cm^2

L'expansion d'un plasma de claquage dans l'air est étudié par (Chen, 2000). D'autres études plus approfondies sur l'onde plasma induite par claquage laser sont réalisées par Bindhu (C. V. Bindhu et al, 2003).

4.1 Taille du plasma créé par laser (onde plasma)

Pendant l'intervalle séparant le claquage et la fin du pulse laser, le plasma et le front de l'onde se propage à une vitesse supersonique, à l'exemple du choc dans l'argon ou une vitesse de 2 km/s est enregistrée. En même temps, la dépendance (voir aussi EQ II. 25) en termes de temps de propagation est de l'ordre de $t^{0.6}$ (Ramsden et Savic, 1964). Au début de la propagation, le choc est alimenté par l'énergie du laser absorbée dans le volume focal. Par la suite, l'expansion du plasma décélère et se propage avec une dépendance en temps de $t^{0.2}$ (Bradley, 2004). La Figure II. 27 montre une taille du plasma qui stagne et l'onde de choc hydrodynamique se détache et gagne du volume.

Le cas d'une détonation forte non-radiative peut être considéré après tout le transfert d'énergie laser. Les ondes de chocs peuvent ainsi être régies par la théorie simplifiée de Sedov (Sedov, 1993) et Taylor (G. Taylor, 1949). Cette théorie pose comme hypothèse que le dégagement d'énergie se fait localement et instantanément. De plus, les effets de la pression ambiante et de la température peuvent être négligés.

Avec ces approximations, le rayon de l'onde sphérique peut être approximé par l'équation EQ II. 25 (Pokrzywka, 2012). La dépendance de propagation en temps est de $t^{0.4}$.

$$R(t) = \beta \left(\frac{E_0}{\rho_\infty} \right)^{\frac{1}{n+2}} t^{\frac{2}{n+2}} \quad (\text{EQ II. 25})$$

Le terme E_0 représente l'énergie (volumique ?) mise en jeu lors de la détonation ($\ll E_{abs}$), ρ_∞ est la densité de l'air ambiant, β est une constante dépendante de γ , n est la dimension de

propagation (3 en sphérique, 2 en cylindrique et 1 en planaire). Cette formule est universelle et reste utilisée même dans le cas de l'ablation laser.

Il est intéressant de savoir que le phénomène physique de l'expansion du plasma est caractéristique de la nature du gaz (capacité thermique, masse volumique et conditions thermodynamiques du milieu). Les autres paramètres qui peuvent influencer cette expansion sont les énergies mises en jeu et les conditions de focalisation. Un exemple d'étude montrant l'expansion du plasma est montré dans la *Figure II. 26* (Moore et al., 2008).

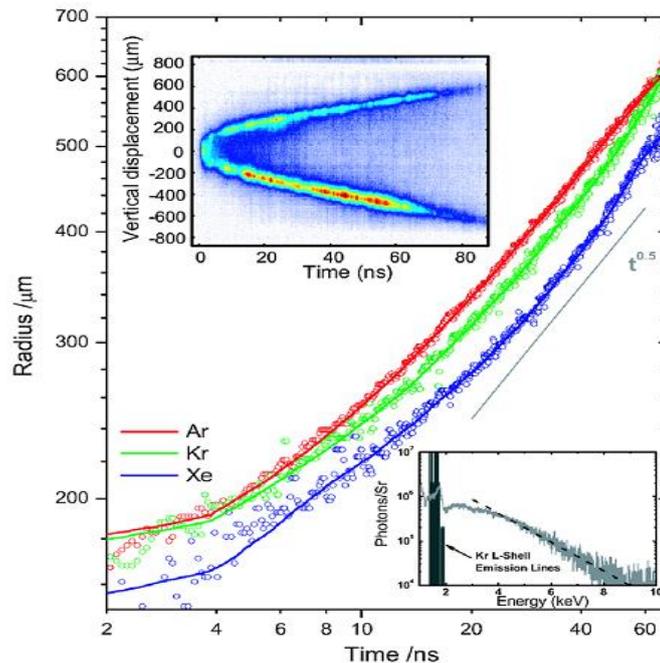


Figure II. 26: Mesure du rayon de l'onde de choc en fonction du temps pour quelques gaz rares. La figure du dessus représente la visualisation Schlieren en fonction du temps de l'expansion du plasma de Kr à 41 bar. La figure en bas à droite représente le spectre d'émission de rayons X de Kr, indiquant une température électronique initiale de 4 keV mesurée à partir de la pente de continuum (ligne pointillée). (Moore et al., 2008).

Une autre étude qui vérifie les résultats de la *Figure II. 26* est faite par Edwards qui a mesuré l'expansion du plasma dans Ne, Ar et Xe (Edwards et al., 2001).

4.2 Détachement de l'onde hydrodynamique

La déviation des résultats de la théorie par rapport aux résultats expérimentaux n'est pas flagrante malgré les différentes simplifications appliquées. De plus, le choc n'est pas parfaitement sphérique sachant aussi que la pression du front d'onde n'est pas du tout négligeable. Un autre modèle intéressant qui complète la première théorie est celui de De Izzara (De Izzara, 2002). Ce dernier propose une simple loi expliquant le comportement de l'onde de la naissance du plasma créé jusqu'au moment où l'onde hydrodynamique (sonore) se détache.

$$\begin{cases} R(t) = \beta \left(\frac{E_0}{\rho_\infty} \right)^{\frac{1}{n+2}} t^{\frac{2}{n+2}} + v_a t \\ v_s(t) = \frac{dR(t)}{dt} = \beta \frac{2}{n+2} \left(\frac{E_0}{\rho_\infty} \right)^{\frac{1}{n+2}} t^{\frac{2}{n+2}-1} + v_a \end{cases} \quad (\text{EQ II. 26})$$

v_a est la vitesse du son en relation avec les conditions thermodynamiques du milieu.

Une fois que l'onde plasma atteint son volume critique, une onde hydrodynamique se détache de la discontinuité haute énergie (onde plasma) *Figure II. 24*. Ce phénomène de détachement est bien détecté dans la *Figure II. 27* qui montre la faible taille du plasma donnée par la courbe et les triangles noirs comparée à la taille de l'onde de choc hydrodynamique qui se détache.

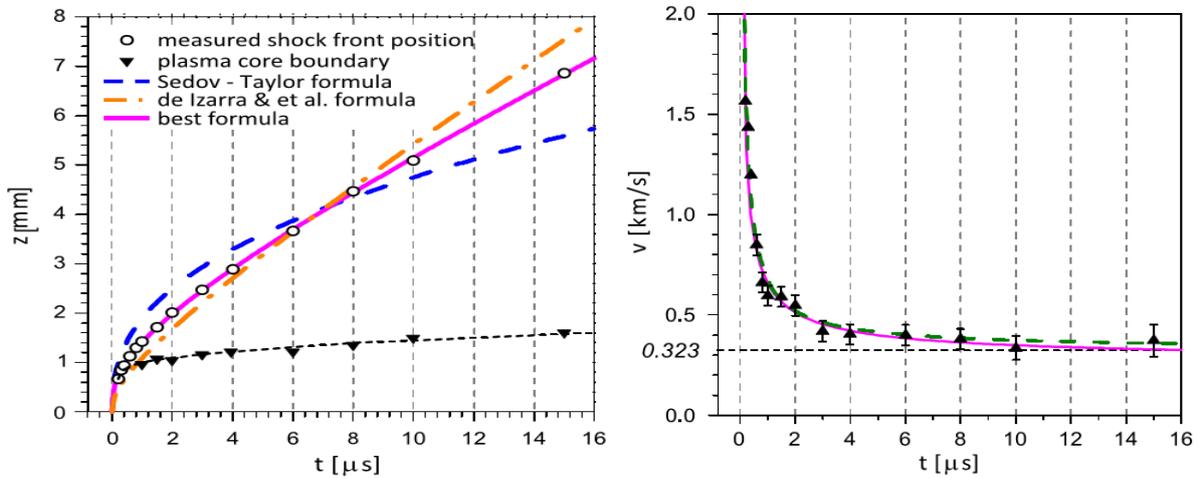


Figure II. 27 : Comparaison des résultats expérimentaux avec les théories qui régissent l'expansion du plasma et le détachement de l'onde de choc hydrodynamique dans un claquage d'argon. Sur la figure de droite, la vitesse du front de choc en fonction de temps. (Pokrzywka, 2012).

Un autre résultat dans le cas d'un mélange réactif (CH_4/air) a été étudié par (Beduneau J. L et al, 2009) *Figure II. 28*. La courbe avec les triangles verts représente la taille du plasma et les deux autres courbes représentent l'onde de choc hydrodynamique qui se détache.

L'expansion de l'onde hydrodynamique est caractéristique aussi de la nature du gaz et des conditions thermodynamiques entre la discontinuité et le gaz environnant (i.e. la température, la pression et l'énergie déposée créant le plasma). Le plasma à cette étape disparaît et laisse place à un volume de gaz très chaud (kernel) se composant des électrons thermiques qui occupent une grosse portion volumique par rapport à la taille du plasma de départ. A ce stade, si le gaz n'est pas réactif, le mélange gagne un peu d'énergie par les électrons thermiques. Le gaz revient à son équilibre au cours du temps grâce aux interactions.

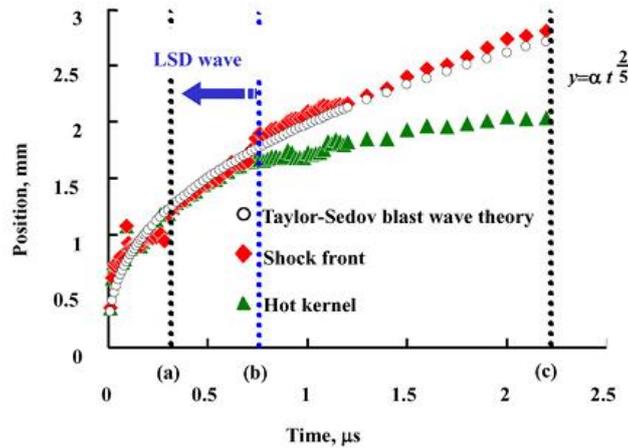


Figure II. 28 : Evolution du plasma (hot kernel) et position du front du choc en fonction du temps dans un mélange CH_4/air . (Beduneau J. L et al, 2009)

4.3 Effondrement du choc et allumage

L'allumage est décrit par Lewis et Von Elbe (Lewis & Elbe, 1987) comme étant une quantité d'énergie critique et suffisante sous forme de chaleur ou de radicaux qui sont déposés provoquant la décomposition du mélange combustible en présence de l'oxydant en une composition plus simple de gaz, souvent non réactif. Le noyau de la flamme résultante se disparaît rapidement en raison de la consommation des réactants ; les radicaux sont conduits loin de la surface du noyau par l'effet d'effondrement du choc et les espèces dissociées se recombinent plus vite qu'elles ne sont générées dans le volume du noyau.

Dans certaines conditions (d'énergie déposée, de conditions thermodynamiques et de richesse), le noyau s'éteint après avoir consommé une petite quantité de réactifs. Ce noyau d'extinction est parfois appelé non-allumage. D'autre part, si l'énergie d'allumage dépasse un certain seuil (appelé énergie minimale d'allumage MIE), au moment où la température maximale s'abaisse vers une température de flamme adiabatique, le gradient de température dans le noyau est suffisamment faible pour que la chaleur soit générée dans le noyau plus rapidement qu'elle n'est perdue (ceci en raison de la conduction thermique). Cela produit une flamme stable qui consomme la totalité du mélange disponible.

Ce modèle décrit un processus d'allumage thermique où le chauffage et l'allumage sont provoqués par l'absorption de l'énergie laser. Cela ne reflète pas la physique réelle de l'allumage induit par claquage laser qui comprend une répartition des gaz chauffés selon une géométrie bien précise due à l'effondrement du choc. L'étincelle créée par claquage laser peut enflammer le mélange combustible par deux processus selon les auteurs suivants (Schmieder, 1981)(Syage, Fournier, Rianda, & Cohen, 1988)(Spiglanin et al, 1995). Cette inflammation se fait

directement par la force du front d'onde (physique des tubes à choc) ou indirectement par dissipation thermique des gaz chauds restant après l'expansion et l'implosion du choc.

Souvent, le volume chaud provoqué par la dissipation du plasma et du choc produit des électrons thermiques qui interagissent avec le réactif en amorçant la création des radicaux libres OH, CH Ces derniers, avec une quantité suffisante, attaquent le mélange réactif et induisent la naissance et l'évolution d'un premier front de flamme sous forme toroïdale (3 dimensions) qui est souvent suivi d'un deuxième front de flamme qui remonte vers le laser (Bradley, 2004). A cette étape, l'énergie déposée est d'une grande importance car elle définit la taille du volume chaud à partir duquel les premiers lobes de flamme se forment. Zimmer a appliqué la technique de la PLIF-OH sur cette étape et a montré l'influence de l'énergie déposée sur la forme et la taille des premiers lobes de flammes *Figure II. 29*

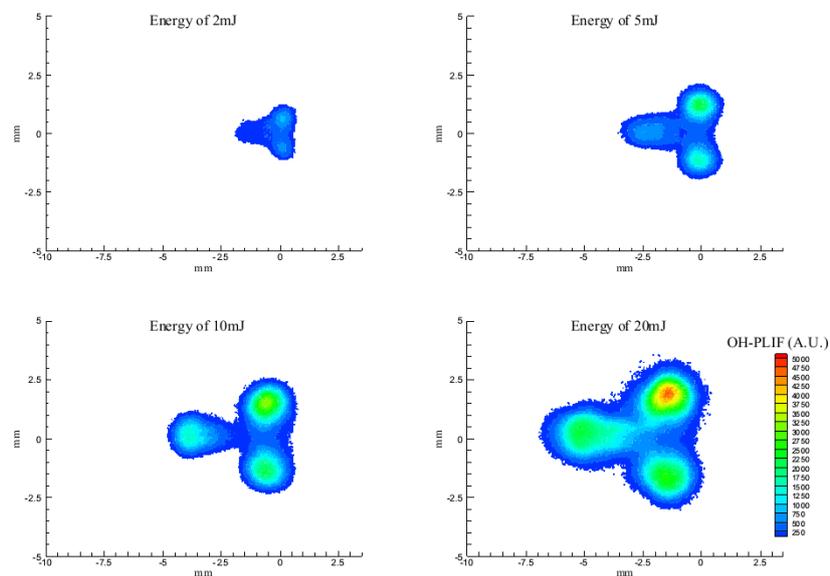


Figure II. 29 Influence de l'énergie déposée sur la forme et la taille des lobes de flamme initiaux dans le cas de l'allumage du mélange méthane/air (100 μ s) $T_0=400$ K (Zimmer, 2004).

Le laser vient de la gauche vers la droite. Les images sont obtenues pour des énergies moyennes de 2, 5, 10 et 20 mJ. Les quatre noyaux présentent une symétrie axiale et le centre est l'emplacement initial du claquage (plasma).

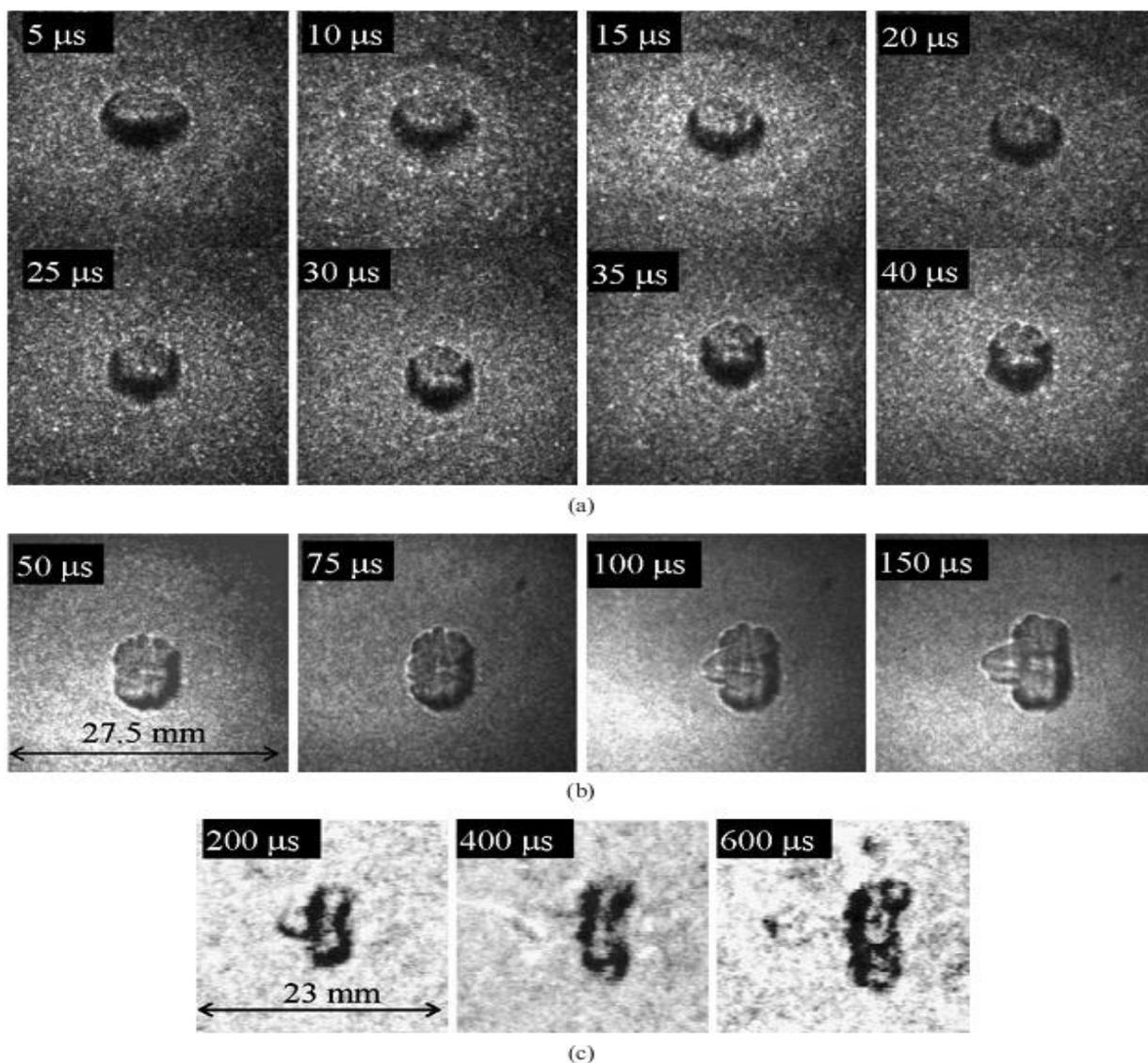


Figure II. 30: Technique Schlieren par caméra Imacon (a, b) Expansion du choc et développement des lobes de fronts de flammes dans un mélange de propane/air non allumé $\phi=0.45$. (c) Technique Schlieren par caméra Hitachi dans l'air avec une énergie incidente de laser =224 mJ, (Bradley, 2004)

Une augmentation de l'énergie d'étincelle va immédiatement se traduire par une augmentation du noyau de flamme initiale. La raison en est que toutes les molécules dans le plasma de départ sont chauffées et, par conséquent, vont participer au processus de combustion. Une autre information intéressante est que le deuxième lobe central a tendance à prendre du volume et que sa position se déplace vers le laser (à gauche) et que son intensité augmente au fur et à mesure que l'énergie du laser augmente. Ce type de flamme secondaire a déjà été observée chez (Spiglanin et al, 1995) et (Bradley, 2004) avec la technique de Schlieren à grande vitesse comme il peut être constaté dans les figures suivantes : *Figure II. 30 et Figure II. 31*.

La raison de la formation du deuxième lobe en est peut-être qu'une plus grande énergie est absorbée par le gaz au niveau du bord d'attaque du plasma. Comme le plasma devient presque

opaque à la lumière incidente (fréquence de coupure plasma atteinte, i.e. densité critique d'électron atteinte), le plasma ne peut pas absorber autant d'énergie. L'onde de choc générée par la décharge de plasma laisse derrière elle une région de gaz chauds. Par conséquent, les effets hydrodynamiques vont induire un mouvement vers le côté intérieur du plasma, ce qui va générer l'évacuation des gaz chauds détectés par des mesures OH-PLIF en direction du laser. La réactivité du mélange n'a pas d'influence sur la géométrie du phénomène formé par le claquage laser. La forme enregistrée dans le mélange très pauvre propane/air *Figure II. 30 (b)* est quasiment la même dans le cas de l'air seul *Figure II. 30 (c)*.

La richesse a un effet bien visuel comme on peut le voir à l'aide de la caméra sur la configuration du front de flamme dans le cas d'un mélange pauvre et d'un mélange stoechiométrique. Un front de flamme lisse est caractéristique des images prises à la stoechiométrie (voir la comparaison entre *Figure II. 31 (a)* et *Figure II. 31 (b)*).

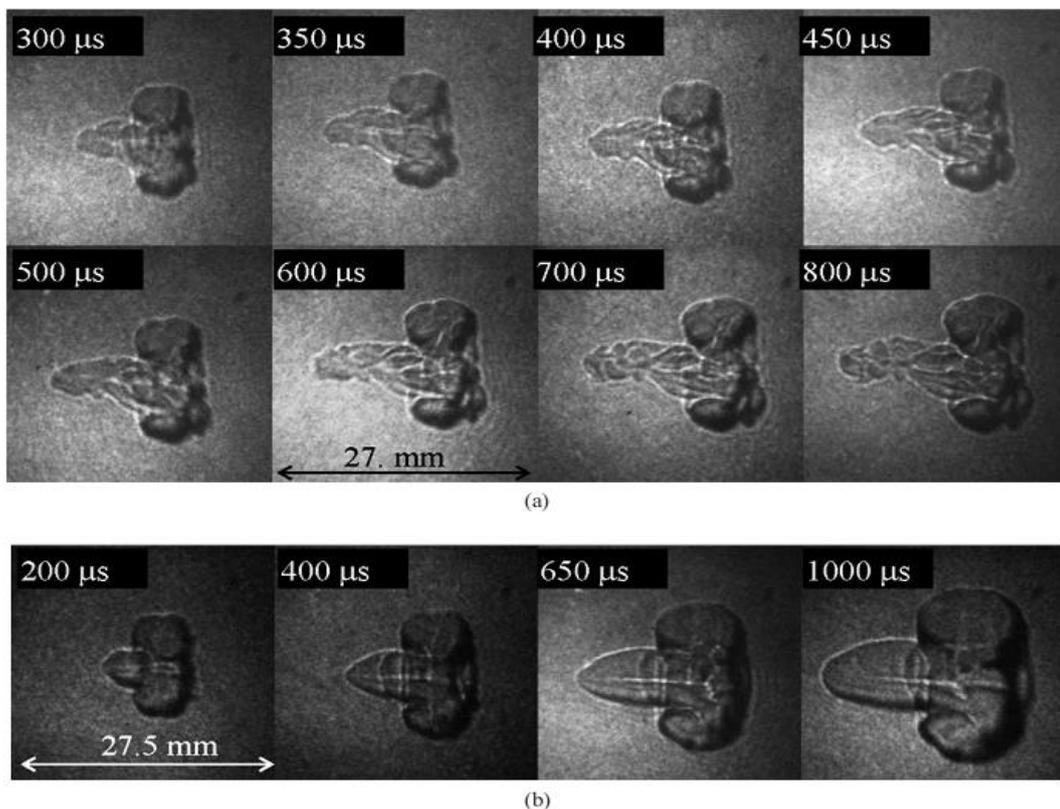


Figure II. 31: (a) Technique Schlieren par une caméra Imacon. Développement des lobes de fronts de flammes dans un mélange de propane/air non allumé $\phi=0.45$ $T=300K$, $P=0.1$ MPa. (b) allumage réussi d'un mélange propane air $\phi=1.0$. (Bradley, 2004)

5 Quelques effets influençant le claquage et l'expansion

Il est bon à savoir que toutes les conditions physiques de focalisation, i.e. la qualité des optiques, les caractéristiques physiques du laser, les conditions thermodynamiques des mélanges réactifs ou gaz inerte représentant la cible de claquage ont une influence sur le claquage et l'expansion du choc induit par la fluence laser. Dans ce qui va suivre, on présentera quelques effets obtenus dans la littérature et les études faites antérieurement par les auteurs qui s'intéressent au claquage ou à l'allumage laser.

5.1 Effet de la nature des mélanges (gaz/liquide)

L'allumage laser dans les mélanges diphasiques représente un sujet d'actualité et la plupart des études qui lui sont dédiées sont récentes à l'exemple de l'étude menée par (José V. Pastor et al, 2016). Cette étude propose une méthodologie pour configurer et optimiser un système d'allumage plasma induit par laser qui permet d'assurer une fiabilité grâce à l'efficacité du système et un positionnement bien choisi pour le plasma dans le spray, afin d'atteindre des performances optimales d'allumage.

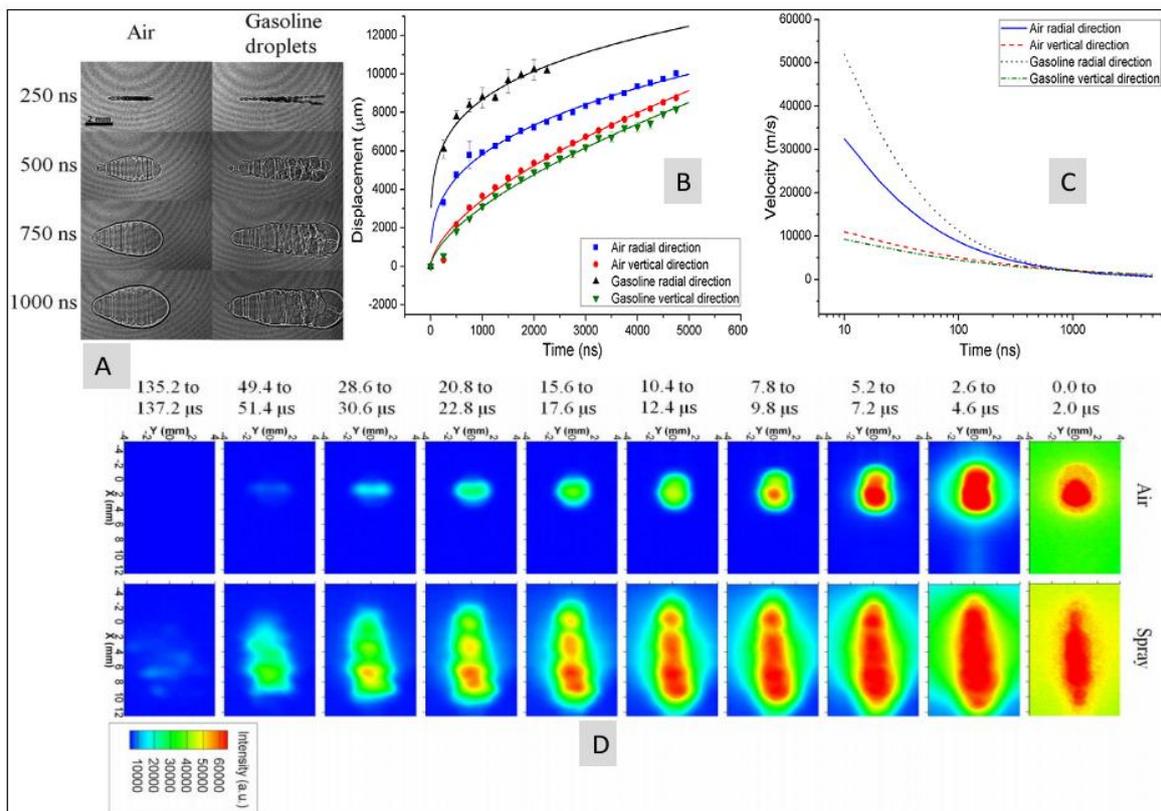


Figure II. 32: Comparaison de deux claquages laser dans l'air et dans un spray diphasique avec $\lambda=1064\text{ nm}$ et $f=100\text{ mm}$. (A) Ombroscopie de l'évolution du plasma dans le temps, (B) Evolution radiale et verticale du plasma (C) Evolution de la vitesse radiale et verticale du plasma (D) Séquences d'évolution du plasma induit par laser dans l'air et dans un spray (Lee, Do, & Yoh, 2016).

Une deuxième étude faite par (Gregor C. Gebel et al, 2015) est également intéressante. Cette dernière fait une comparaison entre deux claquages laser à 100 mJ avec une durée d'impulsion de 5 ns, un dans l'air et le deuxième dans un spray. Les résultats correspondant aux expansions des chocs laser sont montrés dans la *Figure II. 32*. L'étude montre que la forte densité dans le spray offre un volume important au plasma formé mais une évolution moins rapide et une durée de vie beaucoup plus importante. L'étude montre aussi que l'énergie seuil de claquage diminue lorsque la taille des gouttes augmente.

Sur le même sujet, on peut se référer à l'étude de (Nobuyuki Kawahara et al, 2014).

5.2 Effet de l'énergie déposée sur l'expansion du choc

L'effet de l'énergie est d'une importance draconienne sur l'allumage et le claquage laser. L'énergie définit une caractéristique appelée énergie seuil de claquage d'un gaz. Elle définit aussi l'énergie minimale d'inflammation (MIE). Elle a de plus un rôle direct sur la formation du noyau optimal de flamme permettant une meilleure propagation et une combustion complète. Une faible énergie ne permet pas l'expansion du choc et le chauffage du gaz pour une bonne combustion.

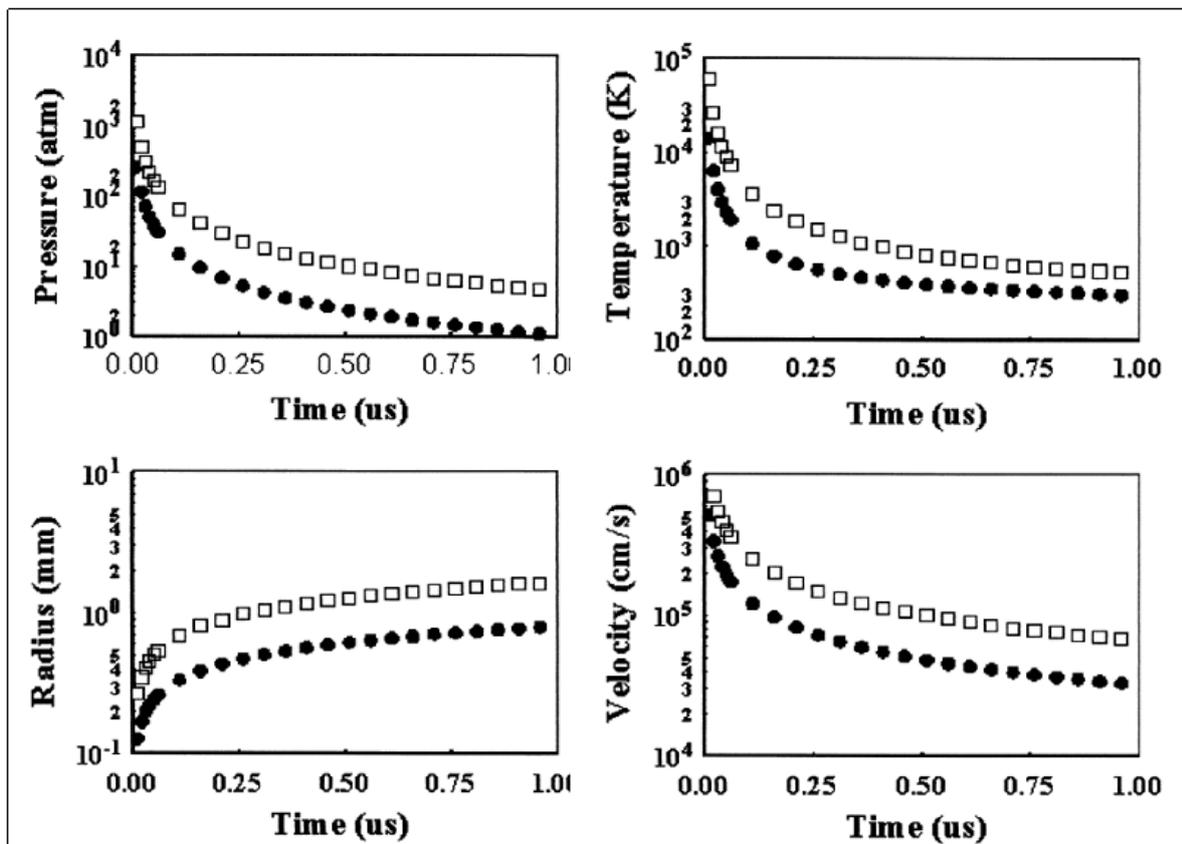


Figure II. 33 : Propriétés de l'expansion du choc induit par laser dans un mélange stœchiométrique de CH_4/air . Les carrés sont pour une énergie laser déposée de 10 mJ, les cercles correspondent à une énergie de 0.4 mJ. (Tran X. Phuoc, 1999)

D'une manière ou d'une autre, l'énergie déposée a un lien direct avec la vitesse de propagation du plasma et du choc aussi bien que sur la dissipation de l'énergie induite par le gaz. L'ensemble de ces phénomènes peut être modélisé comme un processus de Taylor Sedov (Sedov, 1993) et (G. Taylor, 1949). L'expansion montre une dépendance $(E_0)^{\frac{1}{5}}$ en énergie. Comme énoncé précédemment en section 4.1., la *Figure II. 33* montre l'effet de l'énergie déposée sur les propriétés dynamiques et thermodynamiques lors de l'expansion du choc dans un mélange CH₄/air (Tran X. Phuoc, 1999).

5.3 Délai de claquage, effet de la température et de la distance focale

La durée pour atteindre le claquage définit aussi une condition de départ à partir de laquelle le plasma commence à se former pour atteindre sa taille optimale. Si par exemple cette durée est faible, i.e. une faible énergie déposée (à puissance laser constante), cela induit un claquage de faible intensité et la physique de l'expansion du choc sera en relation directe avec cette condition de départ (faible propagation). Celle-ci définit un lien direct avec l'énergie absorbée dans le volume focal.

L'étude de Zimmer (Zimmer, 2004) a montré l'influence de la température sur le temps nécessaire pour atteindre le claquage. Le résultat est porté sur la *Figure II. 34 (A)*, on voit bien que la basse température augmente et prolonge le délai de claquage, i.e. une forte absorption (une énergie incidente forte) est toujours accompagnée d'un délai de claquage faible. Une deuxième étude menée par Beduneau montre l'effet de l'énergie incidente et de la focale sur la durée de claquage. Le résultat est porté sur la *Figure II. 34 (B)* (J.-L. Beduneau & Ikeda, 2004). Une focale de 100 mm offre un délai de claquage faible en considérant la même énergie incidente.

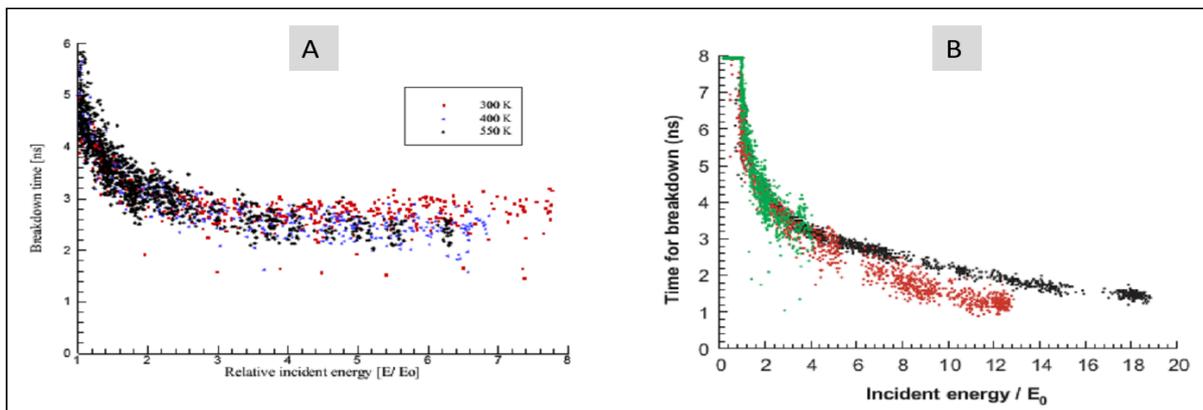


Figure II. 34 : (A) Influence de la température sur la durée de claquage. (Zimmer, 2004) . (B) Temps correspondant au claquage en fonction de l'énergie incidente (noir avec une focale= 50 mm, E₀ = 5 mJ; rouge avec une focale = 100 mm, E₀ = 10 mJ; vert avec une focale =300 mm, E₀ =30 mJ. (J.-L. Beduneau & Ikeda, 2004)

5.4 Effets du type de gaz et de la pression sur la vitesse d'expansion

La nature des gaz joue aussi un rôle très important sur la durée de vie du plasma aussi bien que sur la vitesse de l'expansion du choc (*Figure II. 24* (Brieschenk, 2014)). Lackner montre que les gaz denses offrent une durée de vie du plasma importante et une vitesse d'expansion très faible par rapport aux gaz de faible densité à l'exemple de l'hydrogène. La pression joue aussi un rôle sur la vitesse de l'expansion mais son influence reste moins importante par rapport à la nature et la densité du gaz considéré. La *Figure II. 35* montre l'évolution de la vitesse du choc induit par laser dans trois gaz différents à différentes pressions considérées (M. Lackner et al, 2004)

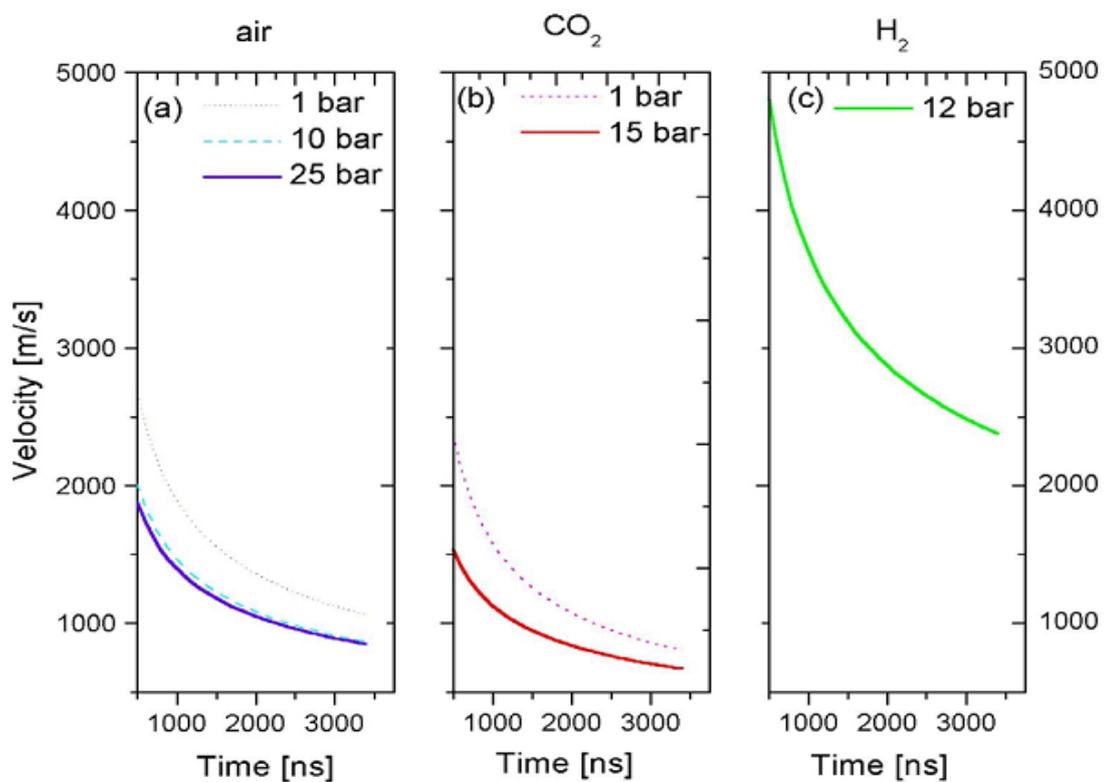


Figure II. 35 : Vitesses de l'onde de choc dans différents gaz à des pressions comprises entre 1 et 25 bars. Les vitesses sont calculées dans la direction transversale au laser (torus) (M. Lackner et al, 2004)

5.5 Observation d'un claquage laser par spectroscopie d'émission

La spectroscopie d'émission est souvent utilisée pour détecter les espèces jouant un rôle dans la formation du plasma ainsi que les radicaux primaires donnant naissance à la combustion.

La *Figure II. 36* présente le spectre d'émission du plasma obtenu après 200 ns, 1 μ s, et 2 μ s après l'impulsion laser. Pour des temps inférieurs à 1 μ s après l'impulsion laser, le spectre indique un niveau d'ionisation élevé avec un continuum qui émet aussi bien dans l'UV que dans une partie du visible. Après 1 μ s, les spectres montrent des lignes d'émission plus discrètes qui

correspondent à des atomes ionisés (la raie la plus importante est la raie d'hydrogène alpha 656 nm), mais il n'est pas facile d'observer une partie des radicaux primaires (OH^* , CH^* , C_2^* ...) dans cette phase correspondant à l'émission du plasma. Habituellement, ces derniers sont observés après l'effondrement du choc laser et la naissance des premiers lobes de flammes.

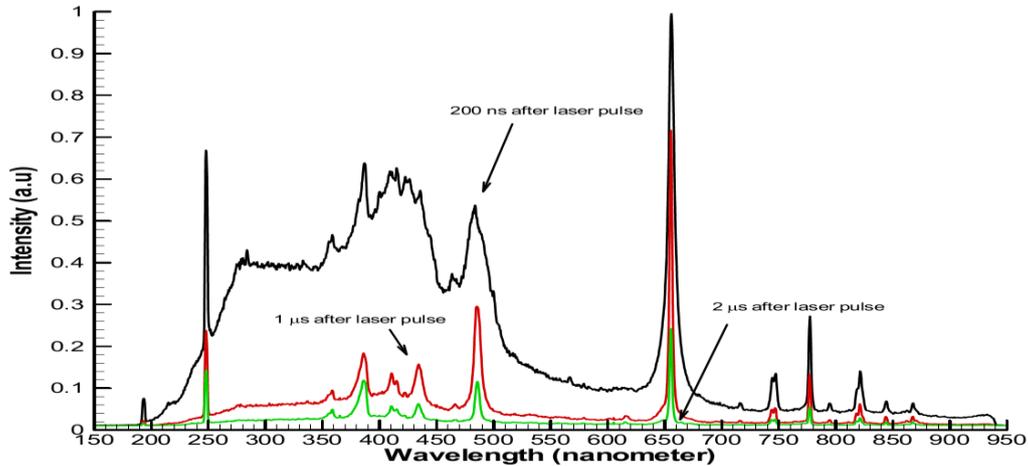


Figure II. 36 : Spectre temporel d'émission d'un choc plasma induit par laser dans un mélange de CH_4/air , $f=100 \text{ mm}$ (Beduneau J. L et al, 2004)

L'étude de (Beduneau J. L et al, 2009) reporte une comparaison de deux signaux du radical OH à 309 nm et les visualisations Schlieren correspondantes montrent la différence entre un tir laser réussi et un tir non réussi dans un mélange réactif en mouvement de $\text{C}_3\text{H}_8/\text{air}$ à la stœchiométrie.

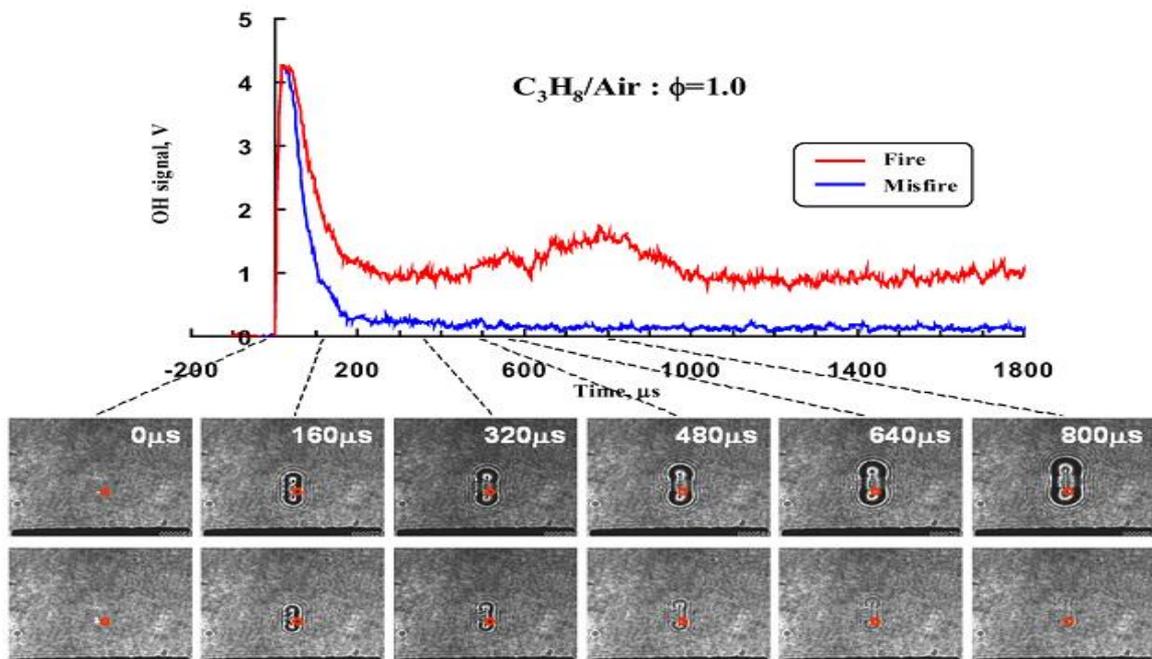


Figure II. 37 : Intensité d'émission du radical OH^* pour deux tirs laser : l'un représente un allumage réussi $E_{inc}=5.61 \text{ mJ}$, $E_{abs}=1.56 \text{ mJ}$ et le deuxième montre un allumage raté $E_{inc}=5.78 \text{ mJ}$, $E_{abs}=1.19 \text{ mJ}$. Le mélange réactif est à une vitesse de $106 \pm 2 \text{ cm/s}$. (Beduneau J. L et al, 2009).

Pendant les premiers instants de claquage, une température plus élevée est observée pour les cas avec des énergies incidentes supérieures. D'après (S. Yalçin et al, 1998) la taille du choc augmente avec l'augmentation de l'énergie déposée par le laser. Les visualisations locales et la formation du radical OH^* sont mises en chronologie d'images en fonction du temps pour les deux cas. Pour l'allumage réussi, l'intensité d'émission est amplifiée d'un facteur de 1,5. Cette intensité reste constante pendant le développement des premiers lobes de flammes d'après l'auteur de l'étude de la *Figure II. 37*.

5.6 Influence de la durée de l'impulsion laser

Les processus physiques qui se produisent lors d'un claquage laser sont très différents selon l'échelle de temps de l'impulsion (femtoseconde ou nanoseconde, parfois microseconde), et la nature de la cible. Cette différence s'explique par un changement des temps caractéristiques de transfert d'énergie des électrons vers le réseau de particules qui les entourent. La *Figure II. 38* montre la distribution de la température électronique en fonction de temps.

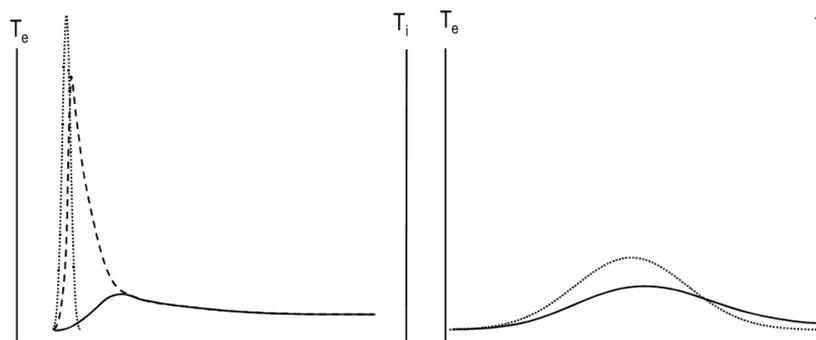


Figure II. 38 : Deux cas opposés d'évolution thermique d'un milieu soumis (à gauche) à une impulsion ultracourte (à droite) à une impulsion longue. En pointillé : impulsion laser, tirets : température électronique, traits pleins : température de réseau (Petite, 2002).

A l'échelle de la nanoseconde, le claquage est régi par des phénomènes physiques, thermiques et magnétohydrodynamiques. L'apport important d'énergie laser focalisé provoque un échauffement brutal du gaz. La chaleur n'a alors pas le temps d'être évacuée dans son intégralité par conduction thermique (par les phonons), par convection ou par rayonnement et engendre une accumulation d'énergie dans un faible volume de gaz.

Cet excédent d'énergie induit l'ionisation et l'excitation des espèces selon les étapes décrites précédemment. A l'échelle de la nanoseconde, les régimes de formation plasma interviennent à des échelles de temps très courtes au regard de la durée de l'impulsion laser. De plus, l'effet de l'énergie sur le régime de formation plasma est montré dans la *Figure II. 23*. Le temps correspondant à la transition plasma correspond réellement à des temps de transfert d'énergie

entre les différentes particules. Ce qui explique aussi que la formation du plasma démarre bien avant la fin de l'impulsion laser. Ce constat implique une interaction du plasma en formation avec le pulse laser, sachant que le plasma est un milieu opaque. Au fur et à mesure que la durée d'impulsion augmente, le freinage du faisceau s'accroît et par conséquent la taille du plasma augmente. Ce résultat est confirmé par (D.R. Symes et al, 2010) .

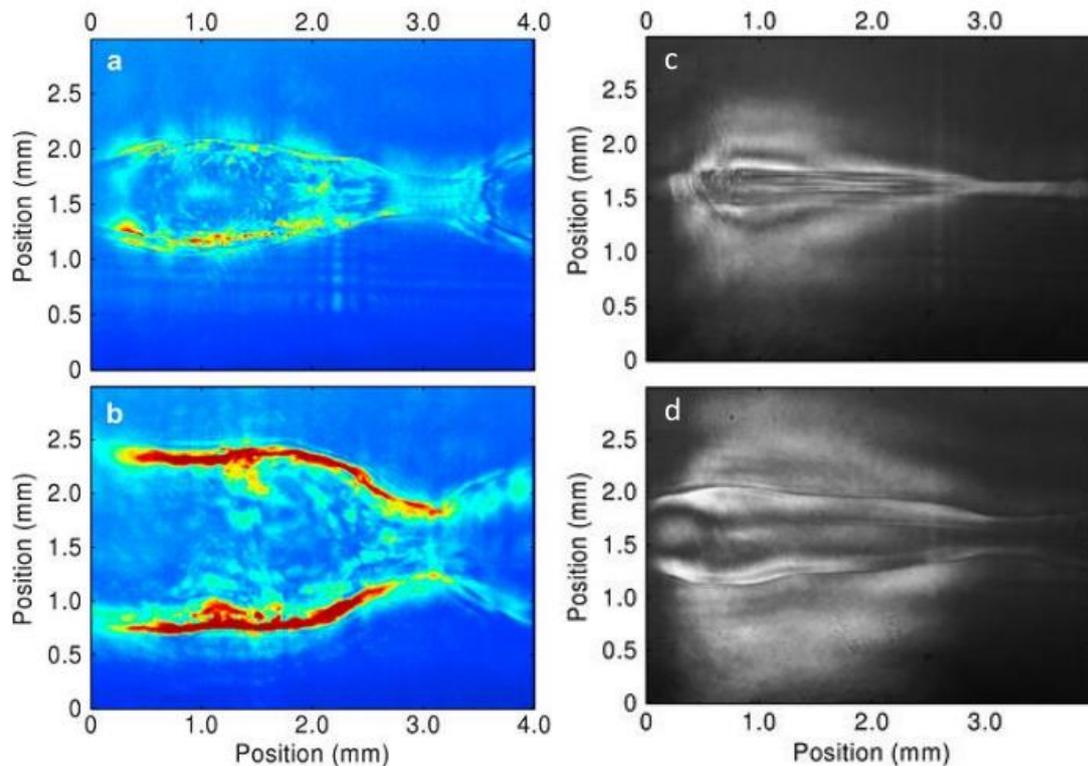


Figure II. 39: Visualisations Schlieren d'un plasma de gaz d'hydrogène (a et b). L'énergie d'irradiation laser est de 400 mJ et les temps des pulses (a) 4 ns et (b) 21 ns (c et d) plasma de xénon, l'énergie d'irradiation laser est de 400 mJ et les temps des pulses (c) 2 ns et (d) 37 ns (D.R. Symes et al, 2010)

5.7 Effet de la pression sur le profil de pulse transmis

Il est bon à savoir que s'il y a absorption dans le gaz (i.e. claquage), le profil de faisceau laser se déforme et perd de son énergie. La partie la plus affectée du faisceau est la partie descendante retardée (freinage de passage du pulse par le plasma opaque formé (coupure)) de la Gaussienne, surtout vers les hautes pressions, sachant que la phase de claquage finit une fois l'intensité maximale du pulse laser atteinte.

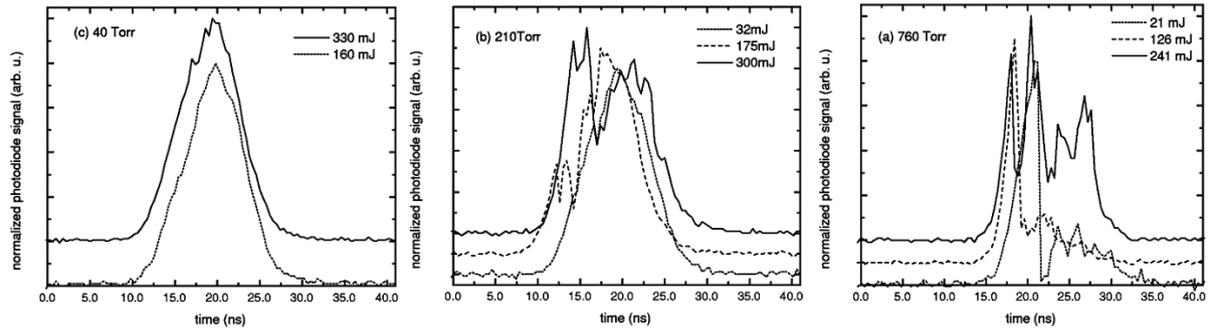


Figure II. 40 : Forme du profil de faisceau laser transmis après focalisation dans un gaz d'argon en fonction du temps (c) 53.3 mbar, (b) 280 mbar et (a) 1.013 bar. (C. V. Bindhu et al, 2003).

Un tel résultat nous laisse prédire que la forme du faisceau après un claquage ne présente plus la forme gaussienne initiale. De plus, l'intensité du faisceau transmis est très inférieure à celle de faisceau incident dans le cas où il y a absorption d'une partie du pulse laser (S. Yalçın et al, 1998).

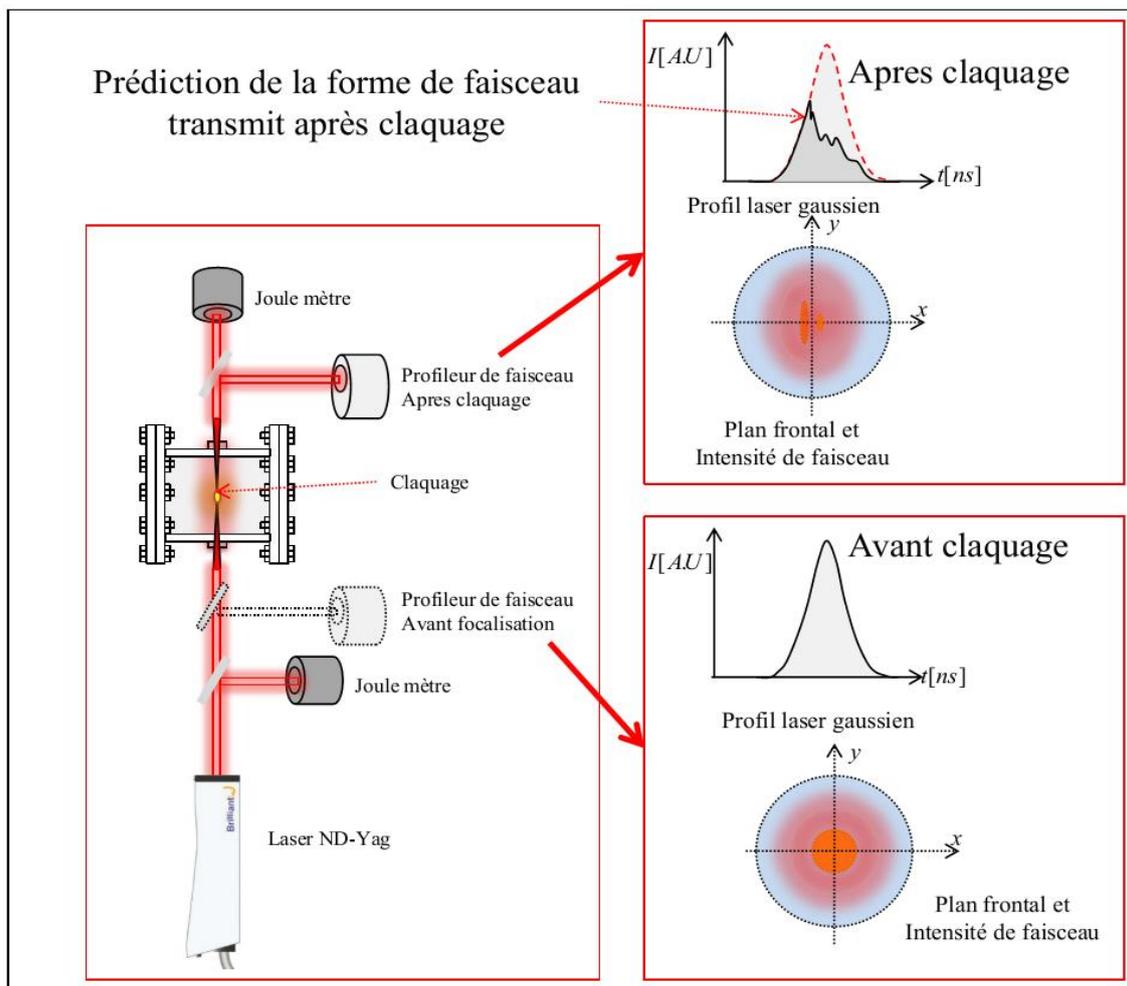


Figure II. 41 : Prédiction de la distribution d'intensité d'énergie temporelle et spatiale du faisceau avant et après claquage sur la figure : prédiction de la forme du faisceau transmis après claquage.

6 Conclusion

Ce chapitre II présente la plupart des phénomènes physiques de l'allumage induit par focalisation et claquage laser en décrivant la physique des phénomènes partant de la naissance du plasma en arrivant au détachement du choc hydrodynamique et en décrivant l'expansion et la propagation jusqu'à l'effondrement du choc et l'échauffement des gaz engendrant la naissance des premiers lobes de flammes.

L'allumage laser peut être influencé par plusieurs paramètres physiques (optique, nature des gaz...) et thermodynamiques (pression, température du gaz...)

Un récapitulatif des processus physiques d'un allumage laser sont présentés dans la *Figure II. 42* séparant la cinétique plasma de la cinétique chimique standard de combustion.

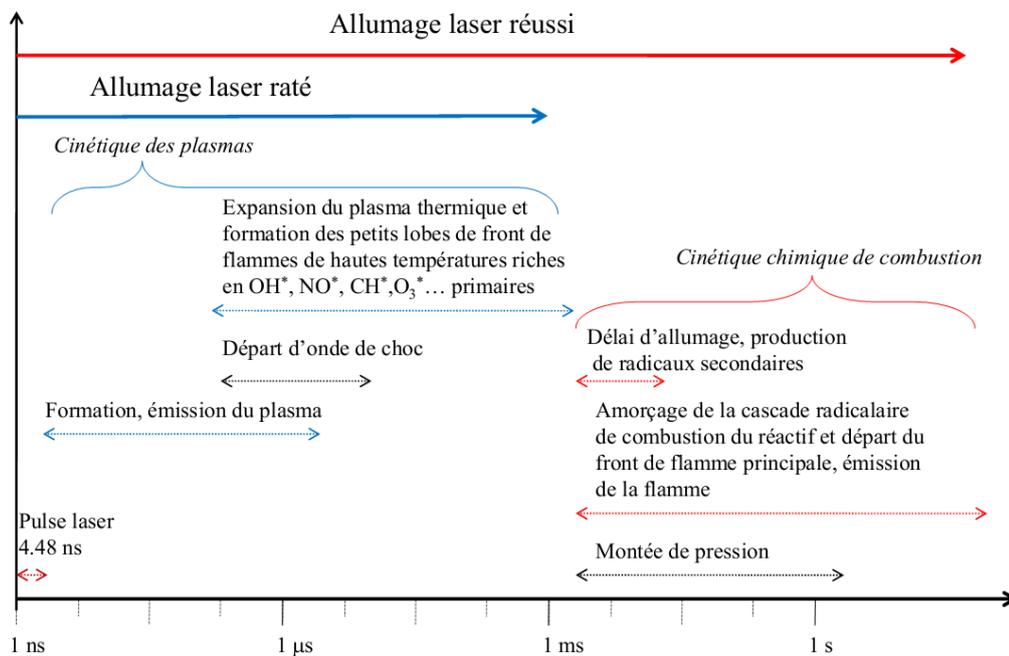


Figure II. 42 : Récapitulatif des principaux phénomènes occurrents durant un tir laser.

La faisabilité et l'intégration de l'allumage laser sur les différents moteurs, en particulier pour la propulsion aéronautique, a été approuvée et confirmée par plusieurs auteurs cités précédemment dans ce chapitre. Le fort potentiel et les avantages de ce système offrent un intérêt industriel attractif dans le but d'apporter des nouvelles technologies facilitant le contrôle et l'amélioration de la discipline combustion moteurs.

Le principe d'allumage par claquage laser reste un système très cher et en phase de développement. Par ailleurs, ce système n'a pas encore révélé toute sa physique et sa phénoménologie.

Bibliographie (II)

- Bach, H., & Neuroth, N. (1995). *The Properties of Optical Glass*. (G. Dr. Hans Bach Dr. Norbert Neuroth Schott Glas, Hattenbergstr. 10 D-5S122 Mainz, Ed.) *Schott Series on Glass and Glass Ceramics*. <http://doi.org/10.1007/978-3-642-57769-7>
- Beduneau, J. (2003). Measurements of minimum ignition energy in premixed laminar methane/air flow by using laser induced spark. *Combustion and Flame*, *132*(4), 653–665. [http://doi.org/10.1016/S0010-2180\(02\)00536-9](http://doi.org/10.1016/S0010-2180(02)00536-9)
- Beduneau, J.-L., & Ikeda, Y. (2004). Spatial characterization of laser-induced sparks in air. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, *84*(2), 123–139. [http://doi.org/10.1016/S0022-4073\(03\)00136-5](http://doi.org/10.1016/S0022-4073(03)00136-5)
- Beduneau J. L et al. (2004). Application of laser ignition on laminar flame front structure investigation. *Experiments in Fluids*, 1–9. <http://doi.org/10.1007/s00348-003-0670-5>
- Beduneau J. L et al. (2009). Laser-induced radical generation and evolution to a self-sustaining flame. *Combustion and Flame*, *156*(3), 642–656. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2008.09.013>
- Bradley. (2004). Fundamentals of high-energy spark ignition with lasers. *Combustion and Flame*, *138*(1–2), 55–77. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2004.04.002>
- Brieschenk, S. et al. (2014). Ignition characteristics of laser-ionized fuel injected into a hypersonic crossflow. *Combustion and Flame*, *161*(4), 1015–1025. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2013.09.024>
- C. V. Bindhu et al. (2003). Laser propagation and energy absorption by an argon spark. *Journal of Applied Physics*, *94*(12), 7402–7407. <http://doi.org/10.1063/1.1625413>
- Céline Cardin et al. (2013). Experimental analysis of laser-induced spark ignition of lean turbulent premixed flames. *Comptes Rendus Mécanique*, *341*(1–2), 191–200. <http://doi.org/10.1016/j.crme.2012.10.019>
- Chalmeton, V. (1969). Etude de la phase initiale du claquage d'un gaz par un laser To cite this version : *LE JOURNAL DE PHYSIQUE*, (Association Euratom-C.E.A., Département de la Physique du Plasma et de la Fusion Contrôlée, Centre d'Études Nucléaires, B.P. n° 6, 92-Fontenay-aux-Roses (France). (Reçu le 19 août 1968, révisé le 22 avril 1969.)), 14. <http://doi.org/01969003008-9068700>
- Chan et al. (1973). Significant loss mechanisms in gas breakdown at 10.6 μm . *Journal of Applied Physics*, *44*(3), 1179–1188. <http://doi.org/10.1063/1.1662325>
- Chen, Y. et al. (2000). Spatial and temporal profiles of pulsed laser-induced air plasma emissions. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, *67*, 91–103.
- Chichkov, B. et al. (1996). Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, *63*(2), 109–115. <http://doi.org/10.1007/s003390050359>
- Cordier, M. et al. (2013). Laser-Induced Spark Ignition of Premixed Confined Swirled Flames. *Combustion Science and Technology*, *185*(3), 379–407. <http://doi.org/10.1080/00102202.2012.725791>
- Cremers, D. a., & Radziemski, L. J. (2006). *Handbook of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*. <http://doi.org/10.1002/0470093013>

- D.R. Symes et al. (2010). Investigations of laser-driven radiative blast waves in clustered gases. *High Energy Density Physics*, 6(2), 274–279. <http://doi.org/10.1016/j.hedp.2009.11.006>
- David A. Cremers et al. (2013). *Handbook of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy Second Edition* (2nd ed.). Applied Research Associates, Inc., Albuquerque, NM, USA. Tucson AZ, USA: A John Wiley & Sons, Ltd., Publication.
- De Izarra, C. et al. (2002). Transition from the Sedov-Taylor Blast Wave Solution up to the Sound Wave. *Modern Physics Letters B*, 16(3), 69–72. <http://doi.org/10.1142/S0217984902003543>
- DELCROIX, J. L. (1968). DECHARGES DANS LES GAZ PRODUITES PAR LASER. *JOURNAL DE PHYSIQUE*.
- Diane M Wong et al. (2010). Laser Induced Breakdown Spectroscopy. 2010 Elsevier Ltd., 427. <http://doi.org/10.1007/s13398-014-0173-7.2>
- Diels, J.-C., & Rudolph, W. (2006). *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. <http://doi.org/10.1016/B978-012215493-5/50004-5>
- Duarte, F. J. (2010). *Laser Pulse Phenomena and Applications*. *Laser Pulse Phenomena and Applications*. <http://doi.org/10.5772/881>
- Edwards, M. J., MacKinnon, A. J., Zweiback, J., Shigemori, K., Ryutov, D., Rubenchik, A. M., ... Ditmire, T. (2001). Investigation of Ultrafast Laser-Driven Radiative Blast Waves. *Physical Review Letters*, 87(8), 85004. <http://doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.085004>
- El-rabii, H. (2004). *Etude de l' allumage par laser de m' elanges en phase liquide dispers' ee et gazeuse Hazem El-Rabii Etude de l' allumage par laser de m' elanges en phases liquides dispers' ees et gazeuses*. Ecole Centrale Paris, 2004.
- G. Taylor. (1949). The formation of a blast wave by a very intense explosion I . Theoretical discussion. *Mathematical and Physical Sciences, Vol. 201, No. 1065. (Mar. 22, 1950), Pp. 159-174.*, 2(October), 159–174. Retrieved from [http://links.jstor.org/sici?sici=0080-4630\(19500322\)201:1065%3C159:TFOABW%3E2.0.CO;2-H](http://links.jstor.org/sici?sici=0080-4630(19500322)201:1065%3C159:TFOABW%3E2.0.CO;2-H)
- Gallou, G. (2010). *Etude et optimisation de la spectroscopie sur plasma induit par laser (LIBS) pour le suivi en continu des polluants émis par les sources fixes*. Ecole Polytechnique Route Saclay Palaiseau (91).
- Gerald F. Marshall, G. E. S. (2004). *Handbook of Optical and Laser Scanning*.
- Gold, A., & Bebb, H. B. (1965). Theory of multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 14(3), 60–63. <http://doi.org/10.1103/PhysRevLett.14.60>
- Gregor C. Gebel et al. (2015). Optical and spectroscopic diagnostics of laser-induced air breakdown and kerosene spray ignition. *Combustion and Flame*, 162(4), 1599–1613. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2014.11.024>
- Itoh, N. et al. (2000). Relativistic Thermal Bremsstrahlung Gaunt Factor for the Intracluster Plasma. II. Analytic Fitting Formulae. *The Astrophysical Journal Supplement Series*, 128(1998), 125–138. <http://doi.org/10.1086/313375>
- José V. Pastor et al. (2016). Laser induced plasma methodology for ignition control in direct injection sprays. *Energy Conversion and Management*, 120, 144–156. <http://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.04.086>
- Jung, Y.-D. (1994). Thermal and nonthermal electron–ion bremsstrahlung spectrum from high-temperature plasmas. *Physics of Plasmas*, 1(3), 785. <http://doi.org/10.1063/1.870771>
- Kasparian, J. (2008). Les lasers de puissance à impulsions ultracourtes. *Futura-Sciences*, 1–12.

Retrieved from <http://www.futura-sciences.com/magazines/matiere/infos/dossiers/d/physique-lasers-puissance-impulsions-ultracourtes-764/>

- Keldysh, L. V. (1965). Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, 20(5), 1307–1314. <http://doi.org/10.1234/12345678>
- Lane et Dalgarno. (1966). Free free transitions of electrons in gases. *Astrophysical Journal*, Vol. 145, p.623, 1. <http://doi.org/10.1086/148801>
- Lazic, V., & Jovićević, S. (2014). Laser induced breakdown spectroscopy inside liquids: Processes and analytical aspects. *Spectrochimica Acta - Part B Atomic Spectroscopy*, 101, 288–311. <http://doi.org/10.1016/j.sab.2014.09.006> Review
- Lee, S. H., Do, H., & Yoh, J. J. (2016). Simultaneous optical ignition and spectroscopy of a two-phase spray flame. *Combustion and Flame*, 165, 334–345. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.12.016>
- Lewis, B., & Elbe, G. Von. (1987). *Combustion, flames, and explosions of gases* (3rd ed.). United Kingdom Edition published by ACADEMI C PRES S INC . (LONDON) LTD. 24-28 Oval Road, London NW1 7DX.
- M. Lackner et al. (2004). Investigation of the early stages in laser-induced ignition by Schlieren photography and laser-induced fluorescence spectroscopy. *Optics Express*, 12(19), 4546–4557. <http://doi.org/10.1364/OPEX.12.004546>
- Maiman, T. H. (1960). Optical and Microwave-Optical Experiments in Ruby. *PhysRevLett*.4.564, 4(11), 564--566. <http://doi.org/10.1103/PhysRevLett.4.564>
- Mauclair, C. (2010). *Spatio-Temporal Ultrafast Laser Tailoring for Bulk Functionalization of Transparent Materials*. Thesis. Université Jean Monnet, Saint-Etienne et Max-Born-Institut für Nichtlinear Optik und Kurzzeitspektroskopie, Berlin.
- Michael Bass. (2004). *Handbook of Optics. Library of Congress Cataloging-in-Publication Data* (Second Edi). <http://doi.org/10.1119/1.11846>
- Milton Laikin. (2006). *Lens design* (2006 by Ta, Vol. 4).
- Moore, A. S., Gumbrell, E. T., Lazarus, J., Hohenberger, M., Robinson, J. S., Smith, R. A., ... Dunne, M. (2008). Full-trajectory diagnosis of laser-driven radiative blast waves in search of thermal plasma instabilities. *Physical Review Letters*, 100(5), 1–4. <http://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.055001>
- MOREL, V. (2011). *Dynamique de la création d ' un plasma d ' aluminium induit par laser : Élaboration et validation d ' un modèle collisionnel-radiatif*. FACULTÉ DES SCIENCES UNIVERSITÉ DE ROUEN.
- Morgan, C. G. (1975). Laser-induced breakdown of gases. *Reports on Progress in Physics*, 38(5), 621–665. <http://doi.org/10.1088/0034-4885/38/5/002>
- Nobuyuki Kawahara et al. (2014). Laser-induced plasma generation and evolution in a transient spray. *Optics Express*, 22(S1), A44. <http://doi.org/10.1364/OE.22.000A44>
- P.Peyre. (2014). Les procédés laser. PIMM, Arts et Métiers ParisTech.
- Pasquine, C. et al. (2007). Laser-induced breakdown spectroscopy. *Journal of Brazilian Chemical Society*, 18(3), 463. <http://doi.org/10.1366/000370210793561691>
- Petite, G. (2002). Mécanismes fondamentaux de l ' ablation laser femtoseconde en « flux intermédiaire ». *Laboratoire Des Solides Irradiés, UMR 7642 CEA/DSM, CNRS/SPM et Ecole Polytechnique F-91128, Palaiseau*.

- Phuoc, T. X. (2006). Laser-induced spark ignition fundamental and applications. *Optics and Lasers in Engineering*, 44(5), 351–397. <http://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2005.03.008>
- Pokrzywka, B. e. al. (2012). Laser light scattering in a laser-induced argon plasma: Investigations of the shock wave. *Spectrochimica Acta - Part B Atomic Spectroscopy*, 74–75, 24–30. <http://doi.org/10.1016/j.sab.2012.06.015>
- Ramsden et Savic. (1964). A radiative detonation model for the developpement of laser-induced spark in air. © 1964 Nature Publishing Group, 3.
- Rosen, D. I., & Weyl, G. (1986). Laser-induced breakdown in nitrogen and the rare gases at 0.53 and 0.357 μ m. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 20 (1987) 1264-1276. Printed in the UK, 20, 1264–1276. <http://doi.org/10.1088/0022-3727/20/10/009>
- S. Yalçin et al. (1998). Influence of ambient conditions on the laser air spark. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 68(1), 121–130. <http://doi.org/10.1007/s003400050596>
- Schmieder, R. W. (1981). Laser spark ignition and extinction of a methane-air diffusion flame. *Journal of Applied Physics*, 52(4), 3000–3003. <http://doi.org/10.1063/1.329044>
- Sedov, L. I. (1993). *Similarity and Dimensional Methods in Mechanics (Tenth Edition)*. ACADEMIC PRESS INC. 11 FIFTH AVENUE NEW YORK 3, N.Y. Outside.
- Siegman, A. E. (1986). *Lasers. Lasers.*
- Singh, J., & Thakur, S. (2006). *Laser Induced Breakdown Spectroscopy*. Department of Chemistry and Biochemistry University of South Carolina Columbia, SC 29208, USA. <http://doi.org/10.1017/CBO9780511541261.016>
- Smith, D. (2000). Laser induced gas breakdown and plasma interaction. *38th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, (c). <http://doi.org/10.2514/6.2000-716>
- Southall, J. (1918). *Mirrors, Prisms and Lenses. A Textbook of Geometrical Optics-Macmillan (1933).pdf* (3rd ed.). MACMILLAN COMPANY.
- Spiglanin et al. (1995). Time-resolved imaging of flame kernels: Laser spark ignition of H₂/O₂/Ar mixtures. *Combustion and Flame*, 102(3), 310–328. [http://doi.org/10.1016/0010-2180\(94\)00278-Z](http://doi.org/10.1016/0010-2180(94)00278-Z)
- Srivastava, D. K., Wintner, E., & Agarwal, A. K. (2014). Effect of focal size on the laser ignition of compressed natural gas-air mixture. *Optics and Lasers in Engineering*, 58, 67–79. <http://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2014.01.023>
- Steen, W. M. (2003). *Laser Material Processing. Springer-Verlag London* (Vol. 113). Retrieved from <http://www.springerlink.com/index/10.1007/978-1-84996-062-5>
- Syage, J. A., Fournier, E. W., Rianda, R., & Cohen, R. B. (1988). Dynamics of flame propagation using laser-induced spark initiation: Ignition energy measurements. *Journal of Applied Physics*, 64(3), 1499–1507. <http://doi.org/10.1063/1.341824>
- TERNEL, C. (2006). *Contribution au développement de l'allumage par laser pour les moteurs à combustion interne. PHD*. FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE ROUEN.
- TISON, G. (2013). *Étude, réalisation et applications d'une chaîne amplificatrice laser compacte pour l'allumage de turbomoteurs*. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I.
- Toru Yoshizawa. (2009). *Handbook of OPTICAL METROLOGY Principles and Applications*. CRC Press Taylor & Francis Group 6000 Broken Sound Parkway NW, Suite 300 Boca Raton, FL 33487-2742. Retrieved from <http://www.taylorandfrancis.com>

- Tran X. Phuoc. (1999). Laser-Induced Spark Ignition of CH₄ / Air Mixtures, *2180*(99), 203–216.
- Wang, Z. et al. (2015). Comparison of the detection characteristics of trace species using laser-induced breakdown spectroscopy and laser breakdown time-of-flight mass spectrometry. *Sensors (Switzerland)*, *15*(3), 5982–6008. <http://doi.org/10.3390/s150305982>
- Zimmer, L. et al. (2004). Time-resolved OH-PLIF in laser ignition applied to lean premixed preheated methane -air flames Time-resolved OH-PLIF in laser ignition applied to lean premixed preheated methane -air flames. *Japan Aerospace Exploration Agency*, 0–9. <http://doi.org/IT Center – Advanced Analysis Team 7-44-1 Jindaiji-Higashi, Chofu, 182-8522 Tokyo, JAPAN>

Table des figures (II)

<i>Figure II. 1: Architecture de la solution laser (LISI) apportée par TISON (TISON, 2013).</i>	94
<i>Figure II. 2: Transmission de la lumière par réflexion et par réfraction</i>	95
<i>Figure II. 3: Géométrie de miroirs (A) miroir plan, (B) miroir concave, (C) Miroir convexe</i>	96
<i>Figure II. 4: Différents types et cambrures de lentilles</i>	96
<i>Figure II. 5 : Différents aberrations optiques</i>	97
<i>Figure II. 6 : Influence des aberrations optiques sur la forme du volume focal (Chen, 2000).</i>	97
<i>Figure II. 7: Aberration géométrique</i>	98
<i>Figure II. 8 : Aberration chromatique</i>	98
<i>Figure II. 9: Fonctionnement d'une cavité laser</i>	99
<i>Figure II. 10 : Domaine d'application des lasers (P.Peyre, 2014)</i>	100
<i>Figure II. 11: Evolution et caractéristiques d'un faisceau laser</i>	103
<i>Figure II. 12 : Puissance instantanée du pulse laser P(t)</i>	103
<i>Figure II. 13: Principe de focalisation par lentille et par miroir</i>	104
<i>Figure II. 14 : Caractéristiques du faisceau sur la taille du volume focal (r_f et l_f)</i>	106
<i>Figure II. 15: Irradiance focale en fonction de quelques caractéristiques optiques</i>	107
<i>Figure II. 16 : Nombre d'articles dédiés aux phénomènes de claquage laser (David A. Cremers et al, 2013)</i>	108
<i>Figure II. 17 : Application de l'ablation laser pour des perçages sur matériaux laser nanoseconde (à gauche) et avec un laser femto seconde (à droite). La découpe au laser femto seconde est plus propre (Kasparian, 2008)</i>	109
<i>Figure II. 18: cratère d'ablation d'une surface d'aluminium (a) : avec un pulse laser, (b) avec 1000 pulse laser (Pasquine, 2007).</i>	110
<i>Figure II. 19 : Processus de formation d'un plasma d'ablation (Lazic & Jovičević, 2014).</i>	110
<i>Figure II. 20 : suivi spectral pendant le processus de claquage</i>	112
<i>Figure II. 21 : Seuil de claquage et schématisation de l'absorption d'énergie par le gaz lors de passage</i>	113
<i>Figure II. 22 : Régimes d'ionisations en fonction de l'irradiance et des longueurs d'onde laser.</i>	114
<i>Figure II. 23: Mesures des signaux de photo diode pour des claquages du C₁₀H₂₂+N₂+O₂ à une richesse stoechiométrique.</i>	119
<i>Figure II. 24 : Claquage laser de l'hydrogène(en haut) et de l'argon (en bas). Visualisation de l'onde plasma et de l'onde hydrodynamique qui se détache à p = 5 bar (Brieschenk, 2014)</i>	124
<i>Figure II. 25 : Evolution temporelle de l'émission d'un plasma d'argon par Camera ICCD, la fluence laser dans ce cas est 2.0 kJ/cm²</i>	125
<i>Figure II. 26: Mesure du rayon de l'onde de choc en fonction du temps pour quelques gaz rares. La figure du dessus représente la visualisation Schlieren en fonction du temps de l'expansion du plasma de Kr à 41 bar. La figure en bas à droite représente le spectre d'émission de rayons X de Kr, indiquant une</i>	

<i>température électronique initiale de 4 keV mesurée à partir de la pente de continuum (ligne pointillée). (Moore et al., 2008).</i>	126
<i>Figure II. 27 : Comparaison des résultats expérimentaux avec les théories qui régissent l'expansion du plasma et le détachement de l'onde de choc hydrodynamique dans un claquage d'argon. Sur la figure de droite, la vitesse du front de choc en fonction de temps. (Pokrzywka, 2012).</i>	127
<i>Figure II. 28 : Evolution du plasma (hot kernel) et position du front du choc en fonction du temps dans un mélange CH₄/air. (Beduneau J. L et al, 2009).</i>	128
<i>Figure II. 29 Influence de l'énergie déposée sur la forme et la taille des lobes de flamme initiaux dans le cas de l'allumage du mélange méthane/air (100 μs) T₀=400 K (Zimmer, 2004).</i>	129
<i>Figure II. 30: Technique Schlieren par caméra Imacon (a, b) Expansion du choc et développement des lobes de fronts de flammes dans un mélange de propane/air non allumé φ=0.45. (c) Technique Schlieren par caméra Hitachi dans l'air avec une énergie incidente de laser =224 mJ, (Bradley, 2004).</i>	130
<i>Figure II. 31: (a) Technique Schlieren par une caméra Imacon. Développement des lobes de fronts de flammes dans un mélange de propane/air non allumé φ=0.45 T=300K, P=0.1 MPa. (b) allumage réussi d'un mélange propane air φ=1.0. (Bradley, 2004)</i>	131
<i>Figure II. 32: Comparaison de deux claquages laser dans l'air et dans un spray diphasique avec λ=1064 nm et f=100 mm. (A) Ombroscopie de l'évolution du plasma dans le temps, (B) Evolution radiale et verticale du plasma (C) Evolution de la vitesse radiale et verticale du plasma (D) Séquences d'évolution du plasma induit par laser dans l'air et dans un spray (Lee, Do, & Yoh, 2016).</i>	132
<i>Figure II. 33 : Propriétés de l'expansion du choc induit par laser dans un mélange stœchiométrique de CH₄/air. Les carrés sont pour une énergie laser déposée de 10 mJ, les cercles correspondent à une énergie de 0.4 mJ. (Tran X. Phuoc, 1999).</i>	133
<i>Figure II. 34 :(A) Influence de la température sur la durée de claquage. (Zimmer, 2004)). (B) Temps correspondant au claquage en fonction de l'énergie incidente (noir avec une focale= 50 mm, E₀ = 5 mJ; rouge avec une focale = 100 mm, E₀ = 10 mJ; vert avec une focale =300 mm, E₀ =30 mJ. (J.-L. Beduneau & Ikeda, 2004).</i>	134
<i>Figure II. 35 : Vitesses de l'onde de choc dans différents gaz à des pressions comprises entre 1 et 25 bars. Les vitesses sont calculées dans la direction transversale au laser (torus) (M. Lackner et al, 2004)</i>	135
<i>Figure II. 36 : Spectre temporel d'émission d'un choc plasma induit par laser dans un mélange de CH₄/air, f=100 mm (Beduneau J. L et al, 2004)</i>	136
<i>Figure II. 37 : Intensité d'émission du radical OH* pour deux tirs laser : l'un représente un allumage réussi E_{inc}=5.61mJ, E_{abs}=1.56 mJ et le deuxième montre un allumage raté E_{inc}=5.78 mJ, E_{abs}=1.19 mJ. Le mélange réactif est à une vitesse de 106 ± 2 cm/s. (Beduneau J. L et al, 2009).</i>	136
<i>Figure II. 38 : Deux cas opposés d'évolution thermique d'un milieu soumis (à gauche) à une impulsion ultracourte (à droite) à une impulsion longue. En pointillé : impulsion laser, tirets : température électronique, traits pleins : température de réseau (Petite, 2002).</i>	137
<i>Figure II. 39: Visualisations Schlieren d'un plasma de gaz d'hydrogène (a et b). L'énergie d'irradiation laser est de 400 mJ et les temps des pulses (a) 4 ns et (b) 21 ns</i>	138
<i>Figure II. 40 : Forme du profil de faisceau laser transmis après focalisation dans un gaz d'argon en fonction du temps (c) 53.3 mbar, (b) 280 mbar et (a) 1.013 bar. (C. V. Bindhu et al, 2003).</i>	139
<i>Figure II. 41 : Prédiction de la distribution d'intensité d'énergie temporelle et spatiale du faisceau avant et après claquage sur la figure : prédiction de la forme du faisceau transmis après claquage.</i>	139
<i>Figure II. 42 : Récapitulatif des principaux phénomènes occurrents durant un tir laser.</i>	140

Table des tableaux (II)

<i>Tableau II. 1: Paramètres utilisés pour évaluer les pertes élastiques et inélastiques (Chan et al, 1973)</i>	122
<i>Tableau II. 2: Propriétés du plasma et du choc à 15 ns d'un claquage induit par laser à partir de la théorie E_{inc}=224 mJ, φ=0,45 et T₀=300 K.</i>	124
<i>Tableau II. 3: Conditions opératoires des visualisations de la Figure II. 24</i>	124

CHAPITRE : III

ETUDE EXPERIMENTALE DES EFFETS DES PARAMETRES PHYSIQUES ET THERMODYNAMIQUES SUR L'ALLUMAGE LASER

TABLE DES MATIERES (III)

<i>Avant-propos</i>	152
<i>1 Dispositif expérimental et expérimentations</i>	152
<i>1.1 Banc expérimental (LIQUIM)</i>	152
<i>1.1.1 Chambre de combustion</i>	154
<i>1.1.2 Laser ND-YAG 360 mJ</i>	155
<i>1.1.3 Pompe à vide</i>	155
<i>1.1.4 L'instrumentation de mesure</i>	155
<i>1.2 Plan d'expérience et protocole expérimental</i>	159
<i>2 Résultats des expériences (effets des conditions initiales)</i>	160
<i>2.1 Claquages et taux d'absorption du $C_{10}H_{22}/(N_2+O_2)$</i>	160
<i>2.1.1 Influence de la pression sur l'absorption laser</i>	161
<i>2.1.2 Influence de la pression et la richesse sur le seuil de claquage</i>	162
<i>2.1.3 Influence de la pression sur la transmission laser</i>	163
<i>2.1.4 Loi de Beer Lambert et atténuation du faisceau laser</i>	164
<i>2.1.5 Effet de la composition du mélange sur l'absorption</i>	167
<i>3 Statistique sur les claquages et les allumages laser</i>	170
<i>3.1 Effets de la composition des mélanges sur les statistiques de claquage</i>	170
<i>3.1.1 Loi statistique en en Énergie incidente</i>	171
<i>3.1.2 Loi statistique en en Énergie absorbée</i>	172

3.2	<i>Effet de la focale et la richesse sur l'Allumage laser (C₁₀H₂₂/N₂+O₂)</i>	173
3.2.1	<i>Statistiques sur l'énergie incidente</i>	173
3.2.2	<i>Statistiques sur l'énergie absorbée</i>	174
4	<i>Statistiques sur l'effet de la pression sur le claquage et l'allumage laser</i>	174
4.1.1	<i>Mélange pauvre ($\phi = 0,65$ et $f = 100$ mm)</i>	175
4.1.2	<i>Mélange proche stœchiométrie ($\phi=1,1$ et $f = 100$ mm)</i>	177
5	<i>Energie minimale d'allumage par laser (MIE)</i>	180
5.1.1	<i>Etude (MIE) avec focale 150 mm</i>	180
5.1.2	<i>Etude (MIE) avec focale 100 mm</i>	181
5.2	<i>Energie seuil d'allumage mélanges pauvres et proche stœchiométrie</i>	182
6	<i>Analyse des signaux de pression de combustion (n-décane/N₂+O₂)</i>	184
6.1	<i>Effet de la richesse (P₀=1 bar, T=347 K et f=100 mm)</i>	185
6.1.1	<i>Pressions maximales de combustion</i>	185
6.1.2	<i>Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)</i>	186
6.1.3	<i>Gradients de pressions maximaux et temps caractéristiques</i>	187
6.2	<i>Effets de la pression initiale (T = 347 K, $\phi = (0,65$ et $1,1)$)</i>	188
6.2.1	<i>Pressions de combustion maximales</i>	188
6.2.2	<i>Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)</i>	189
6.2.3	<i>Valeurs des gradients maximaux de pressions</i>	189
6.2.4	<i>Moyennes de pressions maximales et des gradients maximaux</i>	190
6.3	<i>Modèle de Bradley et vitesse de flamme laminaire (S_L)</i>	191
6.3.1	<i>Effet de la richesse (P₀=1 bar T=347K et f=100 mm)</i>	193
6.3.2	<i>Effet de la Pression sur la vitesse de flamme</i>	193
7	<i>Signaux de photodiodes de la combustion (n-décane/N₂+O₂)</i>	194
7.1	<i>Estimation des délais d'allumage par signaux de photodiodes</i>	196
7.2	<i>Effet de la richesse sur l'émission de la flamme (mesures photodiodes)</i>	198
8	<i>Spectroscopie des claquages et des flammes de (n-décane/N₂+O₂)</i>	199
8.1	<i>Estimation des délais d'induction par spectroscopie d'émission</i>	200
8.2	<i>Spectroscopie de claquage et de la flamme</i>	201
8.2.1	<i>Espèces ionisées de claquage</i>	202
8.2.2	<i>Estimation de la température électronique</i>	202
8.2.3	<i>Espèces radicalaires et émission de la flamme</i>	204
8.3	<i>Effet de la richesse sur la spectroscopie de la flamme</i>	205
9	<i>Visualisations Schlieren par caméra rapide (E_{inc}=100 mJ)</i>	207
9.1	<i>Effet de richesse (P₀=1 bar, E_{inc}=100 mJ)</i>	207
9.2	<i>Effet de la pression ($\phi=1,1$, E_{inc}=100 mJ)</i>	209
10	<i>Conclusion</i>	211

<i>Bibliographie (III)</i>	213
<i>Table des figures (III)</i>	215
<i>Table des tableaux (III)</i>	217

Avant-propos

Ce chapitre 3 présente une approche physique et statistique de l'allumage par claquage laser, principalement sur des mélanges de n-décane $C_{10}H_{22}/N_2+O_2$ avec plusieurs configurations expérimentales testées au laboratoire.

L'approche physique caractérisera l'aptitude de ces différents milieux gazeux à absorber l'énergie du laser à différentes pressions et compositions sur les mélanges expérimentés au laboratoire PRISME avec le banc LIQUIM localisé sur le site de Bourges. L'approche statistique sera présentée en utilisant deux approches paramétrées sur deux plans : un plan extérieur au réacteur qui représente l'énergie incidente de la source laser et un deuxième plan qui concerne l'énergie déposée par le laser ou absorbée dans le volume focal. Le but de ces investigations est de montrer l'effet des conditions thermodynamiques initiales (pression, richesse) ainsi que physique (focale) sur la réactivité des mélanges tant sur l'allumage que le claquage. Ces expériences et les résultats obtenus sont un complément pour d'autres études qui montrent l'effet de la longueur focale (Phuoc, 2000), de la pression et de la richesse (J. Griffith et al, 2015).

Ce chapitre reporte en premier lieu les effets de la pression et de la richesse sur le claquage laser des mélanges $C_{10}H_{22}/(N_2+O_2)$. Une seconde partie montre l'influence de la composition des mélanges frais et les produits de combustion sur l'énergie absorbée lors des claquages...

1 Dispositif expérimental et expérimentations

Cette section décrit l'ensemble du dispositif expérimental utilisé pendant ces trois années de thèse, le plan d'expérience tracé pour cibler les objectifs, ainsi que le protocole suivi des expériences.

1.1 Banc expérimental (LIQUIM)

Le dispositif expérimental utilisé porte le nom LIQUIM qui veut dire (Laser Ignition in Quiescent Mixture). Ce dernier a été conçu par le laboratoire par (Tihay, 2012) et amélioré en termes d'instrumentation de mesure pendant ma thèse. Les principaux appareillages, leurs dispositions et leurs connectiques sont représentés sur la *Figure III. 1*. Un complément au dispositif est rajouté pour permettre la visualisation Schlieren des deux phénomènes principaux d'études i.e. le plasma et la consommation des réactifs après allumage (combustion) s'il y a lieu. Les éléments principaux sont la chambre de combustion, le laser qui sert à l'allumage et la pompe à vide, le reste représente l'instrumentation de mesure.

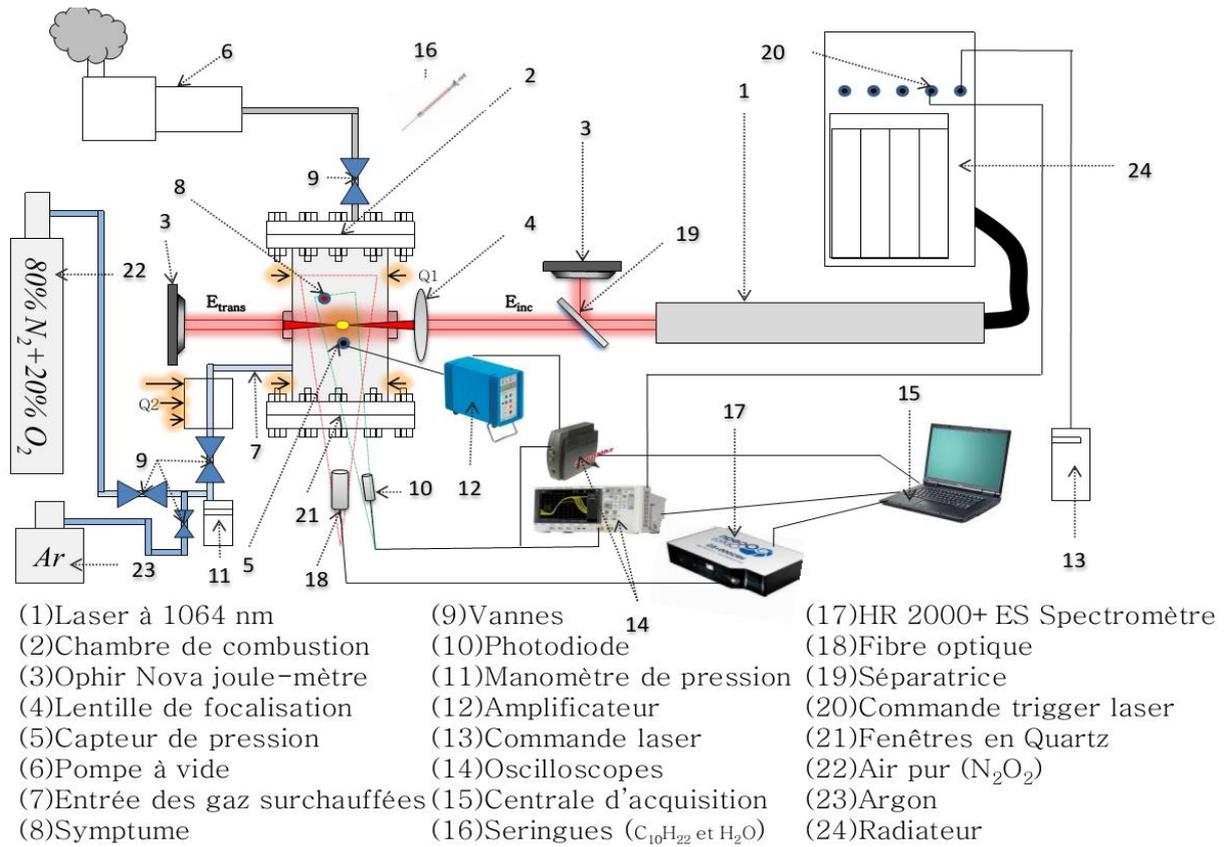


Figure III. 1: Dispositif expérimental LIQUIM.

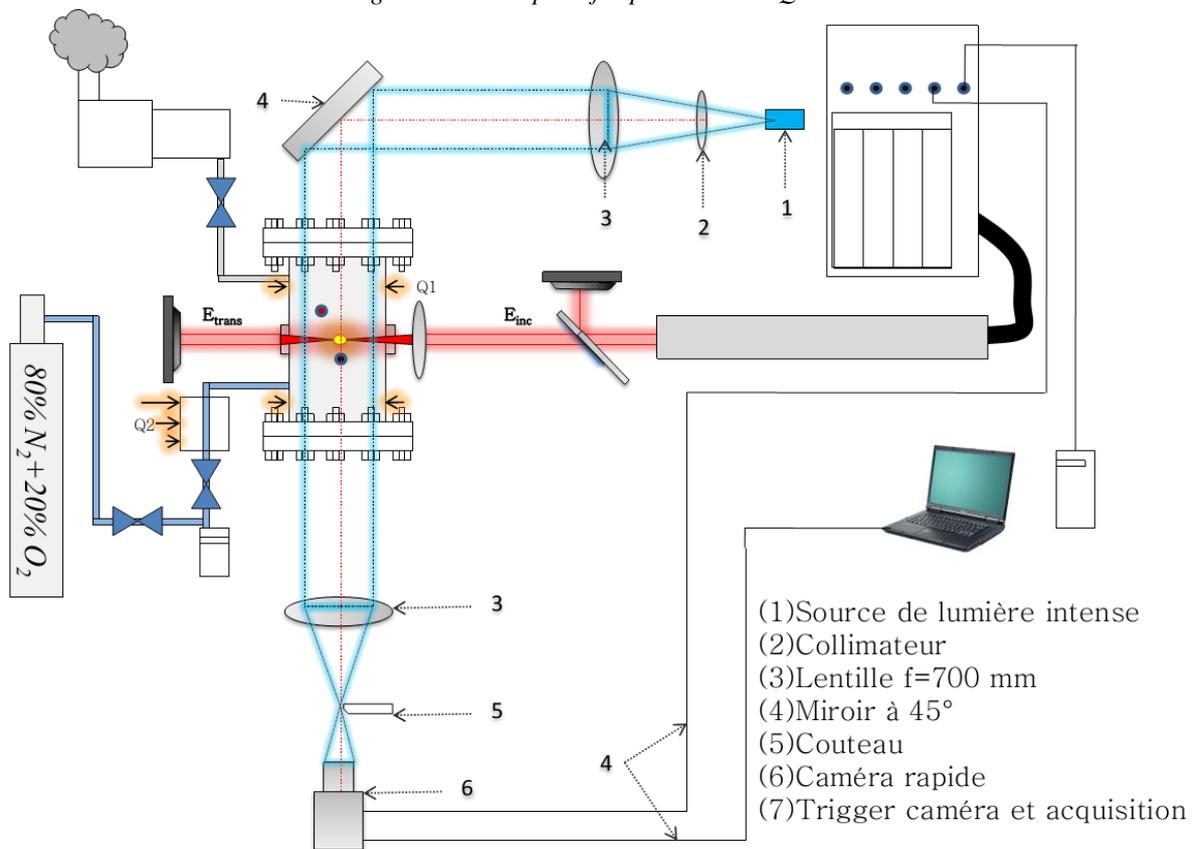


Figure III. 2 : Complément Schlieren du dispositif LIQUIM pour la visualisation des claquages et des fronts de flammes

1.1.1 Chambre de combustion

La forme de la chambre de combustion est cylindrique d'un volume de 1 litre, cette dernière est entièrement réalisée au laboratoire PRISME (site de Bourges). Elle fait 20 cm de profondeur sur 8 cm de diamètre d'alésage. Le réacteur comporte principalement 3 fenêtres optiques : un hublot frontal en quartz (épais pour supporter les surpressions $\sim < 50$ bar) permettant un accès pour une visualisation directe à l'œil ou avec des détecteurs (photodiodes, spectroscopes...).

Deux autres fenêtres optiques en verre BK 7 qui sont anti-réfléctives et de même type permettent l'accès au faisceau laser i.e. de rentrer et d'en sortir du réacteur, elles possèdent un traitement de surface adapté à la longueur d'onde du laser (1064 nm).

Dans le cas des mesures de visualisation Schlieren, on rajoute un deuxième hublot (2) *Figure III. 3* permettant l'accès à la lumière intense pour faire sortir le mouvement des gradients de densité dans le mélange gaz à l'intérieur.

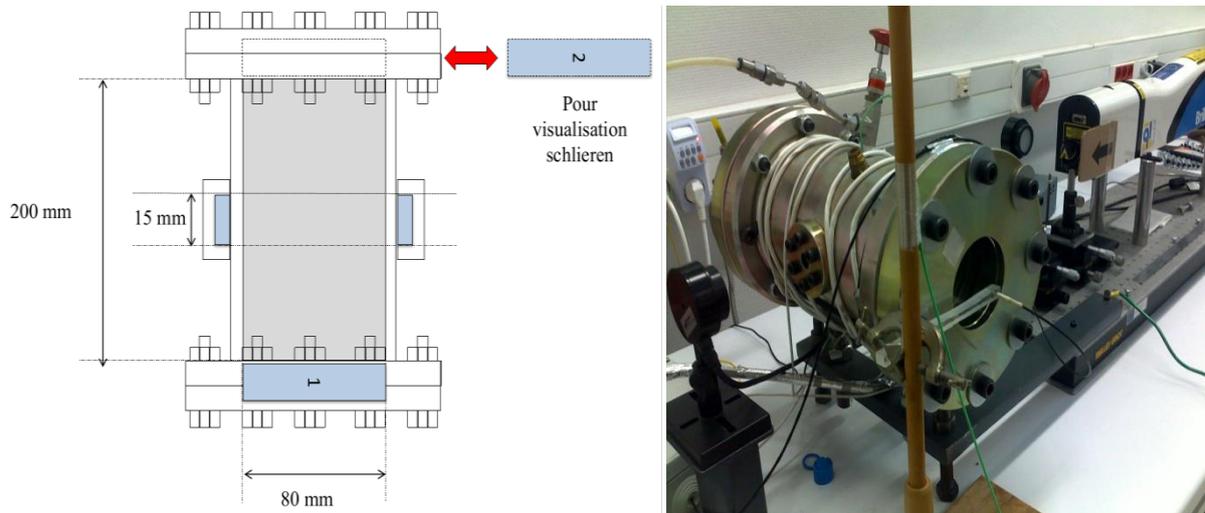


Figure III. 3: Dimensions et photo du réacteur, disposition des optiques.

Le réacteur est chauffé par un cordon chauffant et sa température est réglée pour garder valeur constante de 347 K. La chambre de combustion et ses fenêtres optiques sont souvent nettoyées par de l'alcool et de l'air sec. Concernant les expérimentations, le liquide combustible est injecté à travers un septum. Le combustible est soit du décane $C_{10}H_{22}$ à 99% de pureté fourni par ALFA AESAR référence A14732.AP, l'autre hydrocarbure $C_{10}H_{22}$ à 94% fourni par MERCK référence 8.20383.1000). L'air synthétique, de type Alphagaz (80% N_2 , 20% O_2 , $CO_2 < 1$ ppm, $CO < 1$ ppm, $H_2O < 3$ ppm, $C_nH_m < 0.1$ ppm) est utilisé pour la composition de mélange d'étude désirée.

D'autres additifs comme la vapeur d'eau, l'argon et d'autres gaz peuvent être rajoutés aux mélanges étudiés.

1.1.2 Laser Nd-YAG 360 mJ

Pendant toutes les expérimentations, on a utilisé un laser unique pulsé de type Nd-YAG (Q-Switch) de chez Quantel, modèle Brilliant. Ce dernier a une fréquence de synchronisation de 10 Hz et opère à 1064 nm. La durée de son pulse est de 4.48 ns à mi-hauteur (FWHM).

Le diamètre de faisceau de sortie mesure 6 mm, sa divergence est de 0.3962 mrad et son facteur de forme est $M^2= 1.95$. L'énergie du laser peut être réglable de 360 mJ (valeur nominale) à 0 mJ à l'aide d'un atténuateur. Une photo du laser et la répartition spatiale de l'énergie délivrée est portée sur la *Figure III. 4*. Cette analyse de profil est faite par le constructeur des lasers Quantel.

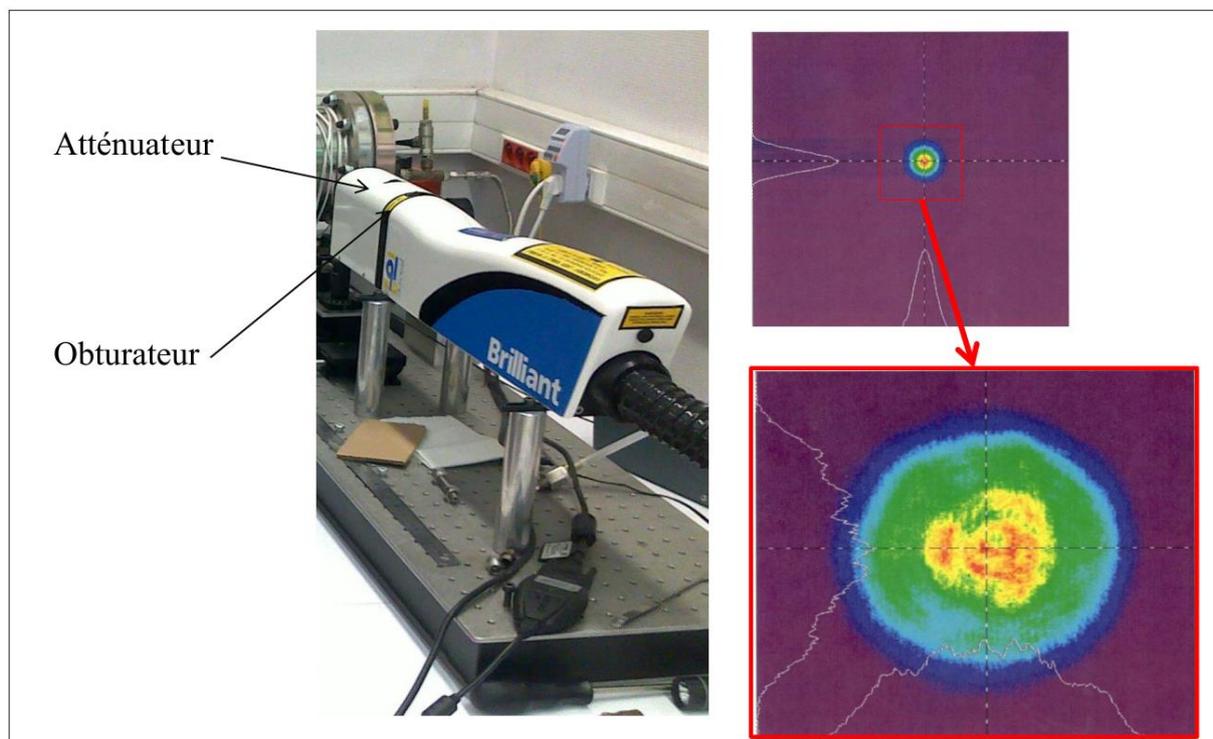


Figure III. 4 : Photo du Laser Nd-YAG et Configuration de la répartition spatiale de l'énergie laser (mesure faite par Quantel)

1.1.3 Pompe à vide

Cette pompe est caractérisée par deux étages de pompage. Ils permettent d'atteindre 0.003 mbar comme pression résiduelle de vide. Cette capacité de pompage offre aux mélanges réactifs une pureté suffisante sans une incorporation d'autres impuretés issues des produits de combustion des expérimentations antérieures.

1.1.4 L'instrumentation de mesure

L'instrumentation de mesure permet de caractériser les deux phénomènes étudiés i.e. l'énergie absorbée permettant la formation du plasma ainsi que le suivi des phénomènes inhérents à la

combustion par les différents détecteurs et capteurs (enregistrement de la pression et des signaux d'intensité lumineuse émises par le claquage et la flamme).

1.1.4.1 Oscilloscopes

Pendant les expérimentations on a utilisé deux oscilloscopes en leur fixant deux bases de temps différentes.

- *Agilent (DSOX3034A Oscilloscope 350 Mhz) série 3000 Figure III. 5 (A)* ce dernier enregistre une plage de temps comprise entre 0 et 900 ns avec une haute vitesse d'échantillonnage et peut avoir plus de 50 000 points de mesure. Sur ce dernier est branchée la photodiode large spectre de THORLABS (200 à 1100 nm) dont le temps de réponse est de 1 ns. Le but est de regarder le signal émis par le plasma à la naissance.
- *USB PCSU1000 Oscilloscope à deux canaux Figure III. 5 (B)* ce dernier est destiné pour l'enregistrement de signal de pression et de signal de la photodiode sur une gamme de temps de 0 à 500 ms et permet de voir la naissance des premiers lobes de flammes et leurs propagations dans le réacteur.

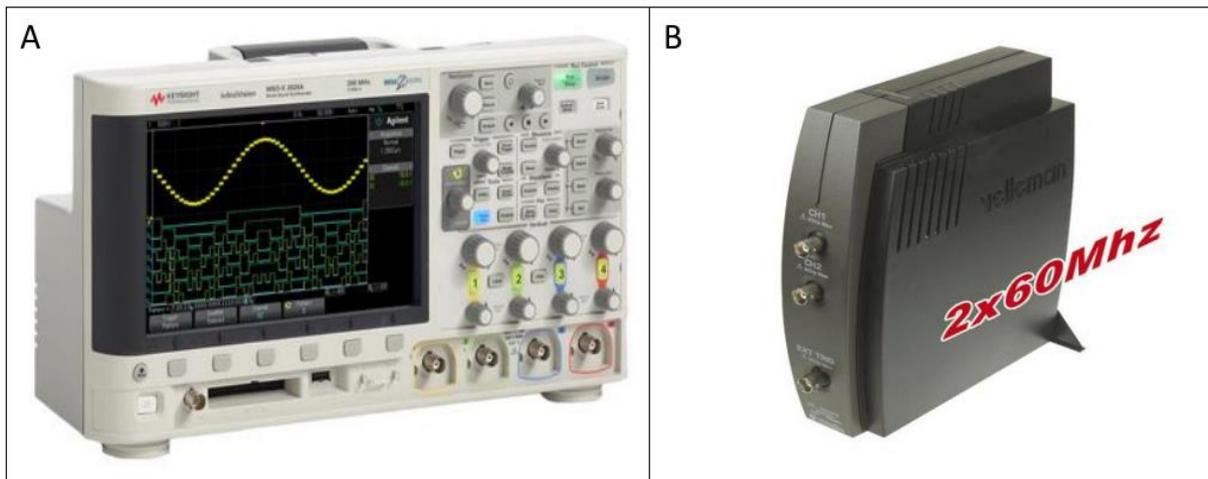


Figure III. 5: Oscilloscopes de mesure (A) Agilent (DSOX3034A Oscilloscope 350 Mhz) série 3000 (B) Oscilloscope à deux canaux pour pc-connexion USB PCSU1000

1.1.4.2 Spectroscopie HR2000+ES

Le spectroscopie est de la marque Ocean Optics. Ce dernier est caractérisé par une large ouverture optique de 189 à 1200 nm avec une résolution de 0.5 nm. Il permet de sonder le plasma à la naissance et l'enregistrement des différentes émissions radicalaires de la flamme dans l'angle solide de la fibre optique qui lui est raccordée.

Sa fréquence d'acquisition est réglée à 500 Hz i.e. une acquisition chaque 2 ms. Sa fréquence maximum est de 1000 Hz Figure III. 6.



Figure III. 6 : Spectroscopie HR2000+ES

1.1.4.3 Laser énergie mètres Ophir nova

Le dispositif de mesure de l'énergie laser est montré dans la Figure III. 7. Le banc LIQUIM dispose de deux capteurs de ce type. Un joule mètre mesure l'énergie incidente du laser et l'autre mesure l'énergie transmise i.e. sortante du réacteur.



Figure III. 7: Capteur de mesure de l'énergie laser et sa carte d'acquisition couplée vers le Pc via un USB.

Une telle disposition permet de remonter à l'énergie déposée par le laser au centre de la chambre de combustion (dans le volume focal).

Le principe de la focalisation laser et la disposition des joule-mètres sont présentés sur la Figure III. 8 en expliquant l'utilisation de la physique de transmission et de la réflexion de rayonnement dans le but de remonter à l'énergie incidente et absorbée.

L'énergie incidente (E_{inc}) est calculée par le premier joule mètres positionné transversalement au laser à l'aide de l'équation EQ III.1. L'énergie déposée par le laser est donnée par l'équation EQ III.2.

$$E_{inc} = E_{ref} \left[\frac{(1 - \rho)}{\rho} \right] \quad (\text{EQ III.1})$$

$$E_{abs} = \tau E_{inc} - E_{trans} \quad (\text{EQ III.2})$$

(ρ) : est le coefficient de réflexion de la séparatrice. (τ) est le coefficient de transmission des optiques traversées par le faisceau laser (séparatrice, lentille, fenêtres optiques d'entrée et de sortie du faisceau laser du réacteur. ($\rho \approx 0.014 \pm 0.001$ and $\tau \approx 0.97 \pm 0.01$). Ces derniers (ρ , τ) sont affectés surtout par la propreté des fenêtres optiques du réacteur lorsqu'on travaille à faible énergie incidente et à haute richesse. Ces valeurs conditionnent les périodes de nettoyage du réacteur et des optiques.

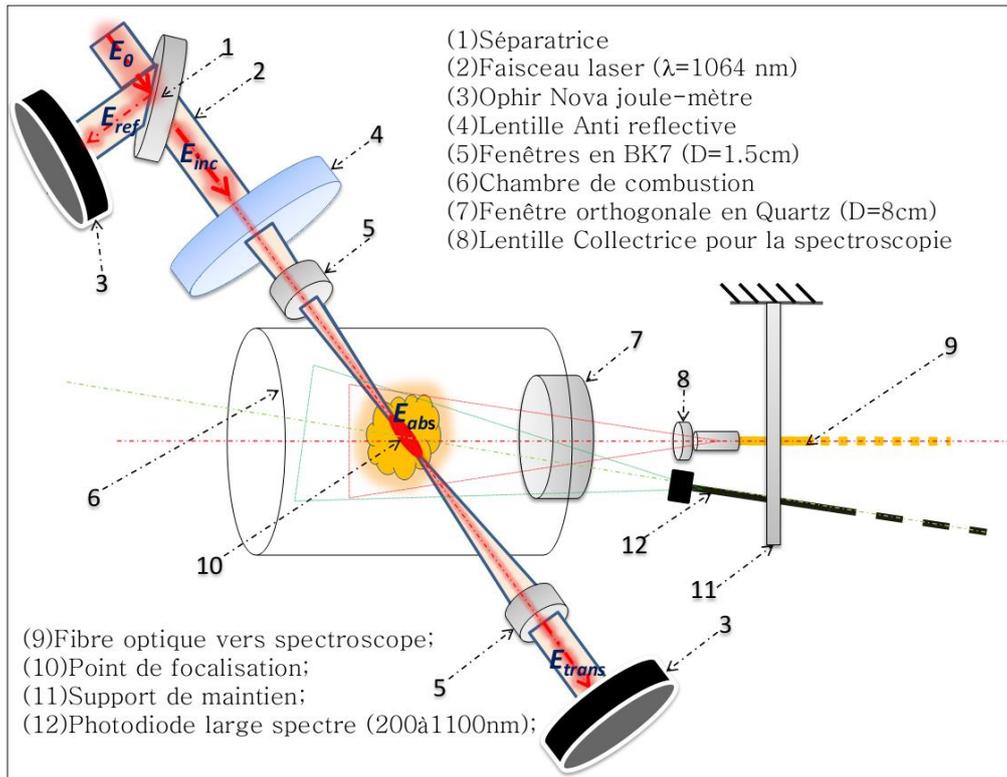


Figure III. 8 : Dispositif de mesure des énergies incidentes et déposées dans le volume focal et disposition de la photodiode et la fibre optique du spectroscope.

1.1.4.4 Caméra rapide Phantom Miro 310

Cette caméra peut faire l'acquisition de 3200 fps à haute définition i.e. 1280*800. Le temps d'ouverture de shutter est de 1 μ s.

À faible résolution, sa vitesse d'acquisition est de 650 000 fps i.e. 64*8. Ce qui la rend adaptée pour voir le détachement de l'onde de choc et la naissance des premiers lobes de flammes. La visualisation du plasma à l'échelle nanoseconde n'est pas possible.

Cette caméra est utilisée dans le complément de visualisation Schlieren *Figure III. 2* sur le banc LIQUIM, dans le but d'investiguer la propagation des premiers lobes de flamme et voir l'influence de la richesse et de la pression dessus.

1.2 Plan d'expérience et protocole expérimental

Le plan des expériences est présenté dans le *Tableau III. 1*. Dans cette première étude, nous avons réalisé 20 tirs par énergie incidente (soit pour un total d'environ 3960 tirs laser). Qui englobe l'étude des claquages et des allumages.

Le claquage est défini comme étant la formation d'un plasma sans action de propagation des premiers lobes de flammes (la cinétique chimique n'a pas assez de radicaux pour aboutir à une combustion du mélange réactif) et l'allumage implique inconditionnellement le développement et la propagation des lobes de flammes pour une combustion se propageant dans toute l'enceinte du réacteur.

Ce plan expérimental considère les deux phénomènes physiques : le claquage laser et l'allumage.

Tableau III. 1 : Plan des expériences et nombre de tirs en fonction du phénomène étudié

Composition	Paramètres d'études	Longueur focale	Nombre de tirs	Phénomène investigué
Mélanges pauvres $\Phi=0.65, 0.9$ ($C_{10}H_{22}+80\%N_2+20\%O_2$)	$P_0[\text{bar}] = [0,25, 0,5, 1, 1,5, 3]$ E_{inc} de 10 à 100 [mJ]	100 mm	2000 tirs laser	Allumages. Claquages
Proche stœchiométrie $\Phi=1.1$ ($C_{10}H_{22}+80\%N_2+20\%O_2$)	$P_0[\text{bar}] = [0,25, 0,5, 1, 1,5, 3]$ E_{inc} de 10 à 80 [mJ] $P_0=1[\text{bar}]$	100 mm 150 mm	760 tirs laser	Allumages. Claquages
Mélanges riches $\Phi=1.3, 1.6$ ($C_{10}H_{22}+80\%N_2+20\%O_2$)	$P_0= 1 \text{ bar}$ E_{inc} de 10 à 80 [mJ]	100 mm	320 tirs laser	Allumages. Claquages
Produits de combustion ($CO_2+H_2O+N_2$ +suies+ Particules+...)	Issue d'une richesse $\Phi=0.65$	$P_0= 1 \text{ bar}$ E_{inc} de 10 à 100 [mJ]	150 mm	200 tirs laser Claquages
	Issue d'une richesse $\Phi=1.1$	$P_0= 1 \text{ bar}$ E_{inc} de 10 à 100 [mJ]	150 mm	200 tirs laser Claquages
	Issue d'une richesse $\Phi=2.0$	$P_0= 1 \text{ bar}$ E_{inc} de 10 à 100 [mJ]	150 mm	200 tirs laser Claquages
($80\%N_2+20\%O_2$) Air synthétique	$P_0= 1 \text{ bar}$ E_{inc} de 10 à 100 [mJ]	150 mm	200 tirs laser	Claquages

Un complément d'étude est réalisé avec la focale 150 mm dans le but de déterminer les délais d'allumages et les énergies minimales d'inflammation des mélanges $C_{10}H_{22}/(N_2+O_2)$. Ce complément est fait dans des conditions initiales de 1 bar et pour les richesses (0.65, 0.9, 1.1, 1.3, 1.6 et 2) pour un nombre total de 2400 tirs laser.

Tous les essais d'allumages ont été effectués dans un réacteur propre. La chambre de combustion est placée sous vide par une pompe à deux étages à une pression $P \approx 3 \times 10^{-3}$ mbar comme atmosphère résiduelle. Le liquide de $C_{10}H_{22}$ n-décane est ensuite injecté à l'intérieur de la chambre à travers un septum à l'aide d'une seringue micrométrique.

Les parois de la chambre et la ligne d'admission d'air sont maintenues à la température $T = 347$ K pour éviter toute condensation du combustible. La pression du n-décane évaporé est vérifiée à chaque essai. L'air synthétique (80% N_2 + 20% O_2) est ensuite introduit avec un débit modéré pour assurer le maintien d'un mélange au repos. Les richesses sont calculées à partir de la masse de combustible et les différentes pressions initiales fixées.

Afin de maintenir la propreté du réacteur, les produits de combustion résiduels sont fréquemment éliminés après chaque essai, par le remplissage de la chambre avec de l'air synthétique et l'application du vide répétée trois fois de suite. Les surfaces intérieures du réacteur et les optiques sont aussi nettoyées régulièrement.

La probabilité de claquage ou d'allumage est définie comme le rapport des essais positifs sur le total du nombre de coups correspondant à l'énergie incidente fixée.

Tableau III. 2 : Exemple d'une feuille de données expérimentales (Méthodologie de travail)

Numéro de tir	Einc [mJ]	Eabs [mJ]	(0 or 1) Allumage	(0 or 1) Claquage	Signal de pression [bar]	Signal Photodiode	Spectres claquages et flammes
1	29,86	2,60	1	1	Pr1(t)	Ph1(t)	Spec1(t)
2	30,09	2,69	1	1	Pr2(t)	Ph2(t)	Spec2(t)
3	30,06	3,06	0	1	-	Ph3(t)	Spec3(t)
4	29,95	3,31	1	1	Pr4(t)	Ph4(t)	Spec4(t)
5	29,70	3,35	1	1	Pr5(t)	Ph5(t)	Spec5(t)
6	30,01	0,14	0	0	-	-	-
7	29,64	2,67	1	1	Pr7(t)	Ph7(t)	Spec7(t)
.
.
.
20	30,09	2,94	1	1	Pr20(t)	Ph20(t)	Spec20(t)

2 Résultats des expériences (effets des conditions initiales)

2.1 Claquages et taux d'absorption du $C_{10}H_{22}/(N_2+O_2)$

Il faut savoir que l'allumage laser est la conséquence d'une interaction intense entre une impulsion laser et la composition du milieu gaz qui peut être monoatomique (Ex : Argon), diatomique (Ex : Azote) ou avec plusieurs types de molécules formant un mélange (Ex : Ar, H_2O , $C_{10}H_{22}$).

L'ionisation de gaz peut être obtenue par les processus déjà discutés en chapitre II à l'exemple de la multi photon absorption et le Bremsstrahlung inverse essentiellement pour élever la densité d'électrons dans le volume focale.

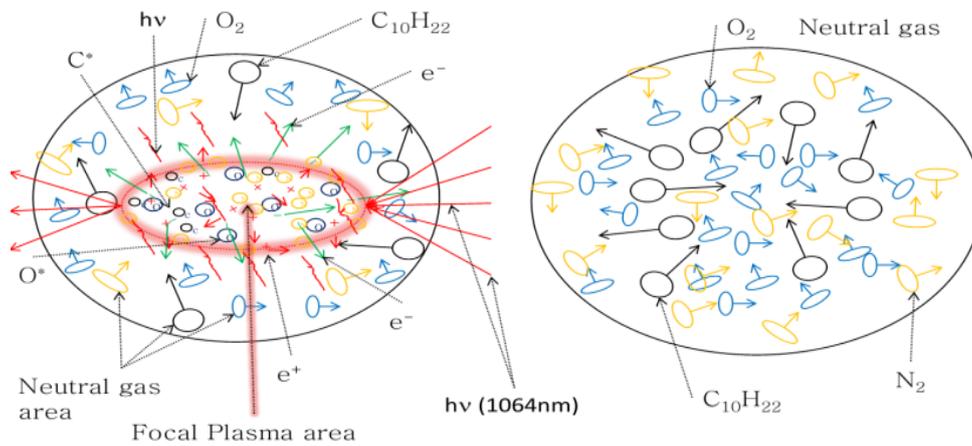


Figure III. 9 : Gaz neutre et état plasma dans le volume focal

2.1.1 Influence de la pression sur l'absorption laser

La Figure III. 10 présente les résultats de l'effet de la pression et de la concentration C₁₀H₂₂ dans l'air synthétique N₂+O₂. L'ensemble représente la composition des mélanges enflammés. Il a été constaté que la faible pression augmente l'énergie de seuil de claquage (pour l'énergie incidente) et affecte l'écart-type de l'énergie absorbée. À 3 bar de pression initiale, l'écart type est très faible par rapport aux autres pressions.

Les courbes des Figure III. 10 montrent aussi l'effet de la richesse sur le seuil de claquage dans le cas d'un mélange pauvre et d'un mélange proche stœchiométrie. On constate que la concentration en combustible n'a pas de grosse influence sur le seuil de claquage en raison de la faible pression partielle de n-décane dans le réacteur.

Par exemple, les deux mélanges à 1 bar sont caractérisés par $\phi=0.65$, par un titre molaire $X_{C_{10}H_{22}}=0.0087$ ($P_{C_{10}H_{22}}=8.7$ mbar) et pour $\phi=1.1$, par $X_{C_{10}H_{22}}=0.0147$ ($P_{C_{10}H_{22}}=14.7$ mbar).

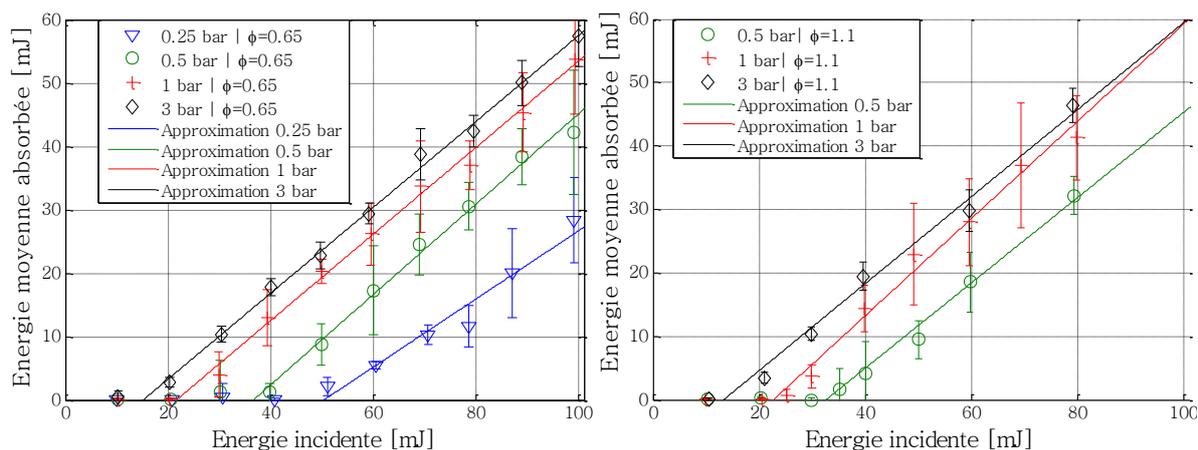


Figure III. 10 : Effet de la pression et de la richesse sur la moyenne d'absorption de l'énergie. Cas d'un mélange pauvre et proche stœchiométrie ($f=100$ mm)

2.1.2 Influence de la pression et la richesse sur le seuil de claquage

Sircar (Sircar, 1996) a rapporté que l'irradiance seuil de claquage dans l'air peut être ajustée en fonction de la pression par la relation donnée par l'Eq.III.3. Le seuil I_{th} est exprimé en W/cm^2 et obtenu par l'intersection des droites de la Figure III. 10 avec l'axe des énergies incidentes. Celle-ci est calculée à partir de la puissance du laser et le rayon focal (Cf. chapitre .II).

La même chose peut être réalisée en prenant en compte l'énergie seuil (EQ III.4).

$$I_{th} = \kappa P^\beta \quad (\text{EQ III.3})$$

$$E_{inc} = \xi P^\beta \quad (\text{EQ III.4})$$

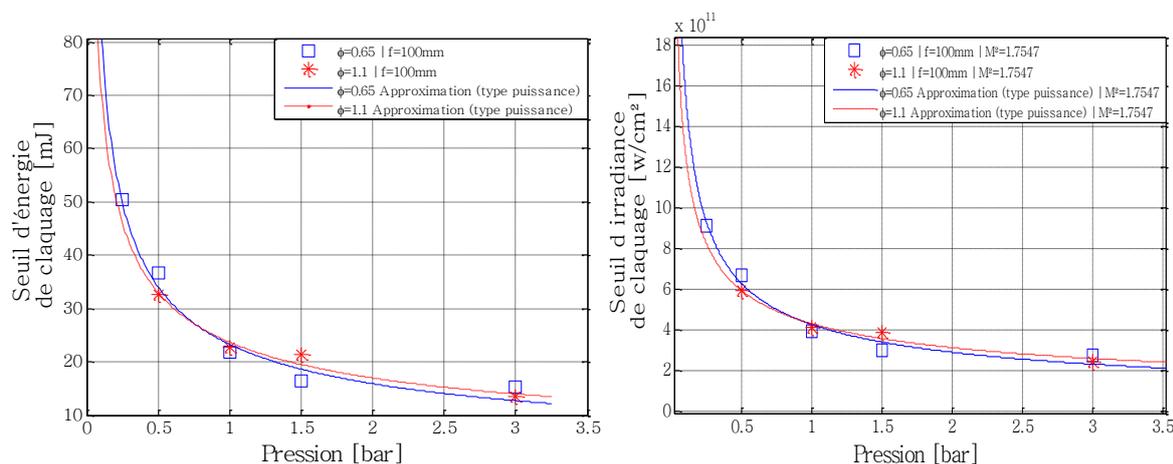


Figure III. 11: Influence de la richesse et de la pression sur le seuil de claquage.

κ , ξ et β : paramètres d'optimisation calculés à partir des données expérimentales. Ces derniers sont rapportés dans le Tableau III. 3 pour un mélange pauvre et un mélange proche stœchiométrie. La valeur déterminée pour β est en accord étroit avec les résultats de (Sircar,

1996) qui a travaillé aussi avec un faisceau à $\lambda = 1064$ nm. La valeur de l'exposant β se situe entre -0,3 et -0,9 pour tous les gaz (Ar, N₂ et O₂) en considérant cette longueur d'onde.

Tableau III. 3: κ , ζ et β Paramètres d'optimisations expérimentales

Richesse	κ [W/cm ²]	ζ [mJ]	β
$\Phi=0,65$	4,247 ¹¹	23,46	-0,5590
$\Phi=1,10$	4,291 ¹¹	23,70	-0,4637

Les valeurs des exposants trouvés dans le *Tableau III. 3* restent dans la plage de valeurs trouvées par Sircar même avec la présence de vapeur de combustible.

2.1.3 Influence de la pression sur la transmission laser

Dans cette partie on va s'intéresser à la transmission de l'énergie du pulse laser à travers le volume focal en considérant différentes pressions pour un mélange pauvre. Les résultats montrent que l'augmentation de la pression provoque l'atténuation de la transmission du faisceau laser.

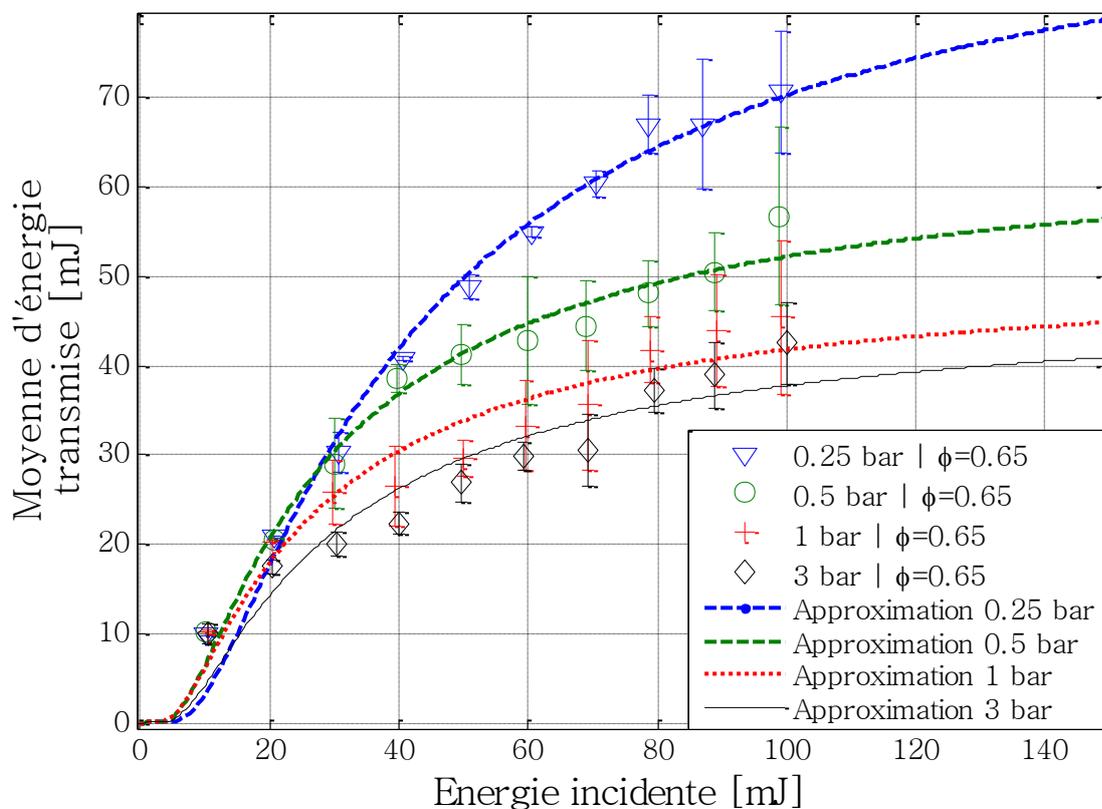


Figure III. 12: Influence de la pression sur la transmission de l'énergie laser à travers le volume focal.

L'influence de la focale est étudiée par (Beduneau, 2003) avec des mélanges de méthane/air et ses résultats montrent qu'une focale plus courte atténue la transmission du faisceau laser.

Nos résultats présentent presque les mêmes tendances que celles de (Beduneau, 2003), si on considère des moyennes calculées pour chaque énergie incidente.

A ne pas confondre l'effet d'atténuation (tendance) et le taux d'atténuation (quantification). Ces derniers ne sont pas pareils i.e. un résultat issu d'une focal plus longue peut donner le même résultat en travaillant à faible pression.

2.1.4 Loi de Beer Lambert et atténuation du faisceau laser

Le coefficient d'atténuation peut être calculé en utilisant la loi de Beer Lambert (EQ III.5)

$$\frac{E_{tran}}{E_{inc}} = \exp(-K_v \cdot l_f) \quad (\text{EQ III.5})$$

La grandeur l_f est donnée par l'équation EQ II. 20 dans le chapitre II. Il est évident que lorsque E_{inc} est inférieur au niveau de seuil de claquage, le mélange $C_{10}H_{22}+N_2+O_2$ est pratiquement transparent à la longueur d'onde du laser et une grande partie de l'énergie de ce dernier est transmise à travers le volume focal sans atténuation.

Lorsqu' E_{inc} atteint le seuil de claquage, une étincelle apparaît au niveau du volume focal, et l'énergie du laser est plus au moins fortement atténuée. Cela dépend de la valeur de l'énergie incidente.

La *Figure III. 13* montre l'effet de la pression sur le rapport de la moyenne d'énergie transmise sur l'énergie incidente en fonction de l'énergie incidente.

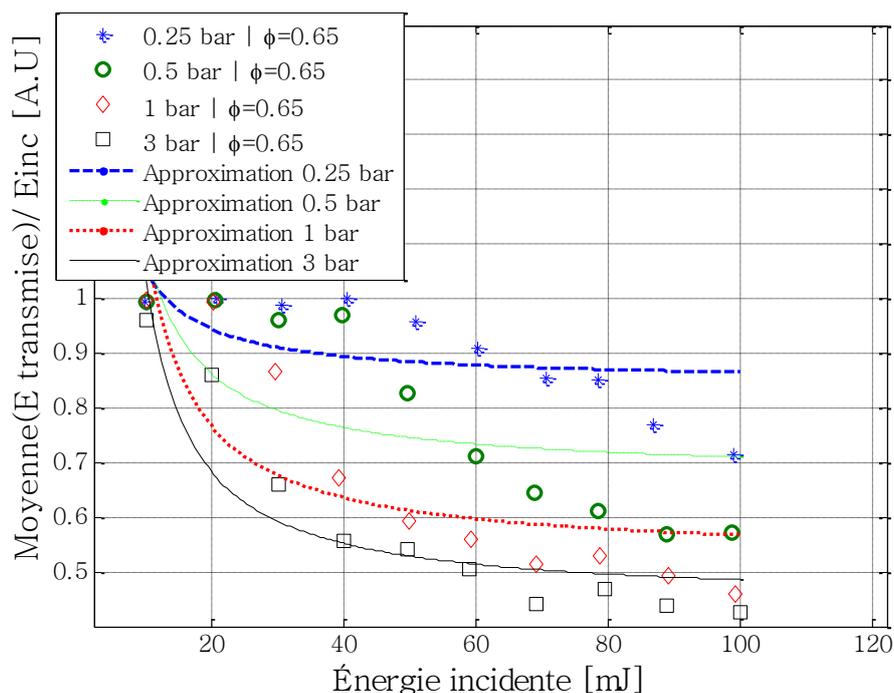


Figure III. 13: Rapport de la moyenne de l'énergie transmise à l'énergie incidente.

2.1.4.1 Estimation du coefficient d'atténuation K_v

Les coefficients d'atténuations sont dans l'intervalle de 0,1 à environ 100 cm^{-1} pour l'air et le méthane (Tran X. Phuoc, 1999), (Ma et al, 1998) donnent une valeur de 22.8 cm^{-1} , valeurs calculées à 1064 nm . Ce qui est une valeur comparable avec ce qu'on a calculé dans la présente étude.

Celle-ci donne une valeur avoisinant 21 cm^{-1} à une pression de 1 bar comme on peut le voir sur la *Figure III. 14*.

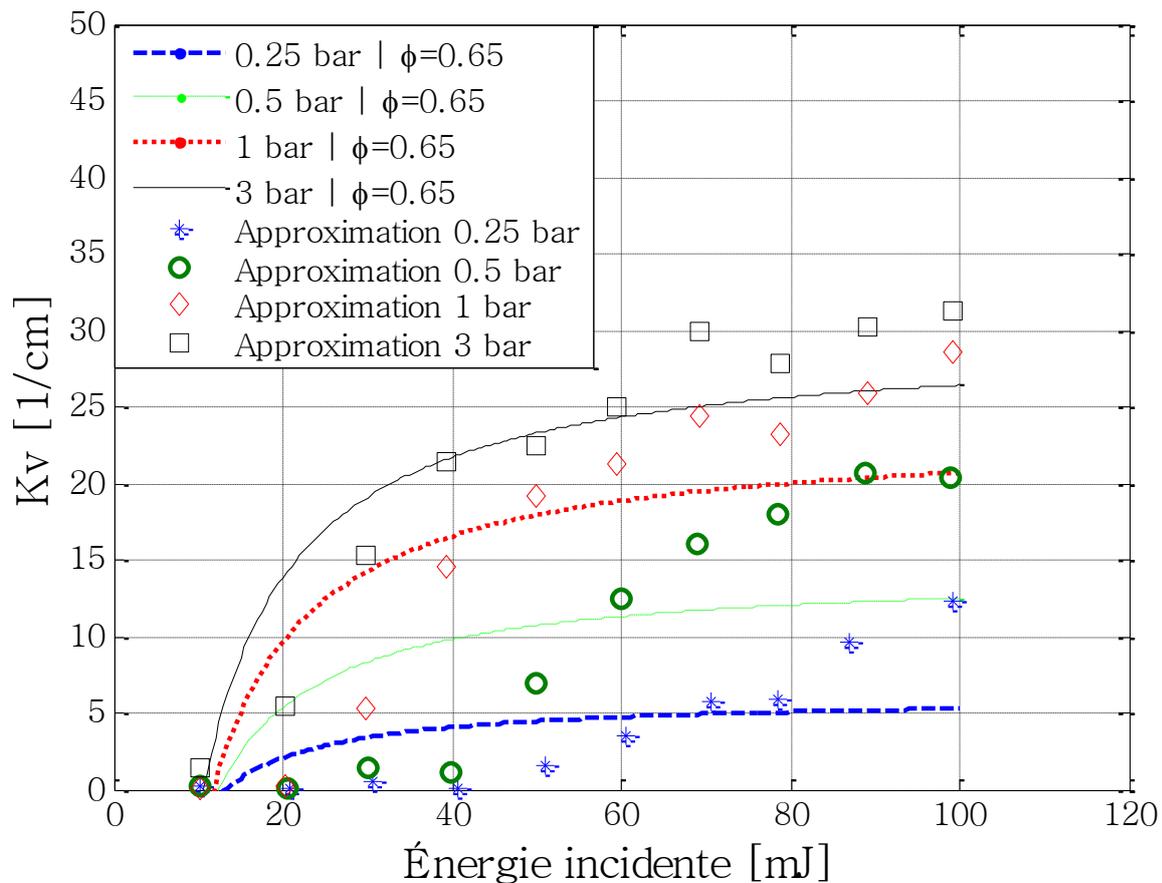


Figure III. 14: Effets de la pression sur le coefficient d'atténuation K_v .

Les approximations appliquées sur les moyennes d'énergie transmises calculées sont approximées par des exponentielles types (EQ III.5) pour donner une moyenne sur l'ensemble des mesures afin d'approximer ce coefficient en fonction de l'énergie incidente.

2.1.4.2 Estimation de la température électronique (Beer-Lambert)

La connaissance de la valeur de coefficient d'atténuation peut permettre l'estimation de la température électronique, le coefficient d'atténuation est donné par l'équation (EQ III.6) en fonction de la densité électronique et de la température électronique pour une longueur d'onde de 1064 nm (Tran X. Phuoc, 1999).

$$K_v = 0.1645 \times 10^{-34} \frac{n_e^2}{T_e^{0.5}} \left[1 - \exp\left(-\frac{13.5 \times 10^3}{T_e}\right) \right] \quad (\text{EQ III.6})$$

La résolution de cette équation en exploitant les valeurs des coefficients d'atténuations K_v présentés dans la *Figure III. 14* et une certaine estimation de la densité électronique à la pression considérée dans l'étude expérimentale et aux énergies incidentes utilisées. Selon (Tran X. Phuoc, 1999) la densité électronique à 1 bar a comme valeur approximative 10^{20} électrons cm^{-3} . Cette densité est fonction de la pression initiale du gaz aussi, dans l'étude on fait un produit de cette densité avec la pression en bar pour une certaine approximation.

$$\frac{K_v \times T_e^{0.5}}{0.1645 \times n_e^2 \times 10^{-34}} = \left[1 - \exp\left(-\frac{13.5 \times 10^3}{T_e}\right) \right] \quad (\text{EQ III.7})$$

Pour remonter à la température du plasma on se propose de faire une résolution graphique de l'équation EQ III.8 en considérant un intervalle de température électronique de 0 à 2×10^6 K.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{K_v \times T_e^{0.5}}{0.1645 \times n_e^2 \times 10^{-34}} \quad \text{Terme(1)} \\ \left[1 - \exp\left(-\frac{13.5 \times 10^3}{T_e}\right) \right] \quad \text{Terme(2)} \end{array} \right. \quad (\text{EQ III.8})$$

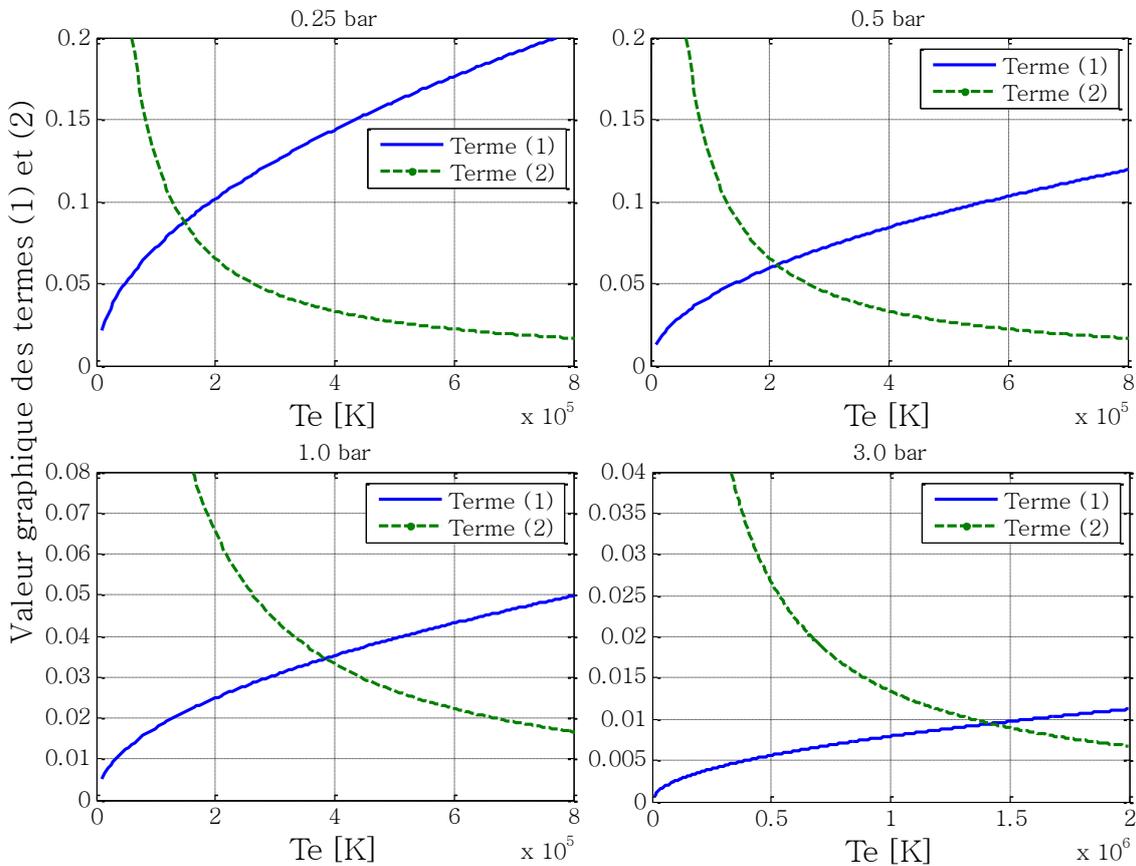


Figure III. 15: Représentation graphique du terme(1) et (2) l'intersection définit une estimation de la température électronique du plasma.

Les valeurs calculées et définies par les intersections ($P=0,25$ bar, $T_e=1,49 \times 10^5$; $P=0,5$ bar, $T_e=2,14 \times 10^5$ K; $P=1$ bar, $T_e=3,84 \times 10^5$ K; $P=3$ bar, $T_e=1,42 \times 10^5$ K.) approchent les valeurs calculées par la référence citée précédemment.

Le résultat montre que l'augmentation de la pression et l'accroissement de l'irradiance provoquent une plus forte atténuation (Kv) et une augmentation de la température électronique.

2.1.5 Effet de la composition du mélange sur l'absorption

La *Figure III. 16* clarifie l'utilité de la recirculation des gaz d'échappement (EGR) et les systèmes de turbocompresseur (Rinaldini, Breda, Fontanesi, & Savioli, 2015) incorporés dans les moteurs à combustion interne, en particulier les moteurs à allumage commandé (Boretti, 2013) (Xie et al., 2016). Dans cette partie de l'étude nous nous sommes concentrés uniquement sur le phénomène de claquage. Pour la combustion, qui prend compte des réactions de cinétiques chimiques le lecteur peut voir (Can et al., 2016) (Zhang, Xu, Li, & Shao, 2016) (Zheng et al., 2015)(Lee & Huh, 2014). Pour démontrer l'intérêt d'EGR sur le seuil de claquage, certains paramètres spécifiques ont été calculés, comme I_{th} seuil d'irradiance, E_{inc} seuil d'énergie incidente et le taux d'absorption moyen A_i de quatre mélanges de composition différentes comme indiqué dans le *Tableau III. 1*.

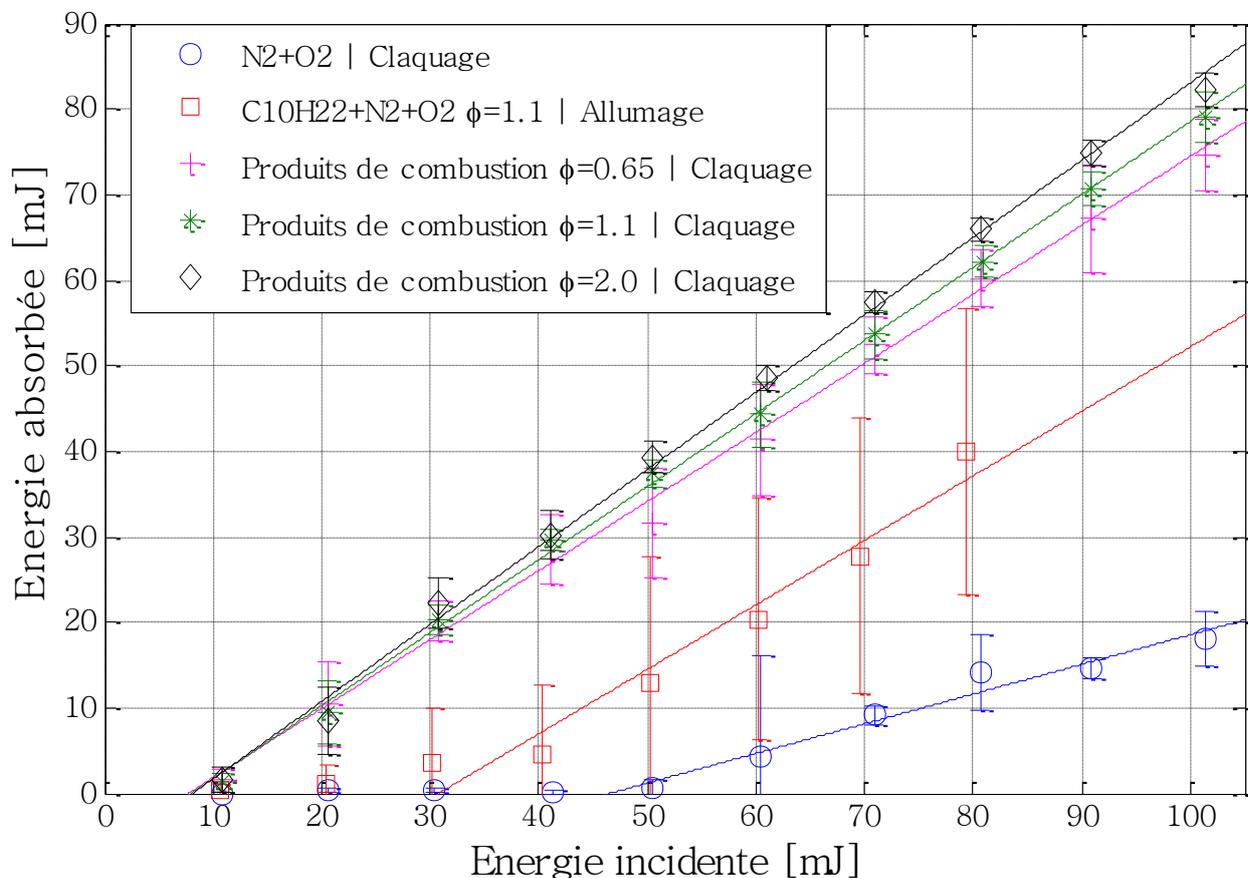


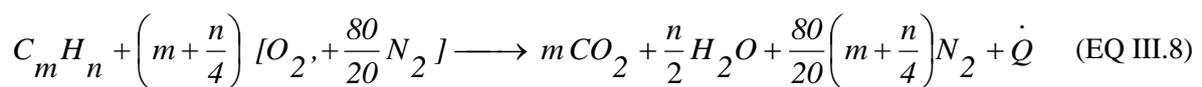
Figure III. 16: Effets de la composition du mélange sur le taux d'absorption

Comme montré dans la *Figure III. 16* l'absorption est meilleure dans le cas des produits de combustions issus des allumages dans les configurations de mélanges à des richesses (0,65, 0,9 et 1,1). L'absorption est modérée pour le mélange réactif proche stœchiométrie et sensiblement très basse pour l'air synthétique (80%N₂+20%O₂).

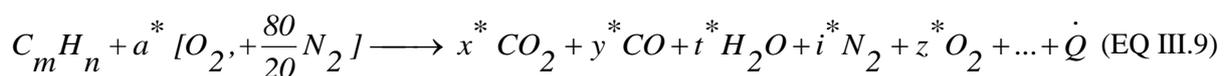
Comme indiqué dans le *Tableau III. 5*. Ce résultat peut être expliqué par les différentes sections efficaces d'absorption de photons pour chaque composant élémentaire du mélange de gaz. Ces dernières sont directement liées à la longueur d'onde des photons du faisceau laser émis à $\lambda=1064$ nm. Cette différence peut également être expliquée par l'effet de résonance de certaines molécules telles que CO, CO₂ et H₂O dans le proche infrarouge, celles-ci peuvent être rapidement excitées en conduisant le processus vers le claquage résonant. La présence probable des suies et des particules pour $\phi = 1,1$ et $\phi = 2$ est un autre point à prendre en considération pour expliquer la forte absorption dans ces mélanges particuliers.

La *Figure III. 16* montre également que l'écart-type sur l'énergie absorbée est très élevé pour le mélange réactif C₁₀H₂₂ + N₂ + O₂ mais faible pour les autres mélanges. Cette différence peut être expliquée par le volume important occupé par les molécules de C₁₀H₂₂ et la manière dont elles sont orientées par rapport à la direction des photons du faisceau laser dans la zone focale. Il est bien évident que la molécule de n-décane est linéaire, longue et poly-atomique, de sorte que ses caractéristiques géométriques ont un effet supplémentaire sur l'écart type des énergies absorbées mesurées.

Dans le cas d'un mélange stœchiométrique, la combustion de n-décane est complète, celle-ci est donnée par l'EQ III.8). Les produits de combustion sont principalement H₂O, CO₂ et N₂.



S'il y a un déséquilibre entre l'oxydant et le combustible, la combustion de n-décane est donnée par l'EQ III.9. Dans ce cas, un composant du mélange de départ reste et d'autres espèces peuvent être formées comme le CO, les NO_x, les suies et des particules.



Les pressions partielles de la composition finale des produits de combustion issus des trois richesses ont été déterminées par des simulations 0D CHEMKIN PRO dans le cas d'un réacteur homogène fermé (*SENKIN* module) via le schéma cinétique Aachen modifié par Honnet (900 réactions élémentaires avec 122 espèces) (Honnet, Seshadri, Niemann, & Peters, 2009). Les résultats sont présentés dans le *Tableau III. 4*.

Tableau III. 4 : Pression partielle en mbar des composants de mélange après claquage calculée à l'équilibre en 0 D par Chemkin pro.

Composition	$\Phi=0.65$ Produits de combustion	$\Phi=1.1$ Produits de combustion	$\Phi=2.0$ Produits de combustion	$\Phi=1.1$ Réactif	(N_2+O_2)	Energie d'ionisation
Gaz	Pression partielle [mbar]					$E_{i, n^{\circ}1}$ [eV]
N_2	760,74	711,34	583,81	788,23	800	15,80
CO_2	81,48	79,03	19,14	-	-	13,62
H_2O	89,63	127,85	74,67	-	-	12,62
H_2	0,46	13,08	142,91	-	-	15,4
O_2	60,21	3,90	1,76 ⁻⁰⁵	197,05	200	12,5
CO	2,38	53,68	178,90	-	-	14,01
H	0,12	2,82	0,50	-	-	13,52
O	0,74	0,98	7,85 ⁻⁰⁵	-	-	13,55
$C_{10}H_{22}$	1,91 ⁻²⁸³	0	8,32 ⁻²⁷²	14,70	-	10,2
...	-	-

A partir de ces résultats, on peut conclure que les espèces CO , CO_2 , H_2 et H_2O sont des agents qui augmentent l'absorption de photons, et donc facilitent la création des claquages. Le taux d'absorption moyen a été calculé pour les différents mélanges à l'aide de l'équation l'EQ III.10. Les résultats des paramètres seuils (E_{th} : pour *Energy threshold*) de claquage et le taux d'absorption $\overline{A}_{mixture}$ sont rapportés dans le *Tableau III. 5*. Les données des seuils proviennent de la figure II-16 par intersection des droites avec l'axe des abscisses.

Il peut être noté que la faible énergie d'ionisation des espèces CO_2 et de H_2O comprises dans les produits de combustion a certainement un effet sur les taux d'absorptions enregistrés. Un effet similaire a été observé avec le mélange réactif proche stœchiométrie $E_{iC_{10}H_{22}} = 10,2$ eV.

$$\overline{A}_{mixture} = \frac{\overline{E}_{abs} - E_{th}}{E_{inc}} \quad (\text{EQ III.10})$$

Tableau III. 5: Paramètres seuils des claquages dans les mélanges considérés.

composition du mélange	$\Phi=0,65$ Produits de combustion	$\Phi=1,1$ Produits de combustion	$\Phi=2,0$ Produits de combustion	$\Phi=1,1$ Réactif	(N_2+O_2)
paramètres expérimentaux					
$E_{inc, th}$ [mJ]	7,772	8,054	8,171	30,82	46,6
I_{th} [W/cm ²]	1,40 ¹¹	1,45 ¹¹	1,47 ¹¹	5,58 ¹¹	8,43 ¹¹
Taux d'absorption moyen $\overline{A}_{mixture}$	0,807	0,854	0,904	0,754	0,347

Pour le mélange ($N_2 + O_2$), les paramètres de seuil de claquage sont les plus élevés et ce mélange a été caractérisé par le taux d'absorption le plus faible.

3 Statistique sur les claquages et les allumages laser

Les données expérimentales collectées (voir l'exemple rapporté dans le *Tableau III. 2*) ont été statistiquement étudiées pour les 5 mélanges considérés précédemment. Les résultats stochastiques sont approchés par une fonction de distribution logarithmique afin d'étudier la répartition des probabilités de claquage et d'allumage dans le cas des mélanges réactifs.

Des études antérieures ont utilisé plusieurs fonctions de distribution dans une approche probabiliste pour différents phénomènes stochastiques. Par exemple, l'étude de Bane (Bane, Shepherd, Kwon, & Day, 2011) a utilisé une loi logistique. Dans la présente étude, nous avons utilisé la loi Galton donnée par l'EQ III.11.

$$\begin{cases} P(E_{inc}, C_1, C_2) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left[\frac{\ln(E_{inc}) - C_1}{C_2 \sqrt{2}} \right] \\ P(E_{abs}, C_1, C_2) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left[\frac{\ln(E_{abs}) - C_1}{C_2 \sqrt{2}} \right] \end{cases} \quad (\text{EQ III.11})$$

L'originalité de ce travail est de considérer deux paramètres d'étude qui sont l'énergie incidente et l'énergie absorbée.

Où C_1 et C_2 sont les paramètres à optimiser à partir des données expérimentales brutes collectées concernant soit la probabilité de claquage ou d'allumage P .

À partir des paramètres optimisés, nous pouvons obtenir l'espérance mathématique, la médiane (E50) et la variance ((EQ III.12), (EQ III.13) et (EQ III.14) sur les deux phénomènes à considérer en fonction de la composition du mélange, l'effet de la pression et de la richesse du mélange.

$$\text{Espérance} = e^{C_1 + 0.5C_2^2} \quad (\text{EQ III.12})$$

$$\text{Médiane} = e^{C_1} \quad (\text{EQ III.13})$$

$$\begin{cases} \text{Variance} = \left(e^{C_2^2} - 1 \right) e^{2C_1 + C_2^2} \\ \text{Ecart type} = \sqrt{\text{Variance}} \end{cases} \quad (\text{EQ III.14})$$

3.1 Effets de la composition des mélanges sur les statistiques de claquage

Cette première étude ne concerne que l'étude des claquages en montrant l'effet de la composition des mélanges. Elle a été réalisée en fonction de deux paramètres : d'abord, en prenant en compte la perturbation venant de l'extérieur et donc, le paramètre d'étude est

l'énergie incidente (E_{inc}) (Figure III. 17). Deuxièmement, le paramètre d'étude est pris comme étant la perturbation interne et dans ce cas, on considère l'énergie absorbée (Figure III. 18).

3.1.1 Loi statistique en énergie incidente

La Figure III. 17 représente la loi de répartition stochastique des claquages (S.L : Stochastic Law EQ III.11) développée à partir des analyses des données expérimentales. Les résultats suggèrent que les mélanges composés de produits de combustion sont très sensibles aux claquages, sachant que 100% de claquage est atteint à 30 mJ d'énergie incidente.

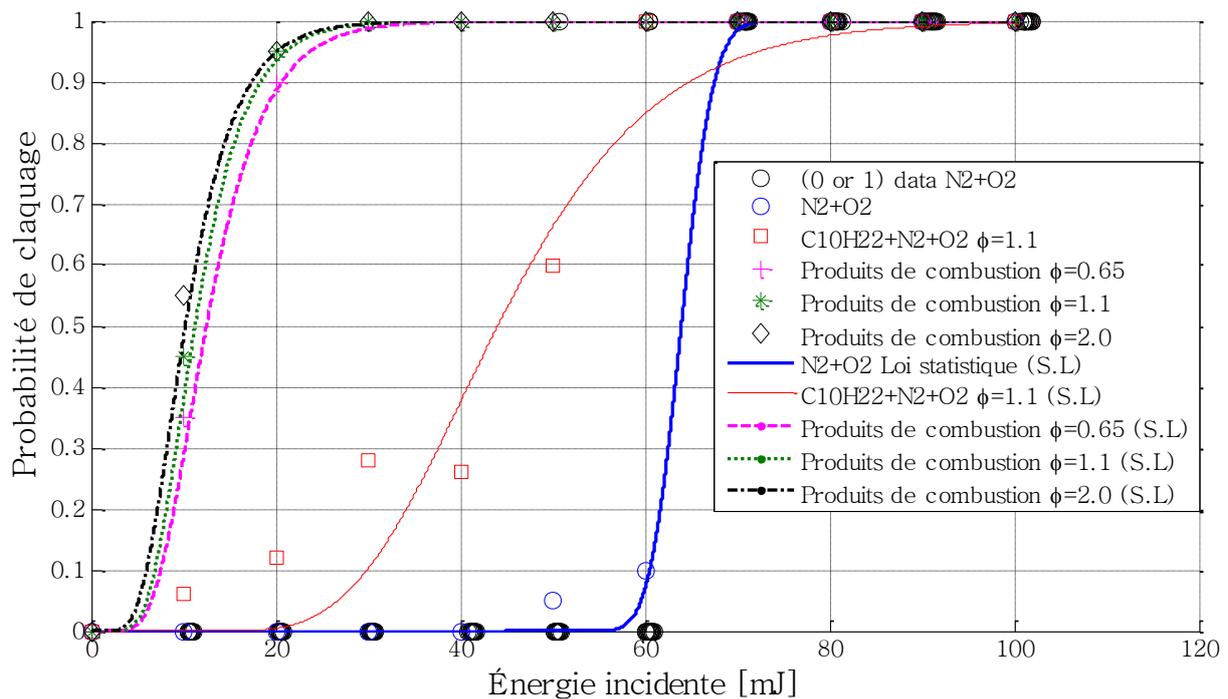


Figure III. 17: Probabilité de claquage en fonction de l'énergie incidente pour différents mélanges.

Le mélange $N_2 + O_2$ est moins réceptif au claquage. Une brusque variation de la répartition de probabilité a eu lieu à des énergies supérieures à 60 mJ, et 100% a été atteint pour $E_{inc} = 70$ mJ. Le mélange ($C_{10}H_{22} / N_2 + O_2$) à $\phi = 1.1$ se situe entre les résultats des mélanges de produits de combustion et celle du mélange $N_2 + O_2$, la probabilité des claquages couvre un large intervalle d'énergie allant de 10 mJ à 90 mJ.

Les statistiques essentielles de cette figure sont présentées dans le Tableau III. 6 qui montrent un écart-type élevé pour le mélange $C_{10}H_{22} / N_2 + O_2$. Ce résultat peut être expliqué par les caractéristiques géométriques, physiques et thermodynamiques de la molécule $C_{10}H_{22}$ par rapport à d'autres molécules indiquées dans le Tableau III. 4.

Tableau III. 6: Paramètres statistiques des claquages en fonction de l'énergie incidente.

Paramètres	C_1	C_2	Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane ($E_{50C_{inc}}$) [mJ]
<i>Compositions</i>					
N_2+O_2	4,16	0,04	63,98	2,73	63,92
$C_{10}H_{22}$ à $\phi= 1,1$	3,79	0,30	46,10	14,26	44,04
Produits de combustion $\phi= 0,65$	2,52	0,39	13,49	5,51	12,48
Produits de combustion $\phi= 1,1$	2,42	0,38	12,09	4,80	11,24
Produits de combustion $\phi= 2,0$	2,32	0,42	11,13	4,83	10,21

3.1.2 Loi statistique en en énergie absorbée

Le même travail a été fait en utilisant l'énergie absorbée en tant que paramètre d'étude dans la loi de probabilité (S.L). Les résultats sont présentés sur la *Figure III. 18* et nous pouvons observer que les seuils sont beaucoup plus faibles ainsi que les écarts type associés.

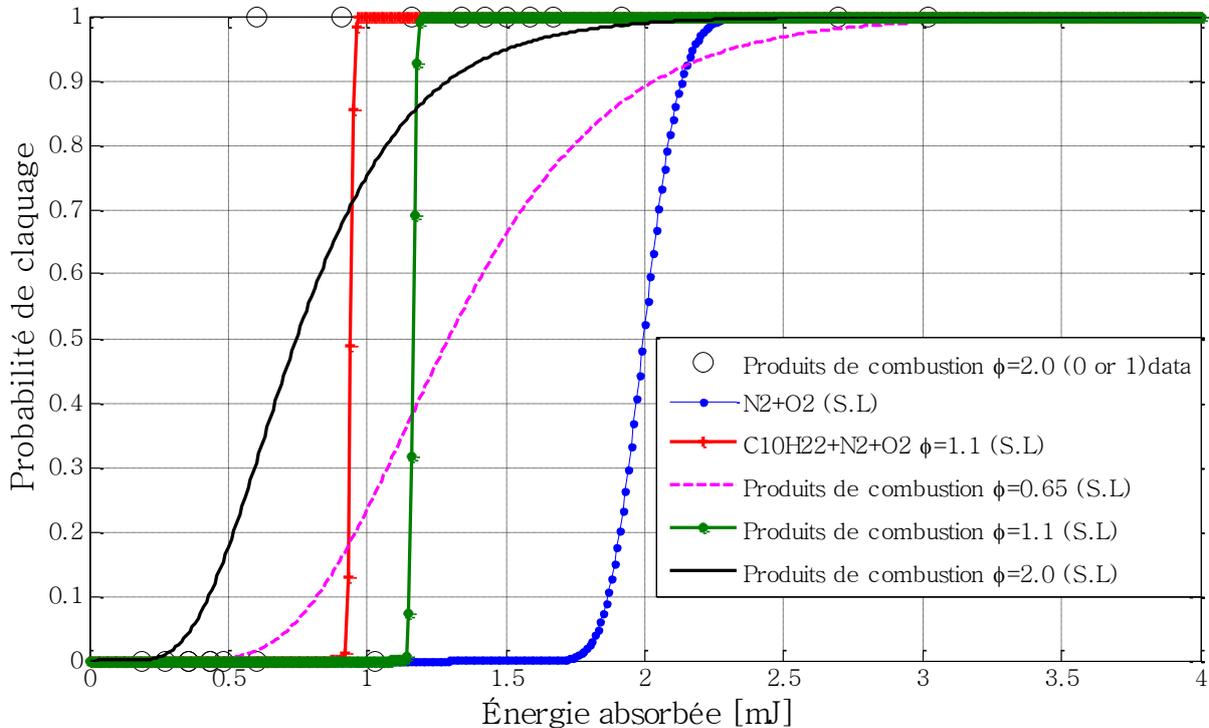


Figure III. 18: Probabilité de claquage en fonction de l'énergie absorbée pour les différents mélanges considérés.

Par exemple, il peut être noté qu'avec le mélange proche de la stœchiométrie ($C_{10}H_{22} / N_2 + O_2$ ($\phi = 1,1$)) et le mélange de produits de combustion issus de la richesse ($\phi = 1,1$) nous avons une augmentation soudaine de la loi stochastique qui peut être vue par un très faible écart type (voir *Tableau III. 7*). Le mélange $N_2 + O_2$ demande plus de 1,8 mJ d'énergie absorbée pour atteindre le seuil de claquage. Tous les paramètres statistiques relatifs à ce cas sont donnés dans le *Tableau III. 7*.

Tableau III. 7 : Paramètres statistiques des claquages en fonction de l'énergie absorbée

Paramètres	C_1	C_2	Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane ($E_{50C_{abs}}$) [mJ]
<i>Compositions</i>					
N_2+O_2	0,69	0,05	0,10	0,10	1,99
$C_{10}H_{22}$ à $\phi= 1,1$	-0,06	0,01	0,01	0,01	0,94
Produits de combustion $\phi= 0,65$	0,26	0,36	0,50	0,50	1,29
Produits de combustion $\phi= 1,1$	0,15	0,01	0,01	0,01	1,16
Produits de combustion $\phi= 2,0$	-0,29	0,43	0,37	0,37	0,74

3.2 Effet de la focale et la richesse sur l'Allumage laser ($C_{10}H_{22}/N_2+O_2$)

L'effet de la longueur focale sur l'allumage laser a été déjà étudié par (Beduneau, 2003) dans le cas de l'allumage laser de méthane en utilisant 3 distances 50, 100 et 300 mm pour montrer le triple effet de la vitesse, la richesse (et la longueur focale bien sûr).

Dans les résultats qui vont suivre, cet effet sera démontré par l'étude des probabilités d'allumage et le paramètre richesse sera inclus dans l'investigation stochastique en considérant 2 focales 150 et 100 mm.

3.2.1 Statistiques sur l'énergie incidente

L'effet focal est tout à fait clair (voir *Figure III. 19*) : avec une longueur focale de 150 mm, la zone d'énergie incidente permettant l'allumage commence parfois à 10 mJ pour atteindre l'allumage systématique à 80 mJ. Avec une longueur focale de 100 mm, la probabilité d'allumage commence à $E_{inc} > 20$ mJ et atteint 100% d'allumage à $E_{inc} = 40$ mJ. Avec la longueur focale plus courte, il est possible d'allumer le mélange pauvre ($\phi = 0,65$), contrairement au cas d'une longueur focale de 150 mm. Les caractéristiques géométriques du point focal sont données dans le chapitre II en fonction de la focale.

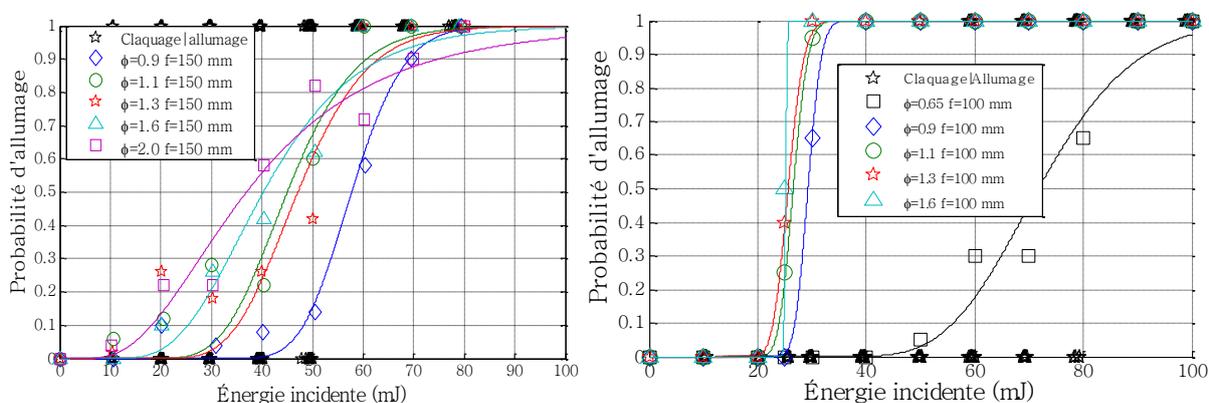


Figure III. 19: Effet de la richesse et de la focale sur les probabilité d'allumages

Cette influence peut être expliquée par la densité de puissance élevée i.e. l'irradiance laser au niveau du volume focal qui est inversement proportionnelle à la taille de rayon focal où le spot plasma est créé. Il faut noter que lorsque la distance focale est courte, le volume focal sera également réduit (voir *Tableau III. 8*) avec des puissances de haute intensité. Les propriétés focales peuvent être trouvées dans la référence suivante : (Maxim Thys, 2011).

Tableau III. 8 : Caractéristiques géométriques et physiques du point focal.

Distance focale [mm]	Longueur du volume focal [μm]	Rayon focal [μm]	Volume focal [m ³]	Irradiance [W/m ²] E _{inc} =20mJ
150	615,41	16,93	5,54 10 ⁻¹³	4,955 10 ¹¹
100	273,51	11,28	1,09 10 ⁻¹³	11,15 10 ¹¹

Concernant la richesse on remarque que les mélanges pauvres ont moins de sensibilité à l'allumage et au fur et à mesure que la richesse augmente, la sensibilité des mélanges à l'allumage augmente aussi. Ce constat concerne les deux focales.

3.2.2 Statistiques sur l'énergie absorbée

La *Figure III. 20* montre que l'ordre des courbes n'est pas de tout pareil en prenant en compte l'énergie incidente ou l'énergie absorbée comme paramètre.

Dans ce cas on enregistre une sensibilité forte pour la richesse $\phi=1,3$ et les mélanges pauvres se caractérisent par une demande forte en énergie absorbée pour atteindre l'allumage.

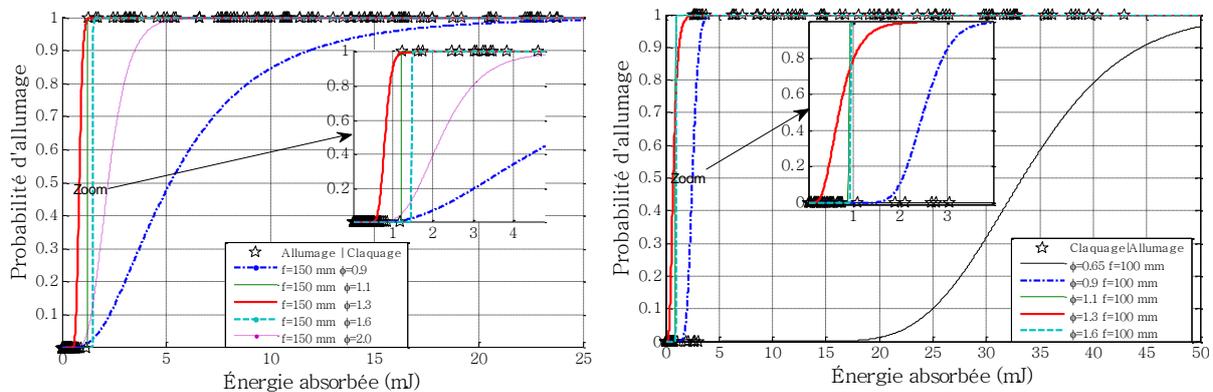


Figure III. 20 : Probabilité d'allumage en fonction de l'énergie absorbée (effet de la focale et de la richesse)

4 Statistiques sur l'effet de la pression sur le claquage et l'allumage laser

Notre objectif dans cette partie est d'étudier l'effet de la pression sur les mélanges inflammables. Pour ce faire deux cas ont été considérés : un mélange pauvre et un mélange proche de la stoechiométrie.

Cette enquête sur ces deux configurations sera un point crucial pour caractériser la meilleure plage de pression pour bien allumer ou bien claquer. La pression est un paramètre très important

dans l'étude des probabilités d'allumages. Comme déjà vu sur la *Figure III. 10* où le taux d'absorption est très faible pour les basses pressions. Ce travail peut être une base de données utile pour les motoristes, comme elle peut également être utilisée par les institutions de sureté pour l'évaluation des risques dans les différents domaines ou configurations contenant le n-décane (par exemple les fuites sur les réservoirs d'un avion). Certains travaux ont déjà été effectués pour étudier l'effet de la pression sur l'allumage de ce type de mélanges. Par exemple, les mélanges n-décane (à 94% de pureté) avec l'air ont été étudiés par (Strozzi et al, 2014).

4.1.1 Mélange pauvre ($\phi = 0,65$ et $f = 100$ mm)

L'approche statistique présentée dans la section 9 est également utilisée avec les données expérimentales collectées pour ce cas ($\phi=0,65$). Les résultats expérimentaux ont été approximés par la loi stochastique (loi EQ III.11 de Galton). Les résultats obtenus concernent les probabilités d'allumage et de claquage dans les mélanges pauvre. Les paramètres utilisés pour la caractérisation sont les énergies incidentes et absorbées pour les deux phénomènes.

4.1.1.1 Loi statistique en Énergie incidente

La *Figure III. 21* clarifie l'effet de la pression de mélange pauvre sur les probabilités d'allumages et les probabilités de claquages. Ces résultats montrent que les mélanges n-décane/air sont très sensibles à l'allumage vers les pressions $P_0 = 0,5$ bar, $P_0 = 1$ bar et $P_0 = 1,5$ bar. Les probabilités d'allumages chutent drastiquement pour la pression $P_0 = 0,25$ bar, en raison de la faible densité moléculaire dans le réacteur.

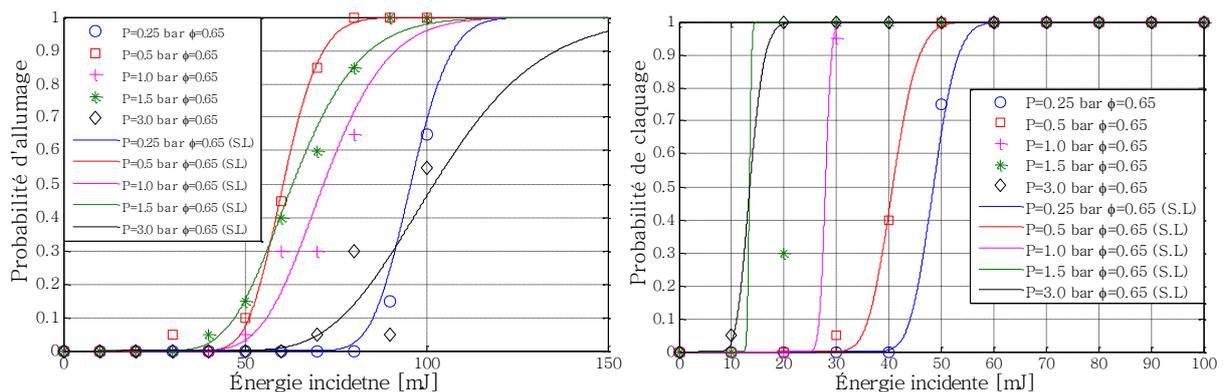


Figure III. 21 : Probabilité d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie incidente ($f=100$ mm)

Comme discuté précédemment, la faible pression peut être associée à un faible taux d'absorption d'énergie laser (section 2.1.1).

Pour $P_0 = 3$ bars les probabilités d'allumages sont très médiocres, mais le taux d'absorption lié aux claquages enregistre une forte énergie (voir *Figure III. 21* (à droite)). Cette dernière montre que les probabilités de claquage augmentent avec l'augmentation de la pression.

Le second résultat intéressant est l'effet de pression sur l'énergie incidente ($E_{50\%}$) nécessaire pour atteindre une probabilité d'allumage de 50% et $E_{50\%}C$ pour atteindre une probabilité de 50% de claquage. Les résultats, présentés dans la *Figure III. 22*, montrent que, dans le cas d'un mélange pauvre, $E_{50\%}$ forme une courbe en forme de U. Les valeurs les plus basses d' $E_{50\%}$ correspondent aux pressions de 0,5, 1 et 1,5 bar pour l'allumage. Pour les claquages, $E_{50\%}C$ décroît linéairement jusqu'à une pression de 1,5 bar, puis reste constante jusqu'à 3 bar.

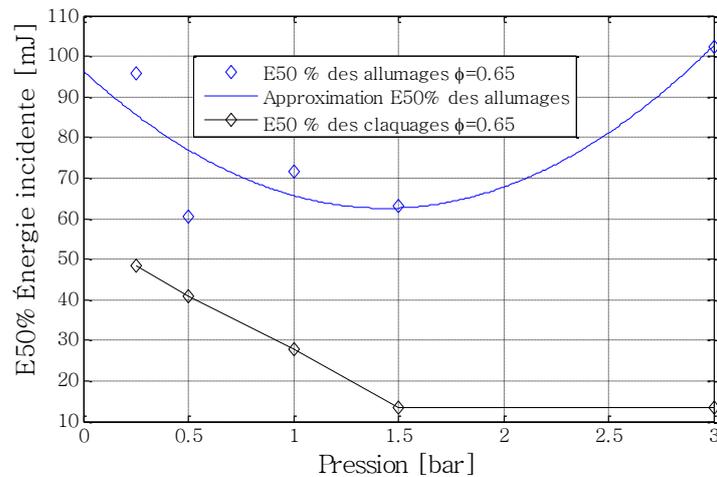


Figure III. 22 : Effet de la pression sur l' $E_{50\%}$ d'allumage et l' $E_{50\%}C$ de claquage

4.1.1.2 Loi statistique en Énergie absorbée

Dans cette section, les mêmes procédures ont été employées. L'énergie incidente a été remplacée par l'énergie absorbée et les résultats sont présentés dans la *Figure III. 23*.

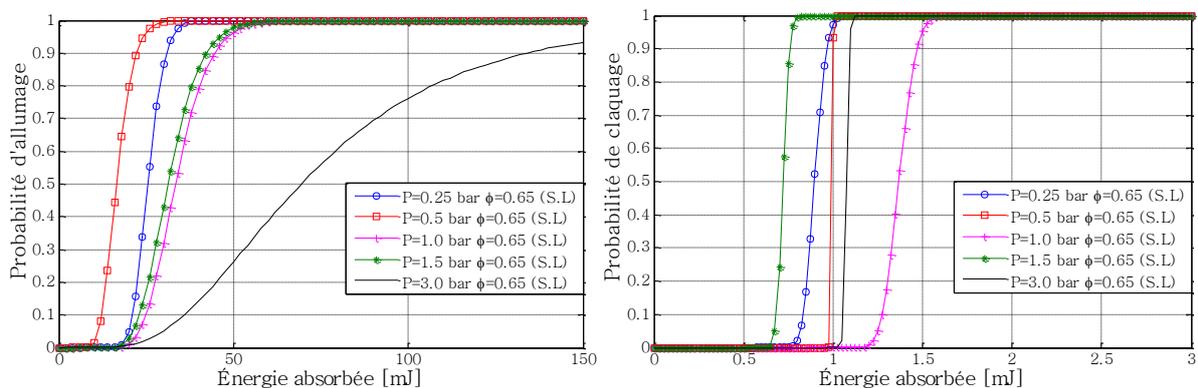


Figure III. 23 : Probabilités d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie absorbée.

Le mélange pauvre à $P_0=0,5$ bar est un mélange sensible à l'allumage tandis que les mélanges à $P_0=0,25$, $P_0=1,5$ et $P_0=1$ bar montrent une probabilité d'allumage modérée. À $P_0 = 3$ bars une forte baisse de la probabilité d'allumage est constatée. Le cas le plus sensible vis-à-vis du

claquage se situe à la pression $P_0 = 1,5$ bar, et le moins sensible à $P_0 = 1$ bar. Pour les autres mélanges à $P_0 = 0,25$, $P_0 = 0,5$ et $P_0 = 3$ bar la sensibilité de claquage est modérée.

Le second résultat représenté sur la *Figure III. 24* est l'effet de pression sur EA50% par rapport à l'énergie nécessaire absorbée nécessaire pour une probabilité de succès de l'allumage et de 0,5 EA50%C qui représente l'énergie absorbée nécessaire pour atteindre 50% de probabilité de claquage.

Les résultats montrent que EA50% augmente avec l'augmentation de la pression à l'exception de la pression $P_0 = 0,25$ bar, où une surélévation modérée est notée. EA50%C varie entre 0,7 et 1,5 mJ.

Une basse augmentation linéaire est notée pour les basses pressions $P_0 = 0,25$, 0,5 et 1 bar.

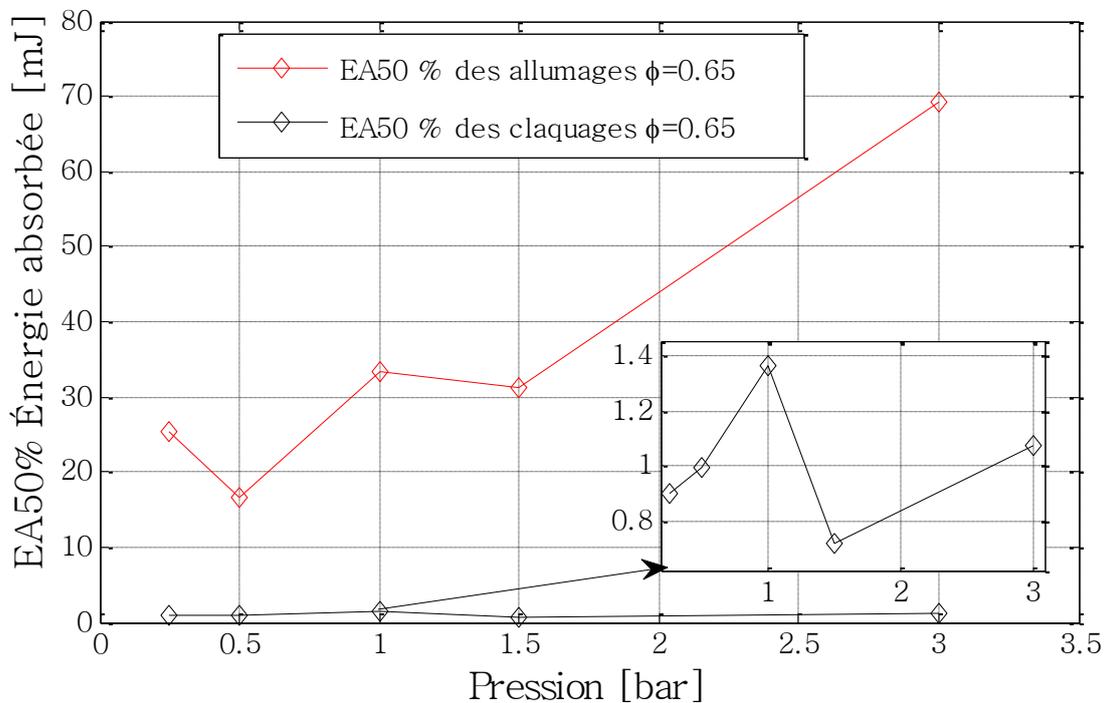


Figure III. 24 : Effet de la pression sur l'EA50 % d'allumage et l'EA50% C de claquage

4.1.2 Mélange proche stœchiométrie ($\phi=1,1$ et $f = 100$ mm)

L'analyse statistique des résultats expérimentaux a été effectuée pour caractériser les effets de la pression dans un mélange à équilibre homogène (haute pression de combustion, une vitesse de flamme élevée (Kumar & Sung, 2007) et plus de dégagements d'énergie (Lilley, 2003)).

4.1.2.1 Loi statistique en énergie incidente

La *Figure III. 25* montre que les probabilités d'allumages augmentent avec l'accroissement de la pression. La courbe relative à 3 bar est moins sensible à l'inflammation, car le n-décane est à la limite de saturation (une présence de condensat est observée). La zone de probabilité

d'allumage est comprise entre 20 et 50 mJ pour 100 mm de longueur focale lorsque la pression augmente de 0,5 à 3 bar (voir *Figure III. 25* de gauche).

La zone des probabilités de claquage est comprise entre 15 mJ et 40 mJ pour la même longueur focale et une pression allant de 0,5 à 3 bar (voir *Figure III. 25* de droite). La probabilité de claquage augmente avec la montée en pression.

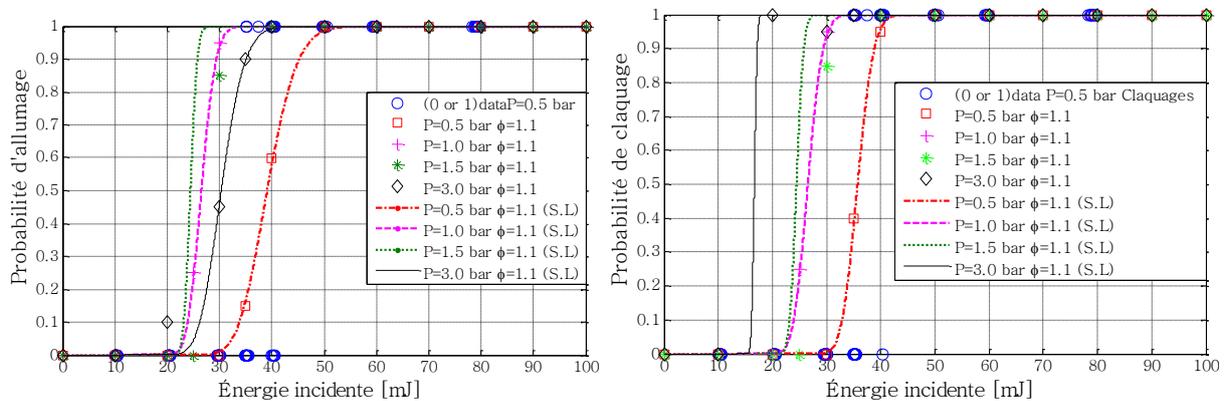


Figure III. 25 : Effet de la pression sur les probabilités d'allumage et de claquage dans le cas des mélanges proche stœchiométrie

La *Figure III. 26* présente l'effet de la pression sur l'énergie incidente et E50% E50%C requise pour avoir une chance de 50 % de réalisation. Les pressions de 1 bar et 1,5 bar sont les plus sensibles à l'allumage.

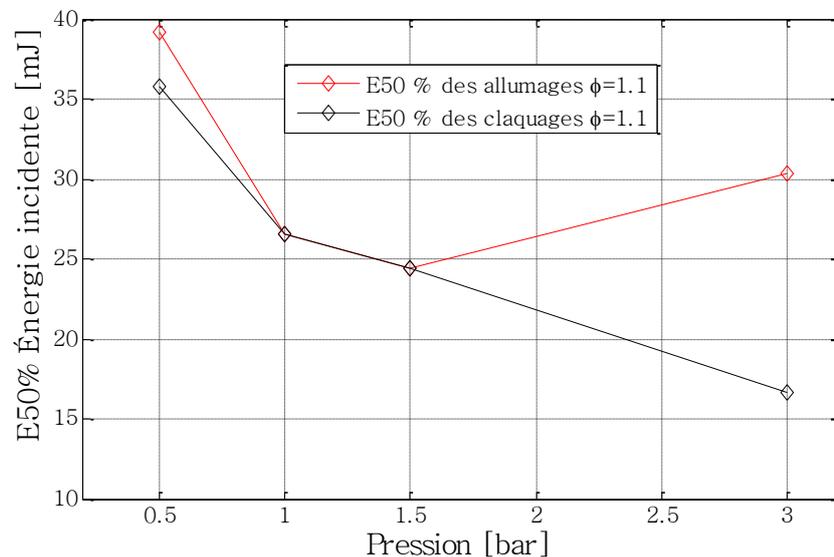


Figure III. 26 : Effet de la pression sur E50% et E50%C dans le cas des mélanges proches de la stœchiométrie.

Concernant les claquages, E50%C diminue avec l'augmentation de la pression. Il est à noter que les deux courbes E50% E50%C en énergies incidentes sont beaucoup plus rapprochées pour cette richesse que dans le cas précédent (richesse 0,65). Lorsque l'on est proche de la stœchiométrie, claquage et allumage semblent être des évènements concomitants.

4.1.2.2 Loi statistique en énergie absorbée

La *Figure III. 27* montre que les données approximant le cas avec $P_0 = 1$ bar et $P_0 = 1,5$ bar se caractérisent par une soudaine augmentation de probabilité d'allumage. Ces mélanges montrent une sensibilité supérieure. Le résultat le moins sensible concerne le cas à $P_0 = 3$ bar. Ce mélange a besoin de plus de 5 mJ d'énergie absorbée pour commencer à enflammer.

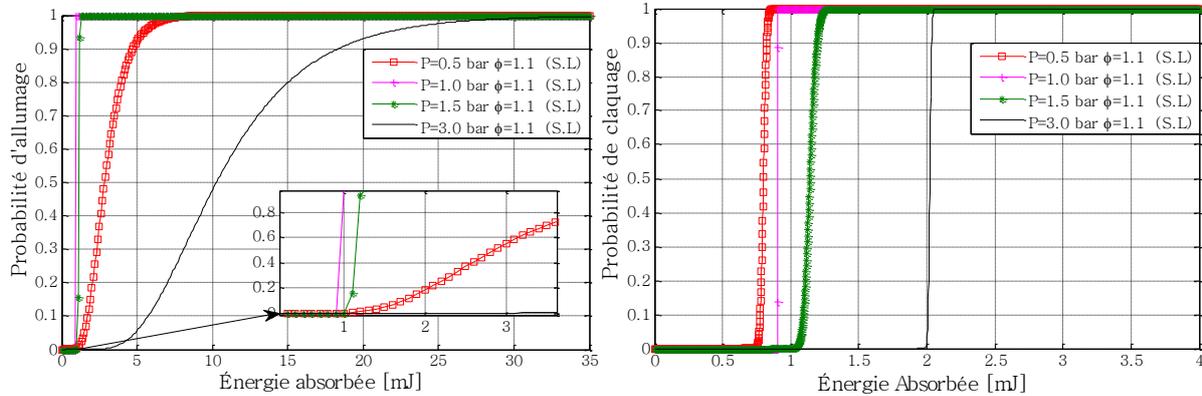


Figure III. 27: Probabilités d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie absorbée.

Une observation intéressante concerne l'effet inverse de la pression sur le claquage en comparant les approximations faites avec l'énergie incidente (voir *Figure III. 25* de droite) et avec l'énergie absorbée (*Figure III. 27* de droite). La *Figure III. 27* montre que la basse pression a besoin d'une faible énergie déposée (E_{abs}) pour donner lieu à des claquages. Par conséquent, la probabilité de claquage diminue avec l'augmentation de la pression lorsque l'énergie absorbée est utilisée comme paramètre d'étude.

Les caractéristiques relatives EA50% et EA50%C sont représentées sur la *Figure III. 28*.

EA50% forme une courbe en U en fonction de la pression. La valeur minimale a été détectée à une pression de 1 bar. EA50%C augmente avec l'élévation de la pression pour les claquages.

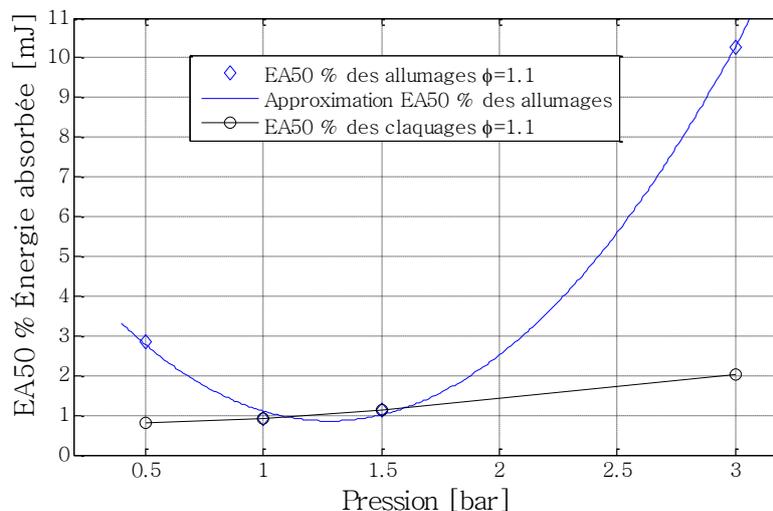


Figure III. 28 : Effet de la pression sur E50% et E50%C dans le cas des mélanges proches de la stœchiométrie.

5 Energie minimale d'allumage par laser (MIE)

L'énergie minimale d'allumage (MIE : Minimum Ignition Energy) est un paramètre d'énergie déterminé pour les mélanges réactifs entre la limite d'inflammabilité supérieure et inférieure (Catoire & Naudet, 2005). La valeur MIE quantifie le risque d'inflammabilité d'un mélange à l'allumage (explosion). Cette valeur est liée à la nature des mélanges inflammables, leur pression et leur température. Ce paramètre se détermine selon l'approche de Moorhouse (Moorhouse, J., Williams, A., & Maddison, 1974) par allumage par arc électrique pour certains hydrocarbures comportant une chaîne allant de C₁ à C₇.

Eckhoff a étudié la MIE des mélanges de propane / air (Eckhoff, Ngo, & Olsen, 2010), tandis que Wähler a effectué des études sur l'hydrogène, l'éthane et le propane (Wähler, 2010). En outre, la MIE peut encore être déterminée en utilisant la même approche que Moorhouse en utilisant un faisceau laser impulsionnel comme source d'allumage. Des résultats intéressants ont été rapportés par Phuoc (Tran X. Phuoc, 1999) pour les mélanges méthane CH₄ / air, et par Tihay concernant l'allumage des mélanges acétone / air (Tihay, 2012). Dans la présente étude, la MIE a été étudiée en considérant l'énergie absorbée, car pour ce paramètre, l'étude ne sera pas cohérente si l'énergie incidente est considérée, en raison de la forte fluctuation sur les taux d'absorption des mélanges étudiés.

5.1.1 Etude (MIE) avec focale 150 mm

Afin de comparer nos résultats aux données collectées par (Strozzi et al, 2014), les mesures de la MIE sont résumées dans la *Figure III. 29*. Le premier point à noter est que la courbe obtenue a la forme typique en U. Dans l'étude de (Strozzi et al, 2014), les auteurs ont travaillé avec les mêmes conditions de pression, de température, de focale et avec une gamme comparable des énergies d'incidentes et de richesse. Cependant, la pureté du n-décane était seulement de 94%, de plus les mélanges étaient réalisés avec de l'air ambiant.

On peut clairement voir que pour les mélanges pauvres les impuretés comprises dans le combustible n-décane jouent le rôle d'un catalyseur pour allumage. Ces mélanges ont besoin d'absorber moins d'énergie pour s'enflammer alors que pour les mélanges riches le comportement est l'inverse.

En outre, comme dans l'étude de (Strozzi et al, 2014), les mélanges pauvres étudiés n'ont pas été enflammés car la richesse $\phi = 0,65$ est proche de la limite inférieure d'inflammabilité.

La valeur de la MIE à cette focale considérée est de $0,67 \pm 0,19$ pour une richesse de 1,6. La valeur rapportée par (Strozzi et al, 2014) est de 0.95 mJ trouvée à la richesse $\phi = 1,1$.

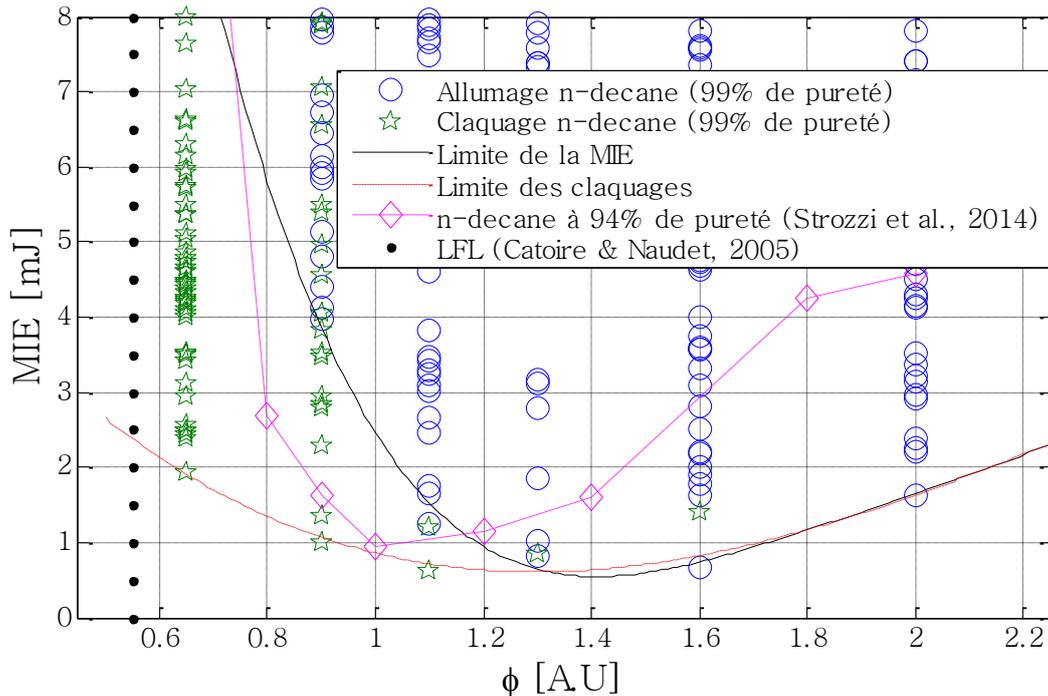


Figure III. 29 : Influence de la richesse et de la pureté des mélanges sur la MIE

5.1.2 Etude (MIE) avec focale 100 mm

Le même travail est réalisé avec la focale 100 mm et le même carburant $C_{10}H_{22}$ (99% de pureté) avec l'air synthétique N_2+O_2 . La MIE est approximée dans cette configuration à la valeur $0,47 \pm 0,19$ mJ. Cette dernière est retrouvée vers la richesse de $\phi = 1,3$. Notre valeur mesurée est inférieure à la valeur (0,95 mJ) rapportée par Strozzi en ce qui concerne le n-décane à 94% de pureté mélangé avec l'air ambiant. Cette valeur a été mesurée à $\phi = 1$ en utilisant une longueur focale de 150 mm. L'étude précédente en utilisant 150 mm comme longueur focale est supérieure (MIE = $0,67 \pm 0,19$ mJ) à la valeur correspondante à 100 mm.

Les présents résultats montrent qu'il existe un effet observable sur le choix de la distance focale i.e. une longueur focale courte permet de diminuer la valeur de la MIE et fait déplacer la richesse à laquelle ce paramètre est déterminé (Ex : $\phi = 1,6$ pour 150 mm vers $\phi = 1,3$ pour 100 mm).

Pour plus d'informations sur la distance focale on peut se rapporter à Beduneau (Beduneau, 2003). Une courte focale favorise bien l'allumage vers les mélanges de proche stœchiométrie, mais augmente l'énergie nécessaire pour les seuils d'allumage ou de claquage avec les mélanges proches des limites d'inflammabilité (cas de mélanges pauvres et riches). Comme le montre la comparaison entre la limite de claquage avec focale de 100 mm en tirets discontinues 'en rouge' et la focale 150 mm en ligne continue en noir. Des résultats similaires ont été obtenus par Beduneau (Beduneau, 2003).

La qualité de l'air expérimental et la pureté du combustible utilisé ont aussi un effet sensible sur le paramètre (MIE).

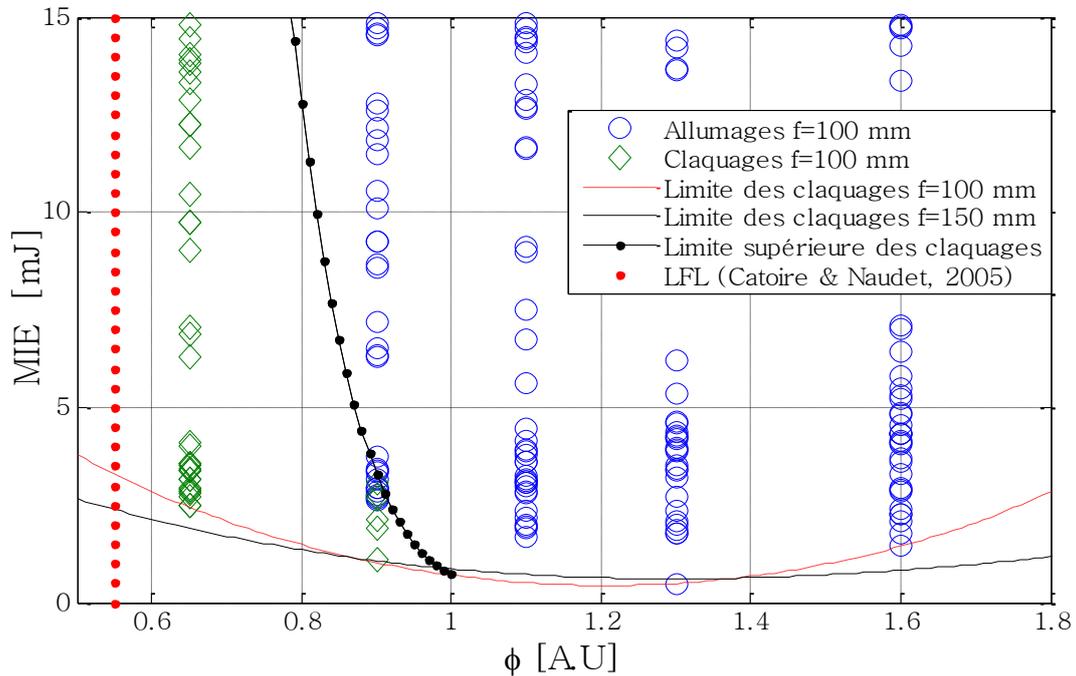


Figure III. 30 : Influence de la richesse et de la focale sur la MIE

5.2 Energie seuil d'allumage mélanges pauvres et proche stœchiométrie

La présente étude traite les effets de la pression sur l'énergie de seuil d'allumage / claquage dans des mélanges pauvres et proches stœchiométrie. Les expériences ont été réalisées avec une focale de 100 mm, afin d'évaluer la sensibilité des mélanges réactifs dans les moteurs, mais aussi les risques d'explosion accidentelle de certains mélanges à des pressions basses ou élevées. Ce travail a une considération extrêmement importante pour les chercheurs de l'automobile, l'industrie pétrolière et de la sûreté dans le domaine de l'aviation. Le choix des deux configurations (pauvres et proche stœchiométrie) est fait pour limiter le nombre d'essais expérimentaux qui peuvent prendre des mois et aussi pour respecter l'orientation actuelle qui vise à produire moins de CO₂ pour cause des contraintes environnementales infligées sur les équipements. La *Figure III. 31* présente les effets observés sur les quatre pressions étudiées $P_0 = 0,5$ bar, $P_0 = 1$ bar, $P_0 = 1,5$ bar, et $P_0 = 3$ bars. Cette dernière configuration se situe dans la limite de saturation du n-décane (condensation de C₁₀H₂₂ à 347 K). On peut dire que, dans cette configuration les phases gazeuse et liquide coexistent à la fois, expliquant ainsi la limite supérieure élevée des claquages observée à $P_0 = 3$ bar. Cependant, l'augmentation de la pression favorise la sensibilité des mélanges aux allumages et aux claquages, comme indiqué dans la *Figure III. 31*. Les pressions 1 et 1,5 bar ont été caractérisées par une petite plage des claquages par rapport aux deux autres pressions à 0,5 et 3 bar.

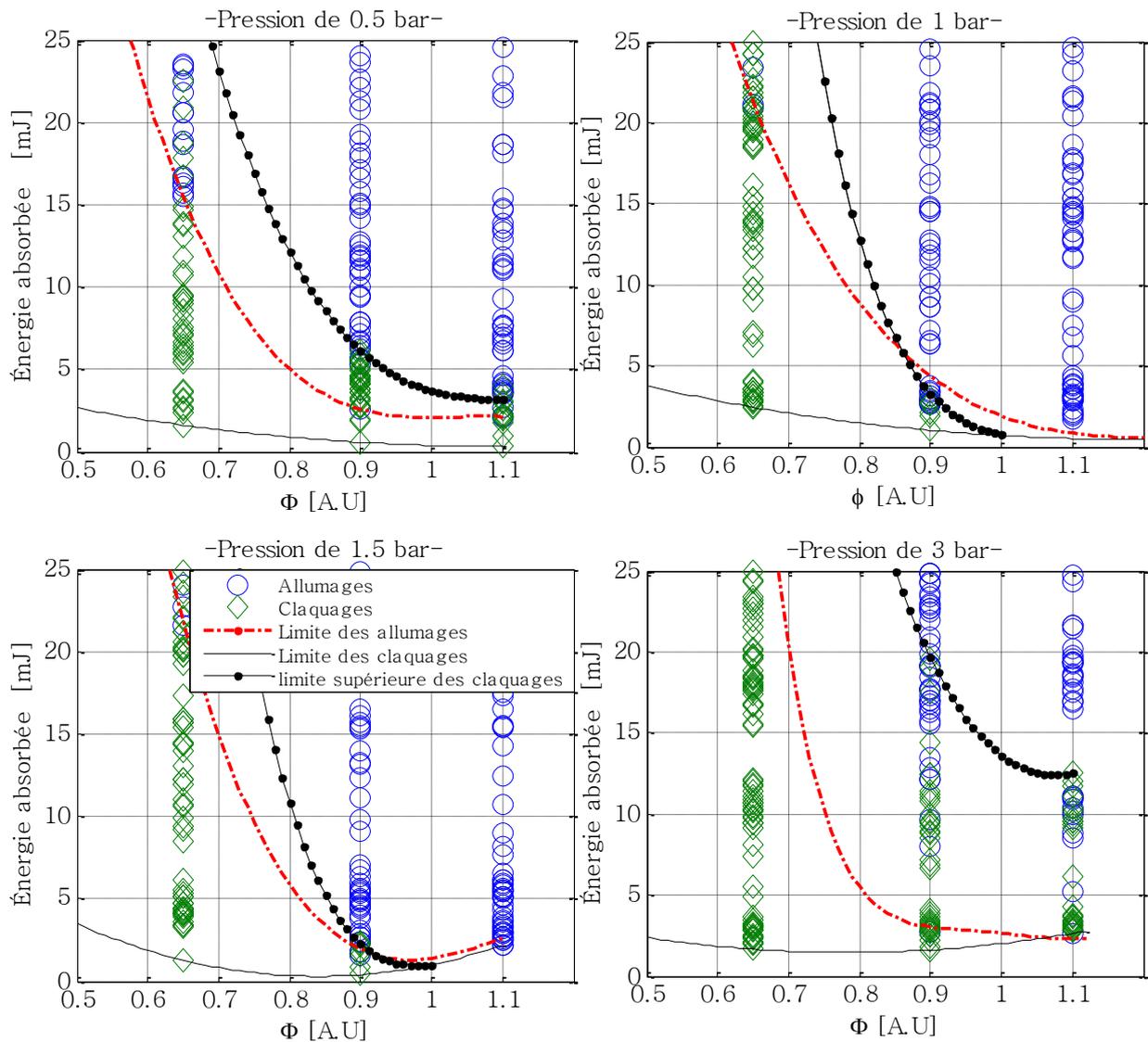


Figure III. 31 : Effet de la pression sur les seuils d'énergie de claquage et d'allumage $f=100$ mm

Pour résumer, les résultats de la *Figure III. 32* montrent l'effet de la pression sur le seuil d'énergie d'allumage et la limite supérieure des claquages dans laquelle une faible énergie ne peut conduire qu'à un claquage. Les claquages cessent de se produire à une richesse $\phi = 1,1$. Les additifs de gaz tels que l'argon, l'humidité (Gillard et al, 2014) ou d'autres gaz (EGR) peuvent changer les résultats présentés ici. Ce travail peut être considéré comme une première étape de référence, la prochaine sera de se concentrer sur d'autres effets, comme celle due à l'EGR et de la température par exemple.

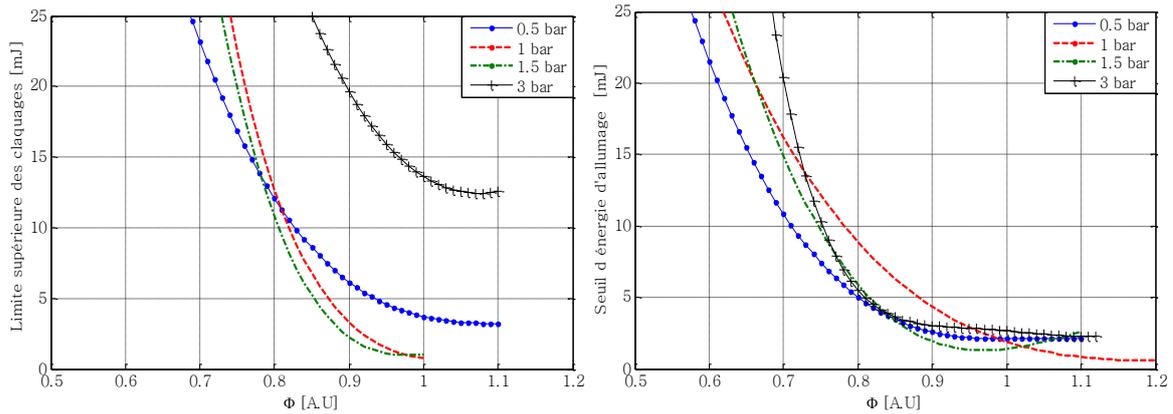


Figure III. 32 : Récapitulatif de l'effet de la pression tiré de la figure précédente.

6 Analyse des signaux de pression de combustion (n-décane/ N_2+O_2)

L'effet des paramètres thermodynamiques initiaux sur la combustion est crucial pour faire des prédictions au cours des processus de cinétique chimique de réduction de mélanges inflammables. Les résultats de ces études peuvent former une solide base de données expérimentale utilisée pour construire de nouveaux schémas cinétiques et aussi pour valider les configurations expérimentales similaires. Brady a réalisé une étude sur l'allumage du n-butanol dans une configuration à contre-courant pour différentes pressions (Brady et al, 2015).

Des résultats sur les délais d'allumage et sur la modélisation cinétique de la combustion du méthane et du diméthyle-éther à des pressions élevées ont été rapportés dans (Burke et al., 2015). Un autre point intéressant concerne l'effet de la pression sur la formation de suies, ce dernier a été étudié par (Consalvi & Liu, 2015) dans le cas de n-heptane entre 1 et 10 atm. D'autres effets concernant le n-décane peuvent être trouvés dans les travaux de Hui qui a enquêté sur l'ajout d'hydrogène (Hui, Zhang, Xia, & Sung, 2014).

Dans le cas de notre étude, il peut être rappelé que le réacteur fonctionne à une température fixe et un volume confiné de 1000 cm^3 .

Les signaux de pression ont été analysés afin d'obtenir des caractéristiques de combustion telles que la pression maximale pendant la combustion (P_{\max}), le gradient maximal de pression $(dP/dt)_{\max}$, qui est un paramètre lié à la vitesse de flamme laminaire. Il s'agit surtout de rendre compte des effets de l'énergie absorbée, de la pression initiale et de la richesse sur l'estimation des délais d'allumage par les signaux de pression.

Ce paramètre de temps a été déterminé en prenant une tangente de la courbe sur son front montant entre 20 % et 80 % de P_{\max} : l'intersection de cette tangente avec l'axe des abscisses du temps définit la valeur qui estime le délai d'allumage.

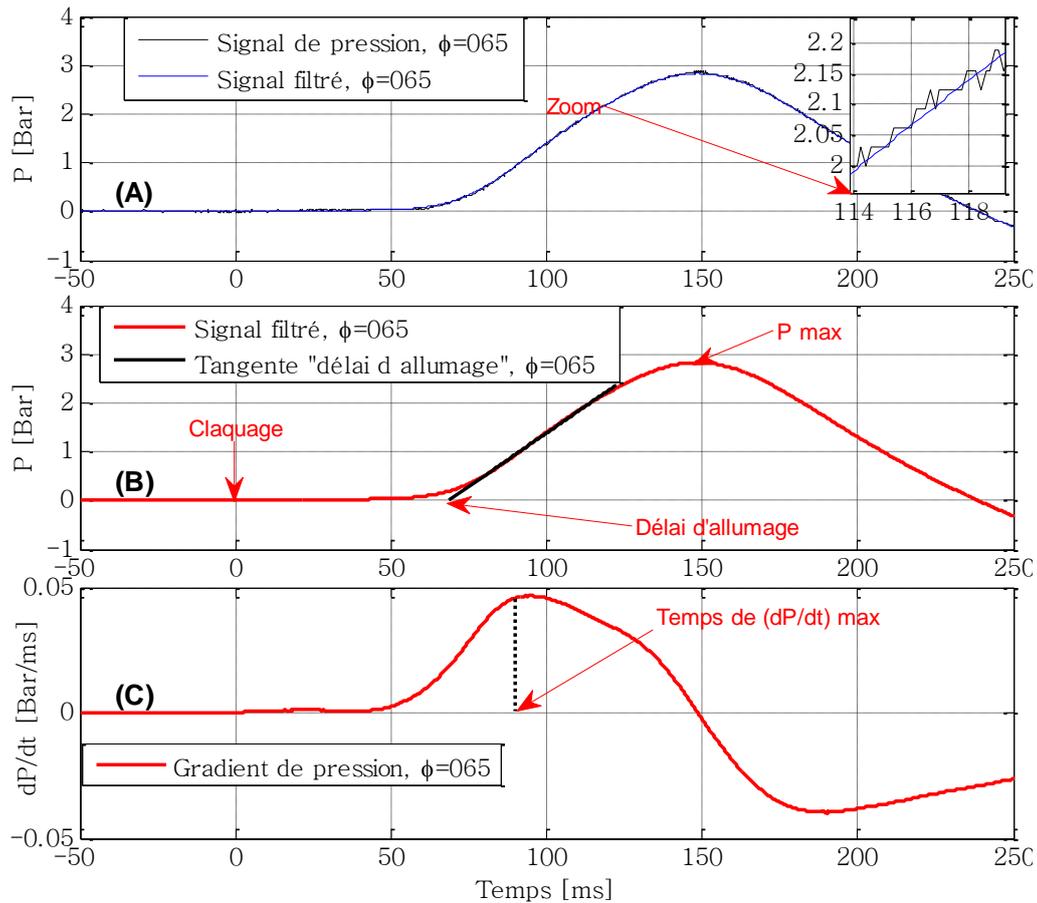


Figure III. 33 : Approche utilisée pour l'analyse des signaux de pression (mélanges de n-décane (99%) / $N_2 + O_2$ en utilisant une focale de 100 mm) (Filtrage par algorithme Savitzky Golay).

Cette approche est illustrée sur la Figure III. 33 : (A) Signal brut et filtré de pression. (B) Identification des caractéristiques de combustion. (C) Calcul du gradient de pression. Toutes les analyses ont tenu compte de la pression relative et après analyse, les pressions absolues seront données par la suite.

6.1 Effet de la richesse ($P_0 = 1$ bar, $T = 347$ K et $f = 100$ mm)

6.1.1 Pressions maximales de combustion

Les pressions maximales de combustion pour les richesses étudiées (0,65, 0,9 1,1, 1,3, 1,6) sont présentées sur la Figure III. 34 en fonction de l'énergie déposée pour chaque essai.

Les résultats montrent qu'il n'y a pas d'effet de l'énergie absorbée sur les pressions engendrées (P_{max}).

La moyenne des pressions maximales lors de la combustion et leurs valeurs de l'écart type sont reportées sur la Figure III. 34 de droite. La pression de combustion maximale a été observée pour une richesse de $\phi = 1,3$. Cette valeur diminue progressivement pour les mélanges situés à proximité des limites inférieure et supérieure d'inflammabilités.

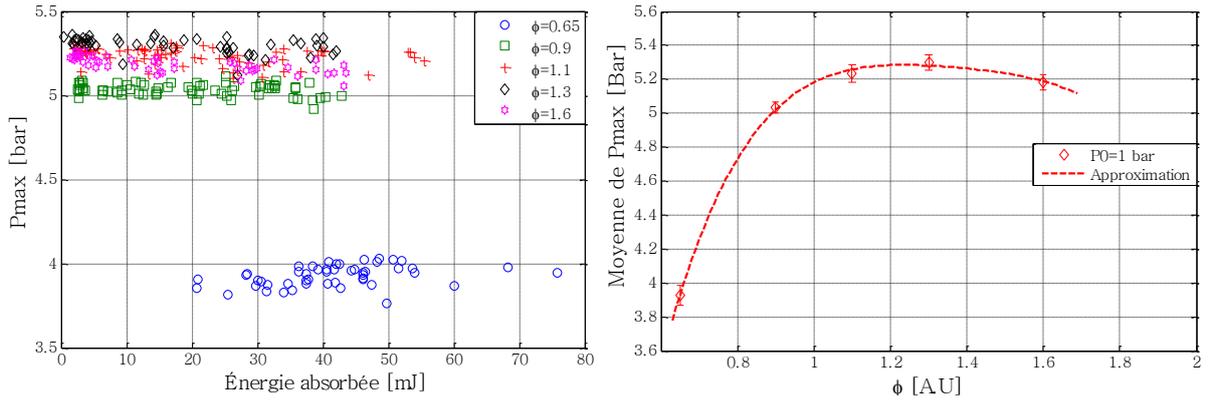


Figure III. 34: Pressions maximales de combustion en fonction des énergies absorbées pour les richesses étudiées et moyennes des pressions en fonction de la richesse sur la figure de droite.

6.1.2 Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)

Les données concernant les délais d'allumages collectés à partir des analyses des signaux de pression sont présentées sur la Figure III. 35 (de gauche). L'effet de la richesse sur les délais d'allumage est clairement mis en évidence : les mélanges pauvres et les mélanges riches se caractérisent par des délais plus élevés, alors que les mélanges quasi-stœchiométrique ont des délais d'allumage les plus faibles (environ 17 ms, voir Figure III. 35 de droite.). L'énergie absorbée a également un effet non négligeable (voir Figure III. 35 (de gauche)).

Le délai d'allumage diminue suivant une loi exponentielle (EQ III.15) en fonction des niveaux d'énergie déposée (E_{abs}).

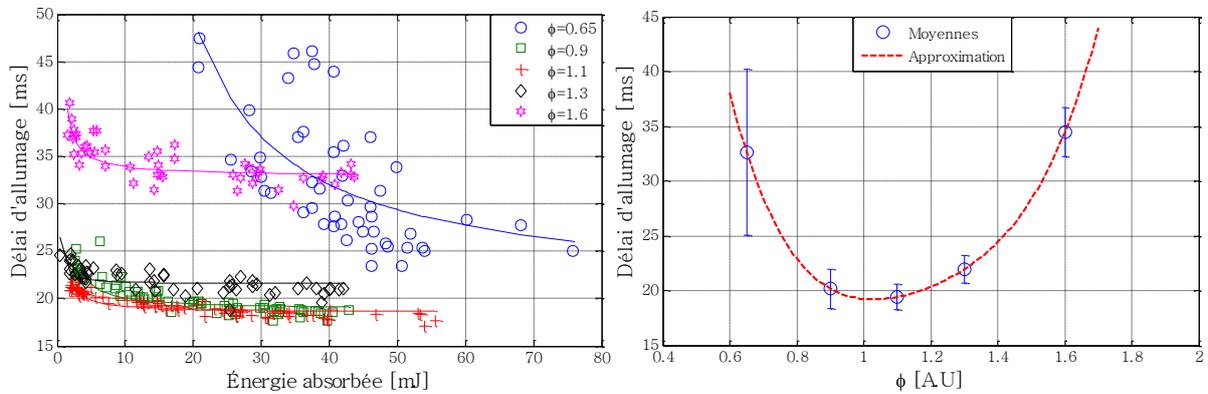


Figure III. 35 : Effets de l'énergie absorbée sur les délais d'allumage (figure de gauche) et effets de la richesse sur la moyenne de délai d'allumage calculée (figure de droite).

$$\tau = A \exp \left[\frac{B}{E_{abs}} \right] \quad (\text{EQ III.15})$$

Chaque courbe à proximité des points mesurés expérimentalement représente une fonction ajustée à l'aide des paramètres (A) et (B) Tableau III. 9, ce qui donne une moyenne mobile de délai d'allumage en fonction de l'énergie absorbée.

Tableau III. 9 : Valeurs expérimentales de (A) et (B)

ϕ	A	B
0,65	20,72	17,42
0,9	18,84	0,623
1,1	18,53	0,340
1,3	21,53	0,097
1,6	32,92	0,288

La Figure III. 35 (de droite) fournit également des informations sur le régime de combustion du mélange n-décane / $N_2 + O_2$. On peut voir que la richesse $\phi = 0,65$ présente des instabilités de combustion en raison d'une forte variation des délais d'allumages mis en évidence par une valeur de l'écart type considérable.

Un effet similaire a été observé à $\phi = 1,6$. Les meilleures configurations sont situées près de la stoechiométrie, par exemple, le rapport d'équivalence $\phi = 1,1$.

6.1.3 Gradients de pressions maximaux et temps caractéristiques

Il est connu que le gradient de pression et la pression maximale donnent une information directe sur la vitesse de flamme laminaire (Bradley, 1988).

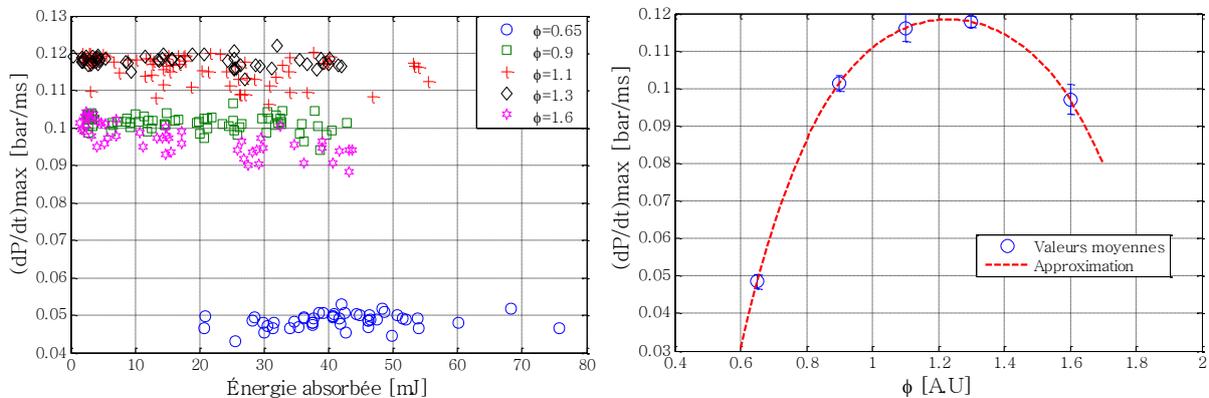


Figure III. 36 : Gradients de pression maximaux et effet de la richesse.

Les données représentées sur la Figure III. 36 de gauche représentent le gradient maximal de pression pour chaque essai en fonction de l'énergie absorbée qui lui est liée. On peut voir que l'énergie déposée n'a pas d'effet significatif sur le gradient maximal de pression. $(dP/dt)_{max}$ car, ce dernier est une propriété physico-chimique fondamentale qui ne dépend que de la richesse et d'autres paramètres tels que la température initiale et la pression initiale P_0 . La Figure III. 36 de droite rapporte la moyenne des gradients maximaux de pression pour tous les essais correspondant aux richesses considérées. Dans ce cas, les fluctuations remarquées en Figure

III. 35 de droite concernant les délais d'allumage ne figurent pas sur la moyenne $(dP/dt)_{max}$ en raison de ce que il vient d'être expliqué précédemment.

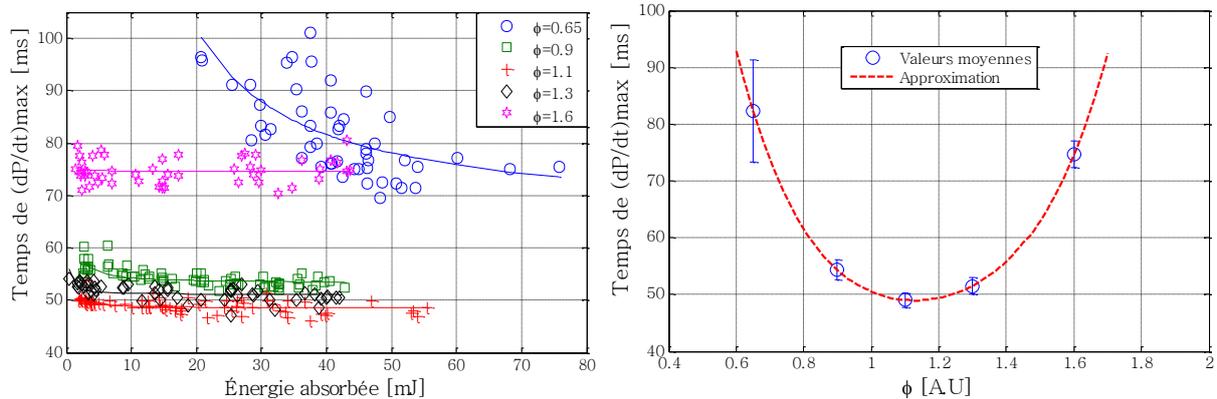


Figure III. 37 : Délais correspondants aux gradients maximaux des pressions enregistrés et effet de la richesse sur la moyenne des délais correspondants.

La Figure III. 37 représente les temps nécessaires pour atteindre $(dP/dt)_{max}$. Une caractéristique notable de ce paramètre est la tendance similaire aux délais d'allumages présentés sur la Figure III. 35. Les retards sont décalés de 30 à 50 ms à partir des valeurs des délais d'allumages de référence mesurés. La Figure III. 37 de droite présente le temps moyen correspondants à $(dP/dt)_{max}$ en fonction de la richesse. Ainsi, les caractéristiques temporelles de combustion ont été conservées au cours des processus cinétiques.

6.2 Effets de la pression initiale ($T = 347\text{ K}$, $\phi = (0,65\text{ et }1,1)$)

L'effet initial de pression a été étudié sur deux configurations : un mélange pauvre ($\phi = 0,65$) et un mélange proche stœchiométrie ($\phi = 1,1$).

6.2.1 Pressions de combustion maximales

La Figure III. 38 présente une cartographie des allumages réussis et l'effet de la pression initiale sur la pression de combustion maximale.

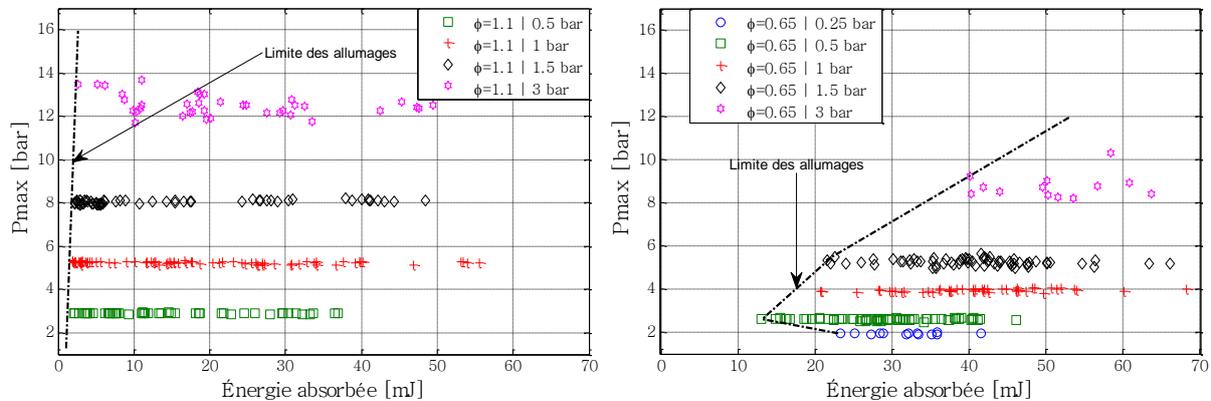


Figure III. 38 : Cartographie des allumages et leur pression maximale correspondante en fonction de l'énergie absorbée correspondante dans le cas proche stœchiométrie et le cas de mélange pauvre.

En comparant les deux figures de gauche et de droite on peut voir que les mélanges pauvres ont besoin de plus d'énergie absorbée pour s'allumer et que la zone réactive (en énergie absorbée) est très faible par rapport aux mélanges proche de la stœchiométrie et qui sont caractérisés par une réactivité supérieure à allumage. Les mélanges proches de la stœchiométrie génèrent des niveaux élevés de pression de combustion par rapport à la configuration des mélanges pauvres. Le choix de la configuration dépend des performances du moteur requis. Par conséquent, il est essentiel d'installer un système de contrôle et de régulation pour adapter l'énergie déposée par rapport à la richesse et à la pression initiale opératoire.

6.2.2 Délais d'allumages (par analyse des signaux de pression)

La température initiale et la pression ont une influence déterminante sur les délais d'allumage, comme on peut le voir sur la *Figure III. 39*. Une augmentation de la pression initiale entraîne une augmentation de délai d'allumage pour les deux configurations ($\phi = 0,65$) et ($\phi = 1,1$). À $P_0 = 3$ bar et $\phi = 1,1$ un retard très élevé pour l'allumage se produit qui peut être expliqué par la limite de saturation de n-décane gaz, puisque dans cet état, les phases liquide et gazeuse coexistent en même temps. Dans les autres états, il n'y a que la phase gazeuse qui existe. Des remarques similaires peuvent être faites au sujet de l'effet de l'énergie absorbée sur ce paramètre (délais d'allumages). Une décroissance exponentielle est observable pour toutes les configurations, sauf le cas mentionné précédemment (3 bar, $\phi = 1,1$).

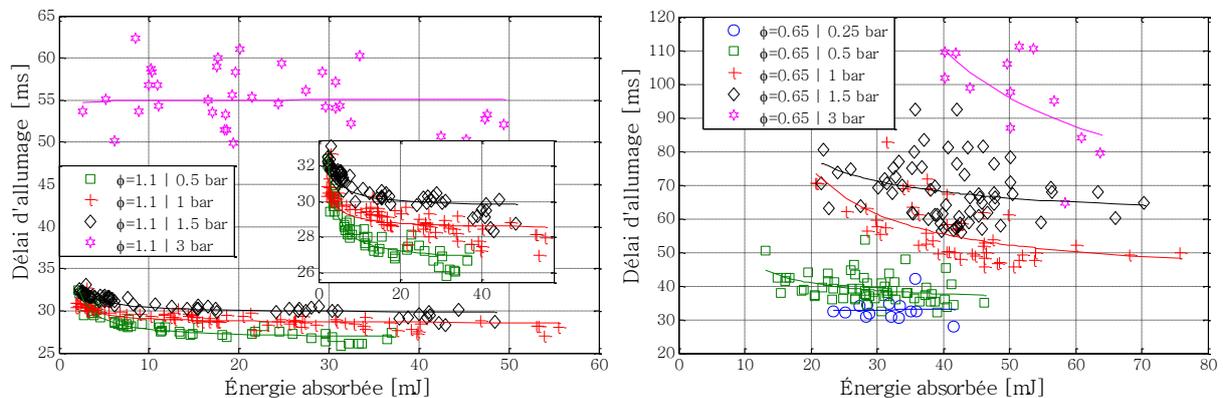


Figure III. 39 : Effets de la pression sur les délais d'allumage dans le cas des mélanges pauvres et proches stœchiométrie.

6.2.3 Valeurs des gradients maximaux de pressions

Les *Figure III. 40* et *Figure III. 41* représentent les gradients maximaux de pression et les temps correspondants. Dans tous les cas, l'augmentation de la pression initiale P_0 fait augmenter la valeur de $(dp/dt)_{max}$.

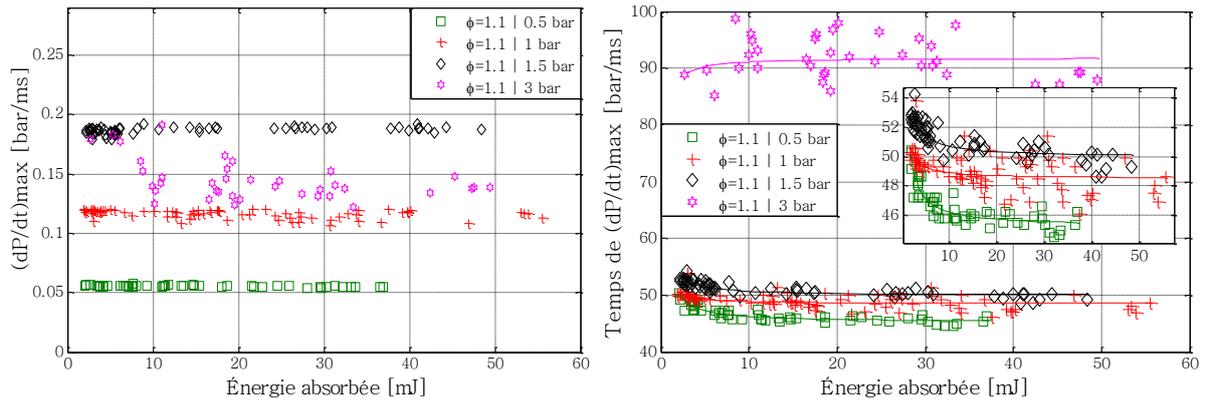


Figure III. 40 : Effets de la pression sur le $(dP/dt)_{max}$ et la valeur de du temps correspondant dans le cas du mélange proche stœchiométrie.

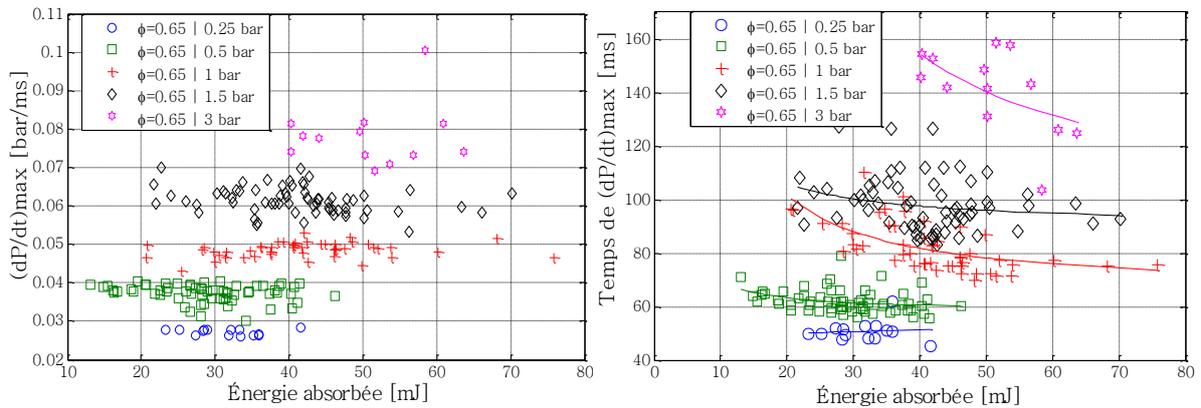


Figure III. 41 : Effets de la pression sur le $(dP/dt)_{max}$ et la valeur de du temps correspondant dans le cas du mélange pauvre

Un autre point intéressant est que le taux d'absorption élevé (valeur élevée E_{abs}) accélère le processus cinétique de combustion, ce point peut être vu sur les deux figures de droite correspondantes au mélange pauvre et proche stœchiométrie.

6.2.4 Moyennes de pressions maximales et des gradients maximaux

La Figure III. 42 synthétise la moyenne des pressions maximales et les gradients maximaux de combustion correspondant à chaque cas étudié. Un autre effet constaté est que le gradient maximal de pression dans le cas des mélanges saturés affaiblit la valeur de $(dP/dt)_{max}$. Ce résultat concerne le cas de ($P_0 = 3$ bars, $\phi = 1,1$) où il y a présence de condensat.

Dans tous les cas, l'augmentation de la pression augmente la pression maximale de combustion ce qui explique facilement le rôle des turbocompresseurs pour obtenir assez d'énergie mécanique d'un moteur (Cf : chapitre I). Un dimensionnement mécanique des systèmes et des enceintes de combustion est obligatoire pour éviter tout risque et tout dommage.

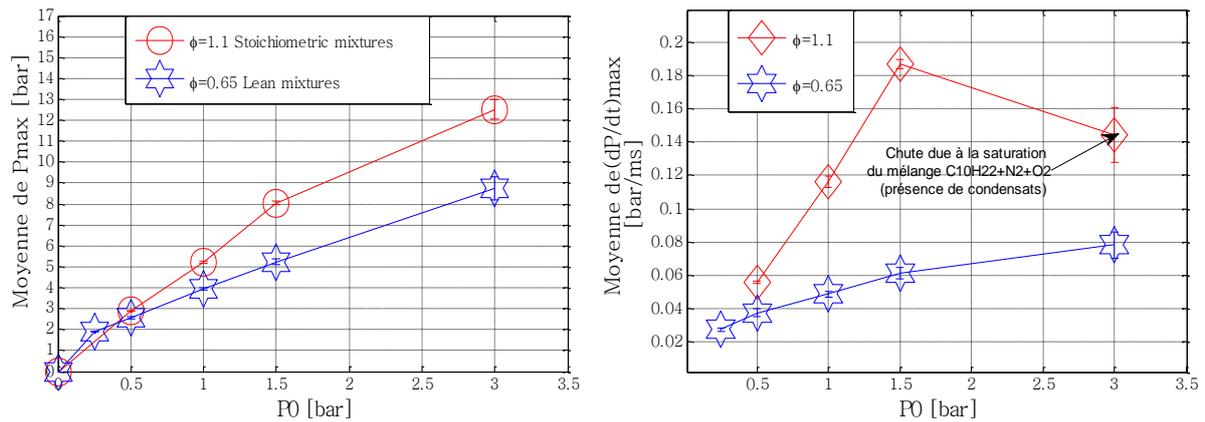


Figure III. 42 : Moyennes des pressions maximales et les gradients maximaux de pression pour les mélanges pauvre et proche stoechiométrie.

6.3 Modèle de Bradley et vitesse de flamme laminaire (S_L)

Le modèle de Bradley (Bradley & Mitcheson, 1976) présenté dans le chapitre I sera exploité en utilisant les signaux de pression collectés pour les différents cas d'étude. Les équations donnant la vitesse de flamme laminaire et le rayon de flamme ont été présentées dans le même chapitre I, où est présenté le modèle.

Il est bien à savoir que les valeurs de S_L qui seront présentées par la suite représentent des estimations car le modèle se base sur plusieurs hypothèses qui, pour la plupart, ne sont pas vraiment vérifiées. A ne pas oublier que le volume de notre réacteur est d'un litre de forme cylindrique avec un alésage de 8 cm. La profondeur en partant de point focal est de 10 cm. Ce qui rend le modèle difficilement exploitable car les phénomènes d'interactions avec les parois ne sont pas négligeables. Notre étude qui comporte plusieurs tirs laser réalisés nécessite un travail d'exploitation de nature statistique. Malgré ces difficultés nous avons regardé l'influence de l'énergie absorbée sur ce paramètre de vitesse sur l'ensemble de nos résultats.

L'estimation de la vitesse laminaire est obtenue grâce au modèle de Bradley pour un rayon de 21 mm ($((0.3 \cdot 40 + 0.3 \cdot 100)/2)$), la règle fixe un rayon de 30% du rayon max pour éviter les interactions des gaz frais avec les parois. Dans sa thèse (Galmiche, 2014) a utilisé ce modèle pour le cas d'une sphère de 4.2 litres afin de caractériser les flammes laminaires.

Je rappelle que le filtrage qu'on a effectué sur nos signaux est réalisé en utilisant l'algorithme Savitzky-Golay (Schafer, 2011)(Deepshikha et al, 2016). Ce dernier permet l'obtention de signaux lisses et conformes pour l'application du modèle Bradley (voir Figure III. 43). L'exploitation des données se fait avec la manière présentée dans la Figure III. 43. L'évolution du rayon de front de flamme associé est présentée sur la Figure III. 43.

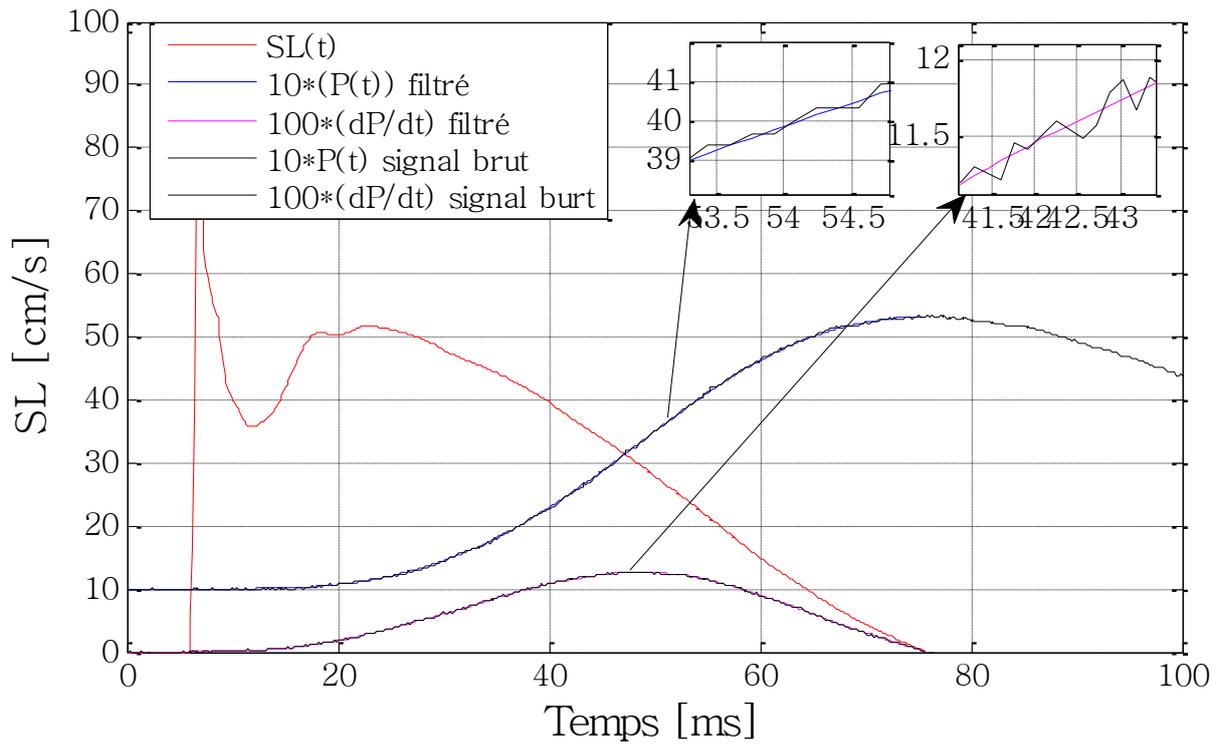


Figure III. 43 : Vitesse de flamme laminaire à partir du signal de pression

L'influence des parois est bien visible sur l'évolution du front de flamme les valeurs de vitesse laminaire sont extraites dans la zone laminaire en prenant le temps correspondant à rayon de flamme de 21 mm. A partir de ce temps, on récupère la valeur de vitesse correspondante.

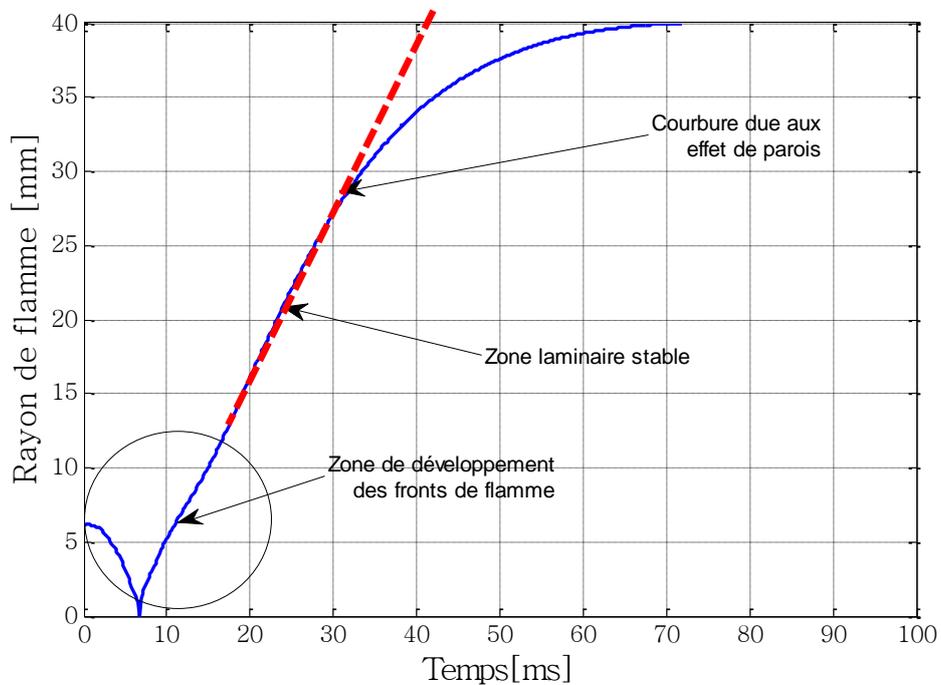


Figure III. 44 : Evolution du rayon du front de flamme $P=1\text{bar}$, $T_0=347\text{ K}$ et $E_{inc}=60\text{ mJ}$

6.3.1 Effet de la richesse ($P_0 = 1 \text{ bar}$ $T = 347 \text{ K}$ et $f = 100 \text{ mm}$)

L'ensemble des données collectées pendant les expériences pour les richesses (0,65 ; 0,9 ; 1,1 ; 1,3 et 1,6) sont exploitées en utilisant le modèle présenté précédemment. Chaque tir laser réussi est lié à son énergie absorbée. Les résultats sont regroupés sur la *Figure III. 45* de gauche. Ces résultats montrent un effet plus au moins sensible de l'énergie absorbée sur la valeur de la vitesse de flamme laminaire. Une énergie absorbée faible abaisse légèrement la valeur de la vitesse laminaire. La moyenne mobile approximant l'ensemble des résultats montre cet effet.

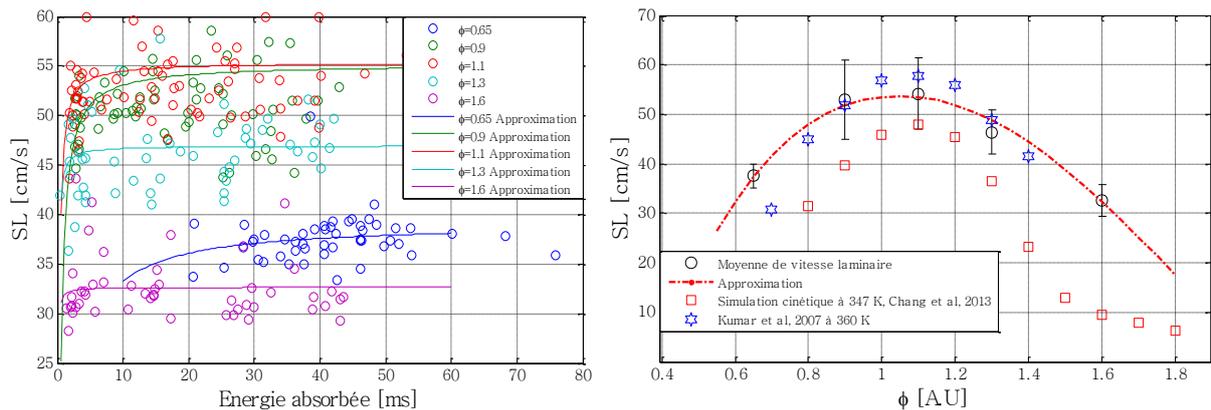


Figure III. 45 : Vitesse de flamme laminaire en fonction de l'énergie déposée.

La *Figure III. 45* de droite montre la moyenne des vitesses laminaire en fonction de la richesse. Les résultats que nous avons calculés sont comparés à des résultats de simulation numérique en utilisant un schéma cinétique réduit de (Chang et al, 2013) et aux résultats de (Kumar & Sung, 2007) qui a travaillé à une température 360 K proche de la nôtre.

On remarque aussi que l'écart type associé à la vitesse laminaire augmente dans la zone proche de la stœchiométrie et diminue vers les zones de limites d'inflammabilité. Un résultat au sens inverse des délais d'allumage calculés et présentés précédemment.

6.3.2 Effet de la Pression sur la vitesse de flamme

Dans cette partie, un travail sera effectué (avec le modèle de Bradley) pour faire des estimations sur le paramètre (S_L) et montrer l'effet de la pression dans le cas des mélanges pauvres et proche stœchiométrie.

Les trois configurations sont présentées dans *Figure III. 46* (A), (B) et (C). On voit bien que la basse pression offre une meilleure valeur à la vitesse de flamme laminaire. À $P=0.250 \text{ bars}$, cette valeur avoisine les 110 cm/s pour la richesse $\phi=0.65$. Au fur et à mesure que la pression augmente ce paramètre décroît. Les moyennes de l'ensemble des mélanges étudiés sont représentés sur la *Figure III. 46* (D). Le cas $\phi=1.1$ à $P=3 \text{ bars}$ se caractérise par une faible valeur qui est due à la condensation du $C_{10}H_{22}$.

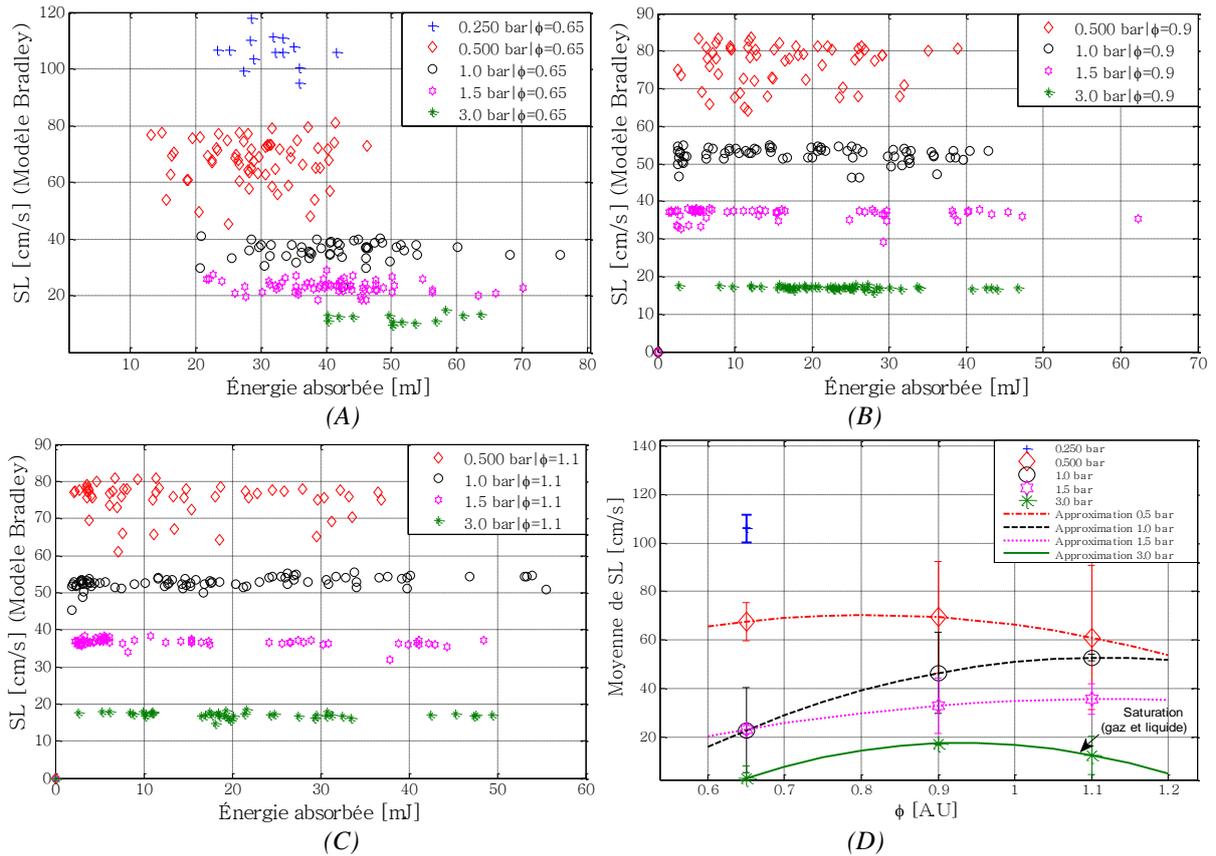


Figure III. 46 (A), (B) et (C) Effet de la pression sur les valeurs des vitesses de flamme laminaire (D) Moyennes associées aux mélanges en fonction de la richesse.

7 Signaux de photodiodes de la combustion (n-décane/ N_2+O_2)

La Figure III. 47 présente les mesures par photodiodes (Photodiode H250 SIEMENS SF) des émissions lumineuses des flammes lors des allumages laser à différentes énergies incidentes, pour une richesse de 1,1. On voit bien que l'émission de la flamme n'est pas uniforme d'un tir laser à un autre et on peut remarquer que l'écart type est important aux énergies de 30, 40, 70 et 80 mJ.

Cela s'explique par des différences d'énergie déposées. Lors de l'utilisation d'une énergie incidente, l'absorption n'est pas toujours constante et cela a été déjà constaté dans la Figure III. 16 avec le mélange réactif ($C_{10}H_{22}+O_2+N_2$). Il en est de même pour les signaux des premiers fronts de flamme de haute température induisant l'allumage Figure III. 48. Dans ce cas on voit que l'intensité augmente approximativement linéairement en fonction de l'énergie incidente. Ces derniers sont caractérisés par des écarts types avec des valeurs considérables i.e. avec une même énergie incidente c'est difficile d'avoir le même cas d'intensité lumineuse.

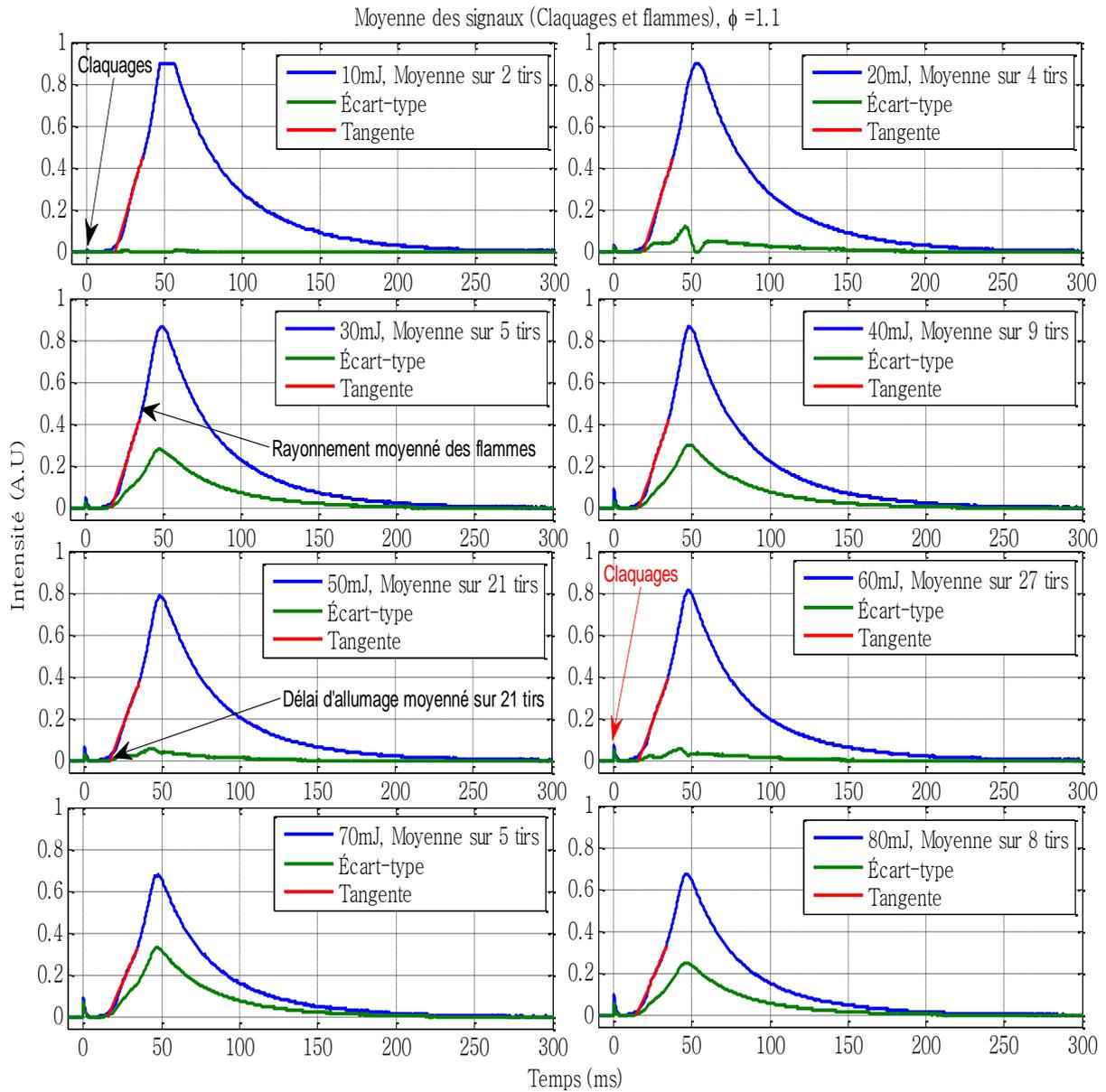


Figure III. 47 : Moyenne des signaux de photodiodes pour des allumages laser avec des énergies incidentes de 10 à 80 mJ

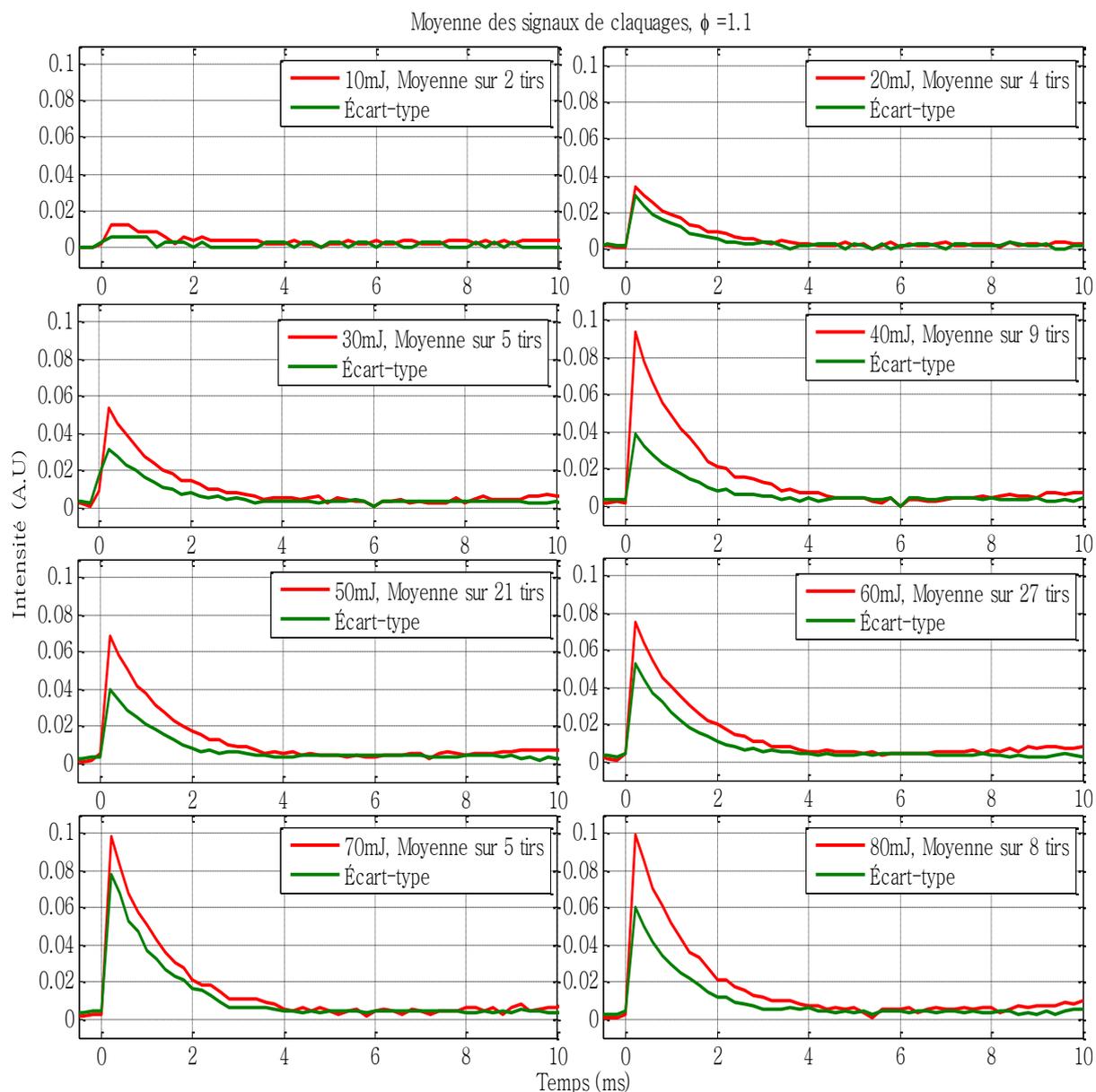


Figure III. 48 : Moyenne des signaux de photodiodes montrant les fronts de flamme juste après les claquages

7.1 Estimation des délais d'allumage par signaux de photodiodes

L'exploitation des signaux de photodiode correspondant aux émissions lumineuses de flamme pour les richesses (0,9, 1,1, 1,3, 1,6 et 2,0) avec une focale de 150 mm nous ont permis de remonter aux délais d'allumages en appliquant la même méthode expliquée avec l'exploitation des signaux de pression (Figure III. 33).

Ce paramètre délai d'allumage (IDT : Ignition Delay Time) a été mesuré avec un détecteur infrarouge rapide et tous les résultats ont été approximés à l'aide d'une loi exponentielle (EQ III.15) pour chaque richesse en fonction de l'énergie absorbée.

L'ensemble des résultats est présenté sur la Figure III. 49 .

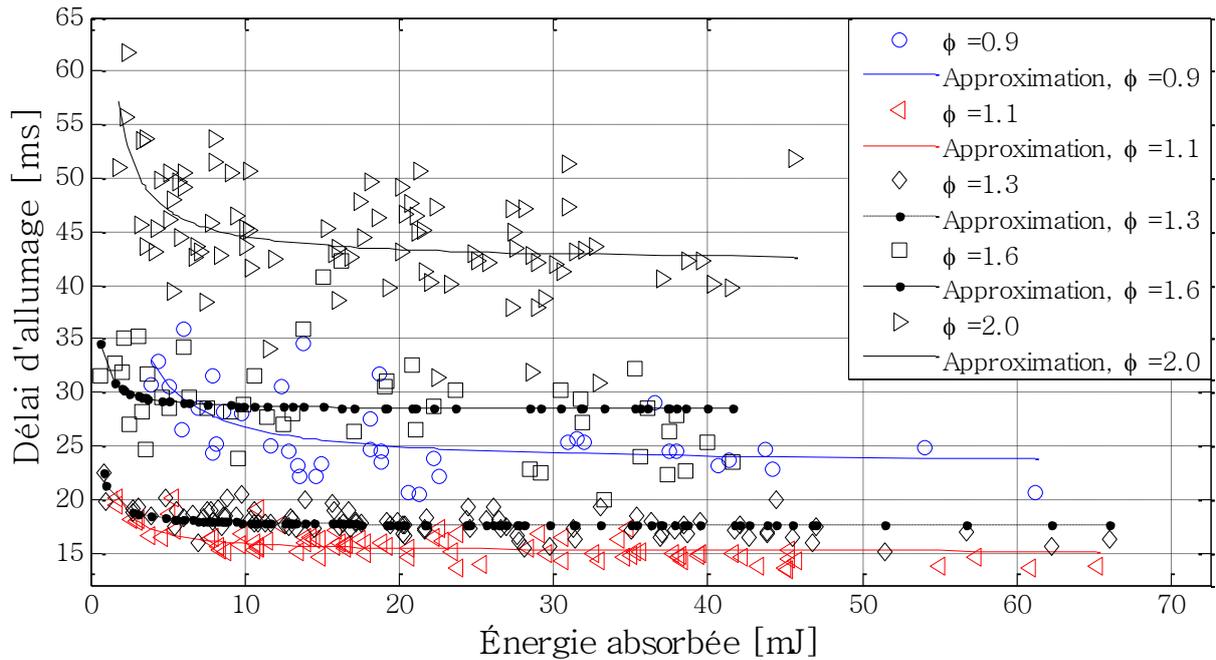


Figure III. 49 : Délais d'allumage en fonction de l'énergie absorbée et de la valeur de la richesse ($f=150$ mm)

La dispersion de ce paramètre est une fonction de la richesse (ϕ) : Des délais d'allumage les plus faibles avec des dispersions les plus faibles ont été enregistrés près de la stœchiométrie ($\phi = 1,1$; avec un délai d'allumage compris entre $13,43 < IDT$ (ms) $< 20,12$), alors que loin de ce point de fonctionnement, l'effet inverse a été observé, par exemple ($\phi = 2$; ce paramètre est situé entre 30,9 et 61,78 ms).

Cette grande dispersion est due aux différents modes d'allumage correspondant au mélange considéré (pauvre stœchiométrie ou riche). Avec une forte concentration d'oxygène (mélange pauvre), il existe une plus grande probabilité d'ionisation des molécules d'oxygène que les molécules de $C_{10}H_{22}$, ce qui entraîne la production d'une faible quantité de l'amorceur OH^* et de formaldéhyde CH_2O . Par la suite, l'allumage nécessite plus de temps pour produire et faire propager une quantité suffisante d'électrons thermiques et des ions pour amorcer la combustion. Avec une forte concentration de n-décane, il y a une plus grande probabilité de créer des radicaux de plusieurs espèces alkyles qui prennent un certain temps pour se former et initient et maintiennent les réactions en chaîne chimique.

À la stœchiométrie, la création équilibrée des radicaux amorceurs et alkyles de décomposition du $C_{10}H_{22}$ est équilibrée, de fait la combustion est rapidement atteinte et cette configuration présente le régime de combustion optimale pour s'initier et se maintenir.

La moyenne des valeurs présentées sur la *Figure III. 49* est représentée sur la *Figure III. 50*. Une comparaison entre les résultats issus des mesures photodiode et les mesures de pression montre que la différence est très faible et les résultats présentent la même tendance.

Tableau III. 10 : Valeur expérimentales de (A) et (B)

Paramètres	A	B
ϕ		
0,9	23,24	1,400
1,1	15,04	0,539
1,3	17,49	0,203
1,6	28,36	0,133
2,0	42,16	0,546

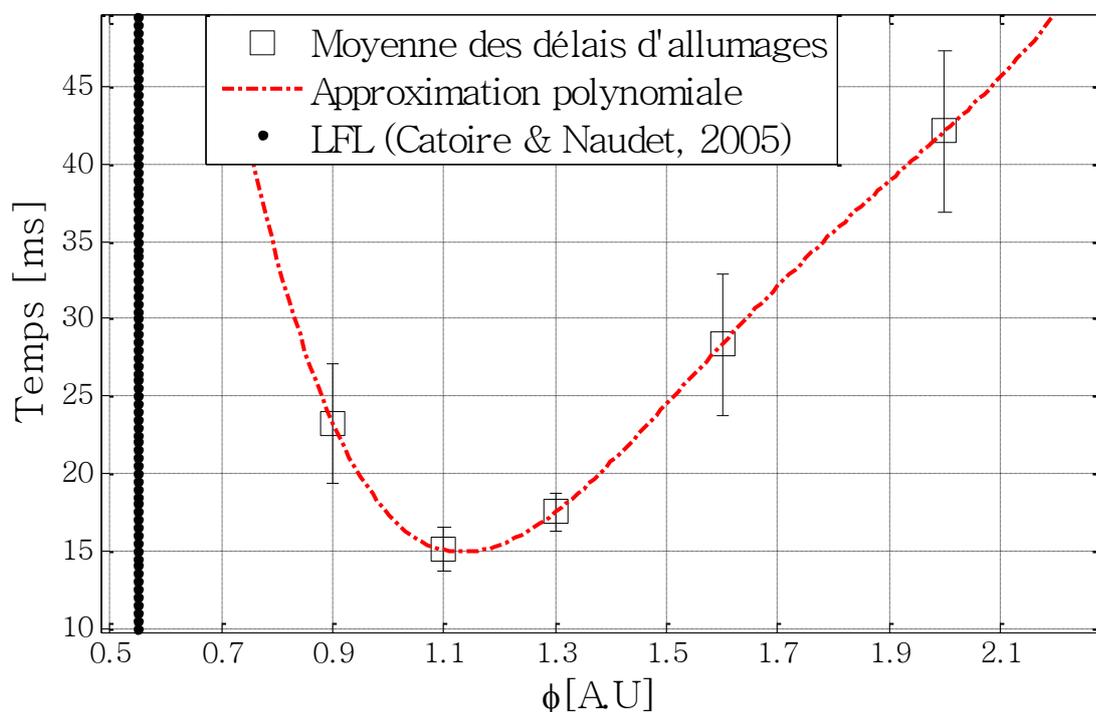


Figure III. 50 : Moyenne des délais d'allumages en fonction de la richesse sans tenir compte de l'énergie absorbée.

La différence pour le cas de la richesse 1,1 avoisine approximativement 2 ms, les mesures issues des signaux photodiode sont les plus sensibles. Le temps de réponse de la photodiode est de 1 ns, tandis que celui du capteur de pression est beaucoup plus long de l'ordre de la microseconde. Sachant que la vitesse de déplacement de la lumière et la vitesse de dépassement de l'onde de pression sont incomparables. Les deux techniques restent un moyen de mesure qui donne de bonnes estimations sur les délais d'allumage.

7.2 Effet de la richesse sur l'émission de la flamme (mesures photodiodes)

Un autre effet de la richesse est observé lors des expériences. Ce dernier concerne la luminosité de la flamme. Les observations tout au long des expériences montrent une faible luminosité qui

est bien détectable à l'œil pour la richesse $\phi = 1,6$ lors de la combustion du n-décane ($C_{10}H_{22} + N_2 + O_2$).

Pour montrer cet effet, une moyenne sur 5 tirs laser est calculée pour chaque richesse en mesurant le maximum d'émission de la flamme. Le résultat est sur la *Figure III. 51*.

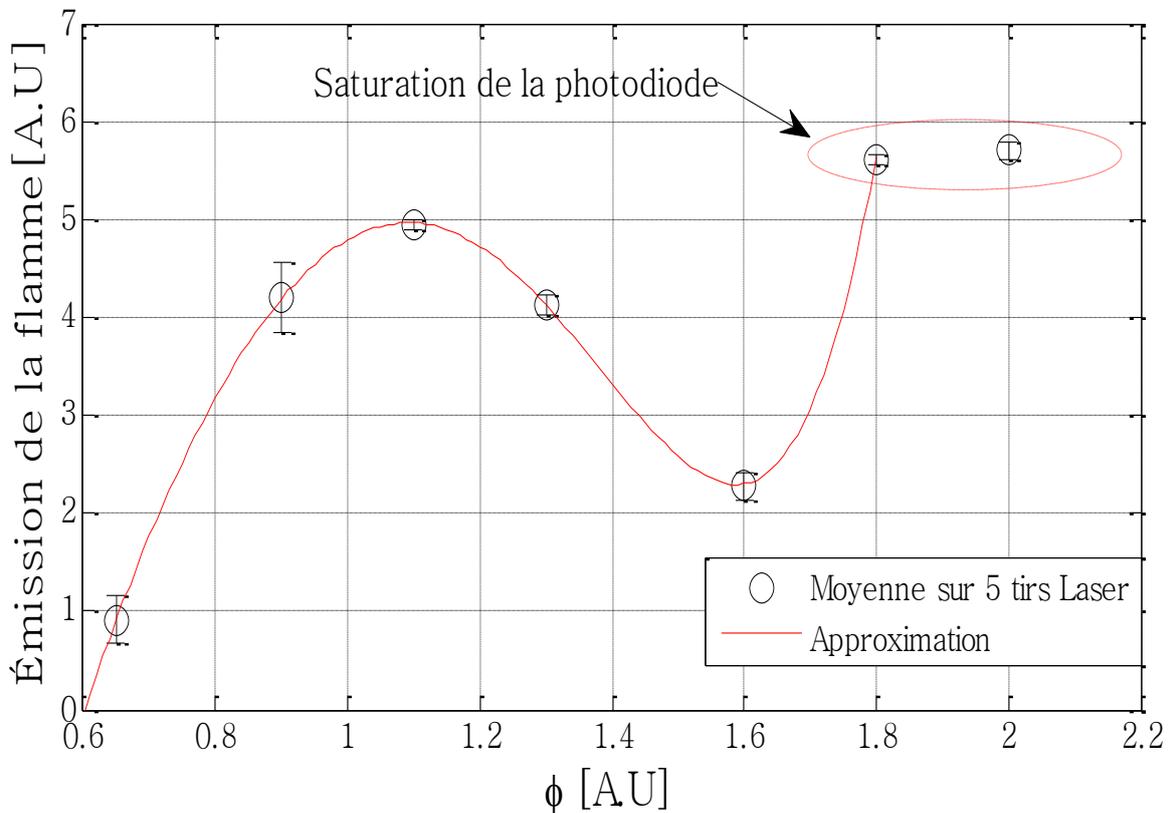


Figure III. 51 : Moyenne d'émission des flammes par mesure photodiode en fonction de la richesse.

Cette figure montre que le taux de production des espèces qui rayonnent est différent en partant d'une richesse à une autre. Une mesure importante concerne la richesse 1.6 qui décroît ensuite énormément. Pour les plus fortes richesses, la production de suies augmentant, le rayonnement de celles-ci deviennent prépondérantes devant celui de la flamme. Une analyse par chromatographie-spectroscopie de masse portant sur les produits de combustion permettrait de valider ces explications.

8 Spectroscopie des claquages et des flammes de (n-décane/ $N_2 + O_2$)

Lors des expériences, on a enregistré l'émission chromatique de la flamme pour les tirs réussis. Un exemple d'une spectroscopie des phénomènes étudiés (flamme et plasma) en fonction du temps est présenté sur la *Figure III. 52*.

À temps = 0 on voit le spectre du plasma sur lequel on peut distinguer le pic laser à 1064 nm et les états excités des éléments atomiques composant le mélange.

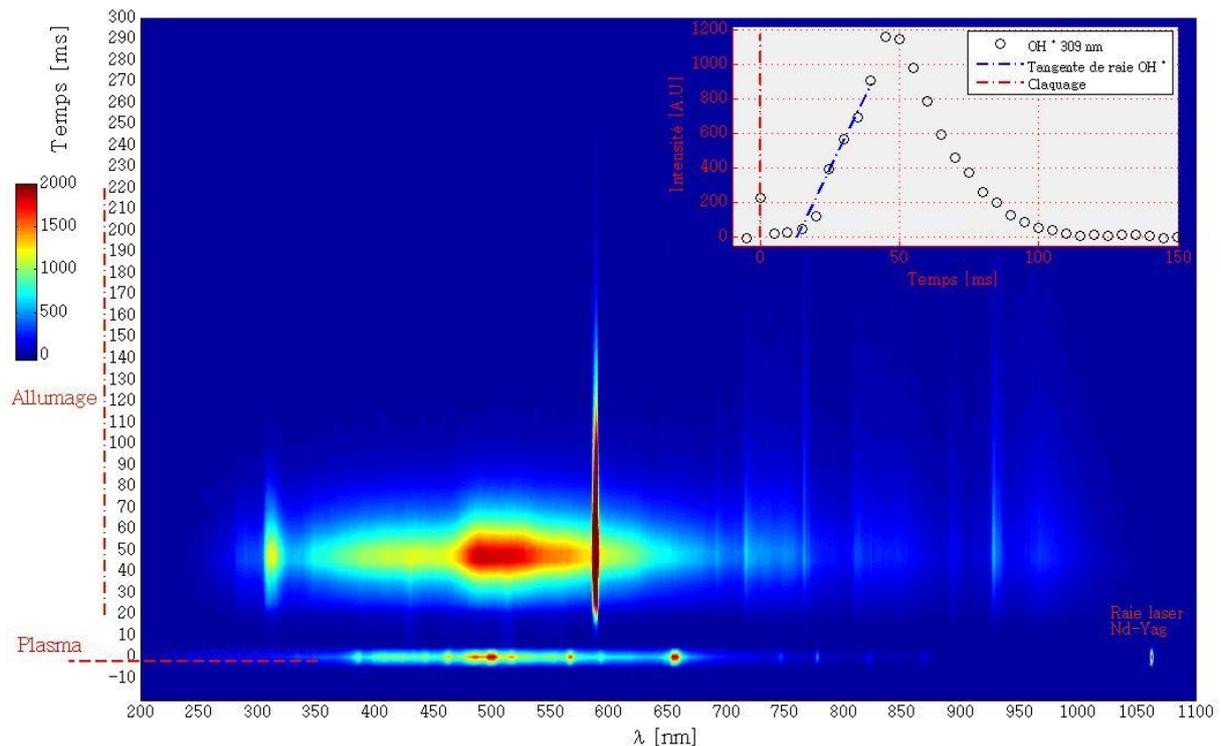


Figure III. 52 : Spectroscopie d'émission résolue en temps du plasma et de la flamme ($t=2$ ms pour une acquisition $E_{inc}=80$ mJ et $\phi=1.1$)

Cette figure présente en d'autres termes une chronologie des espèces présentes dans le plasma et dans la globalité du front de flamme induit par la relaxation des états ionisés NI NII OI OII CI en donnant naissance aux différents radicaux OH^* , CH^* , CN^* , C_2^* ...

Cette chronologie est plus au moins longue car, le temps d'intégration pour une acquisition est de l'ordre de 2 ms. Ce dispositif optique permet aussi de mesurer le délai d'allumage à partir duquel un rayonnement radicalaire apparaît ou celui d'une espèce chimique liée à sa longueur d'onde d'émission, à l'exemple des bandes de Swan correspondant au carbone biomoléculaire caractéristique d'une combustion organique.

Comme on le voit sur la *Figure III. 52*, le délai d'induction chimique d'une espèce ou d'un radical peut être estimé à partir des mesures spectroscopiques comme, l'exemple présent sur la figure en haut à droite qui correspond au radical OH^* . La même procédure peut être faite pour les autres radicaux ou espèces à l'exemple de la vapeur d'eau H_2O^* ...

8.1 Estimation des délais d'induction par spectroscopie d'émission

Un exemple d'estimations de ces délais est porté sur les radicaux OH^* , CH^* et C_2^* . Ces derniers représentent les bandes d'émission les plus apparentes sur les spectres type *Figure III. 52*.

Une représentation des moyennes de ces délais d'inductions en fonction de la richesse est représentée sur la *Figure III. 53*. On remarque une même tendance en comparant ces résultats aux délais d'allumages calculés avec les signaux de pressions et les signaux de photodiodes.

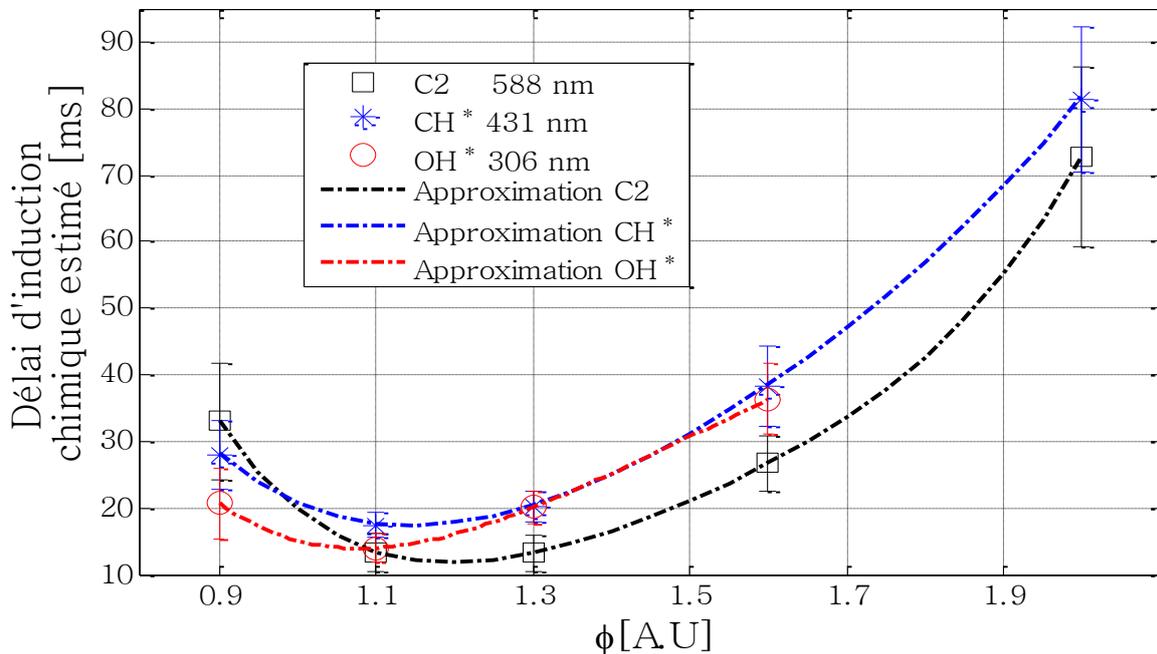


Figure III. 53 : Moyenne des délais d'inductions chimiques de quelques radicaux en fonction de la richesse.

Il est facile de remarquer que le radical OH* dans le cas des mélanges pauvres devance l'apparition du carbone biomoléculaire C2*, de même pour le radical CH*. À la stœchiométrie l'apparition OH* et C2* ont le même délai d'apparition suivi par la suite de l'apparition du radical CH*. Dans le cas des mélanges riches, la bande C2* devance l'apparition des radicaux OH* et CH*. Une fluctuation de ces délais est visible sur les zones proches des limites d'inflammabilités comme cela a déjà été observé avec les mesures physiques précédentes des délais d'allumages.

8.2 Spectroscopie de claquage et de la flamme

Dans cette section on essaiera de voir en détail les états ionisés et les espèces qui émettent plus lors du claquage laser ainsi que les espèces qui caractérisent le front de flamme.

Concernant le plasma on s'est basé sur la base de NIST pour détecter les états ionisés et excités des atomes composant le mélange.

On essaiera aussi d'appliquer un modèle de Boltzmann sur les raies de l'azote pour estimer la température électronique du plasma.

8.2.1 Espèces ionisées de claquage

Les espèces émettrices du plasma sont détectées par la spectroscopie d'émission. Ces dernières sont présentées sur la *Figure III. 54*. Les espèces qui émettent le plus sont l'hydrogène avec sa bande alpha la plus visible dans le spectre, l'azote NI dans le visible et dans le proche infrarouge, l'oxygène atomique OI à 777 nm et le carbone CI dans le visible.

Les bandes ionisées 2 fois sont rares et elles sont de faible intensité.

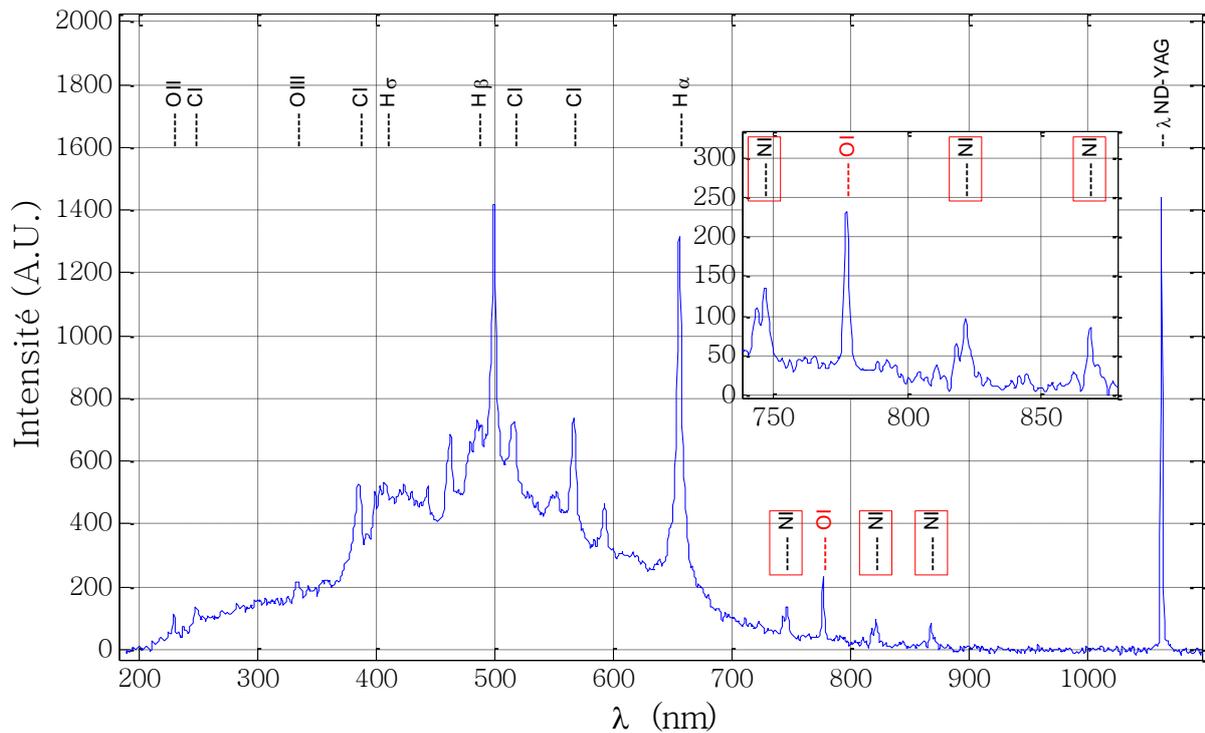


Figure III. 54 : Emission spectroscopique du plasma et détection des espèces ionisé et excité ($E_{inc}=80$ mJ et $\phi=1.1$)

8.2.2 Estimation de la température électronique

Dans ce qui va suivre on se propose de faire une estimation de la température électronique du spectre précédent (*Figure III. 54*) en se basant sur les raies de l'azote ionisé une fois dans le proche infrarouge. Pour ce faire on réalise une collecte des données atomiques de cet élément (NI) dans la base de ("NIST : Atomic Spectra Database Lines Form," 2016) et la base ("Kurucz Database," 2016). L'ensemble des données est présenté dans le *Tableau III. 11*.

On rappelle qu'avant l'exploitation du spectre, celui-ci est vérifié par rapport aux longueurs d'ondes avec la lampe Krypton qui émet plus dans le proche infrarouge (Chapitre : I). Par la suite, le spectre brute est normalisé avec l'intensité d'une lampe à tungstène et l'ensemble est normalisé par le spectre d'intensité de la lampe à tungstène en fonction de la longueur d'onde *Figure III. 55*.

Tableau III. 11 : Caractéristiques des raies d'azote type NI : ("Kurucz Database," 2016)

Raies d'Azote ionisé une fois	λ (nm)	Log (gf)	A (1/s)	Niveau d'énergie inférieur (cm^{-1})	J inférieur	Niveau d'énergie supérieur (cm^{-1})	J supérieur
NI	744,0684	-2,980	$2,101 \cdot 10^4$	96864,050	2,5	110299,974	2,5
NI	746,9976	-1,570	$4,019 \cdot 10^5$	96864,050	2,5	110247,288	3,5
NI	818,4861	-0,418	$6,335 \cdot 10^6$	83317,830	1,5	95532,150	2,5
NI	821,6336	-0,012	$1,601 \cdot 10^7$	83364,620	2,5	95532,150	2,5
NI	868,0282	0,236	$1,904 \cdot 10^7$	83364,620	2,5	94881,820	3,5
NI	871,1703	-0,377	$9,218 \cdot 10^6$	83317,830	1,5	94793,490	1,5

La méthode de calcul par Boltzmann est présentée dans le premier chapitre.

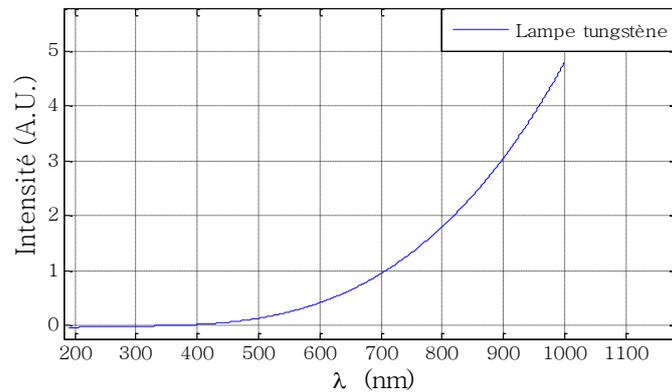


Figure III. 55 : Intensité de la lampe tungstène en fonction de la longueur d'onde

Le spectre vrai calculé avec l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local est représenté dans la Figure III. 56 (courbe noire) les rapports d'intensité sont choisis de telle sorte qu'un grand espacement en longueur d'onde y figure pour éviter les erreurs de calculs.

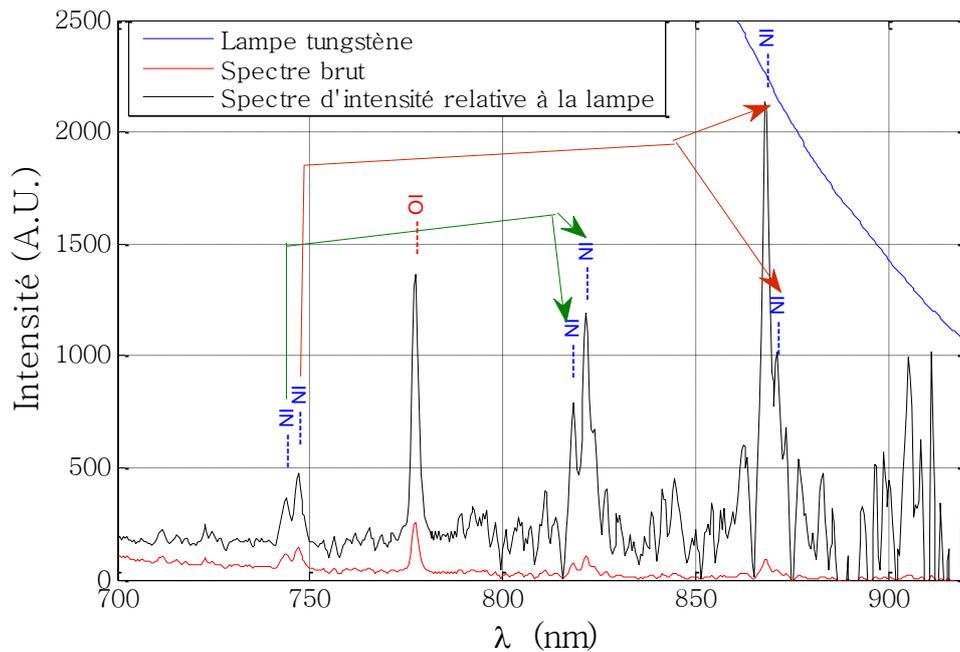


Figure III. 56 : Application d'un Boltzmann sur les raie de l'azote NI dans le proche infrarouge.

Notre estimation donne une valeur de $1.96 \cdot 10^6$ K (Figure III. 57) comme température électronique du plasma. Rappelons que ce spectre est réalisé à haute énergie incidente 80 mJ qui permet une bonne absorption en moyenne de 40 mJ.

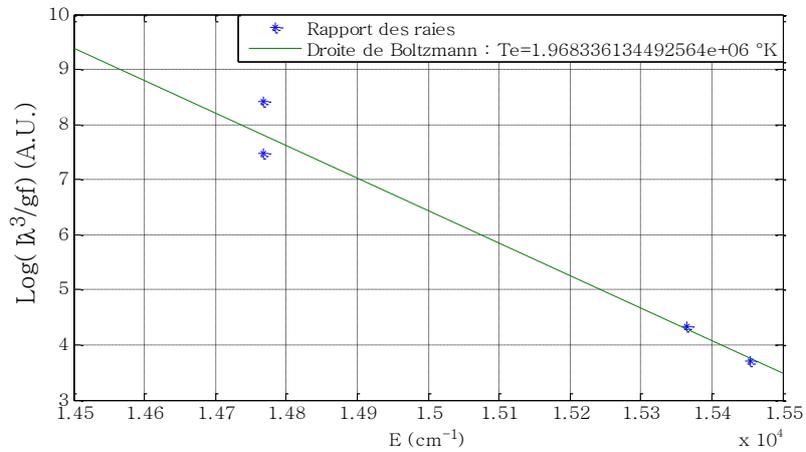


Figure III. 57 : Droite de Boltzmann avec la raie d'émission NI.

8.2.3 Espèces radicalaires et émission de la flamme

La Figure III. 58 montre le spectre de la flamme à la naissance i.e. vers un temps 20 ms correspondant au délai d'allumage pour une richesse ($\phi=1.3$) et un temps à l'embrasement (à l'émission maximale) $t=40$ ms puis à l'extinction pour des temps de l'ordre de 110 et 160 ms.

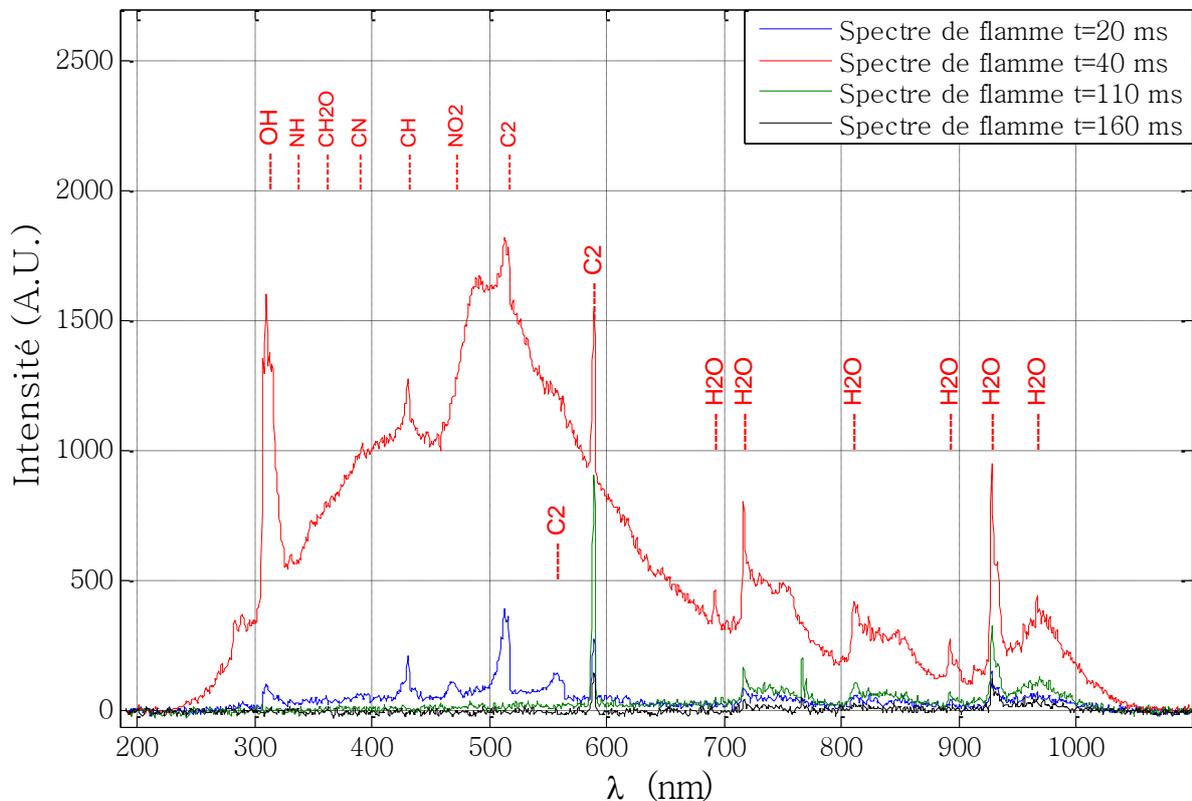


Figure III. 58 : Evolution en temps de la spectroscopie de la flamme pour un cas à une pression 1 bar et $\phi=1.3$.

À la naissance de la flamme on peut observer l'apparition du radical OH^* (309 nm), le radical CH^* (431 nm) les amorceurs principaux de la combustion. Les bandes de Swan du carbone biomoléculaire C_2^* (467 ; 515 ; 557 ; 588 nm) et des pics qui montrent la formation de la vapeur d'eau excitée H_2O^* (692 ; 716,3 ; 809,8 ; 892,5 ; 927,3 ; 926,2 nm (PEARSE & GAYDON, 1976)) y figurent bien aussi. À l'émission maximale du front de flamme, les radicaux OH^* , CH^* , C_2^* et H_2O^* se distinguent du continuum en présentant des pics bien distincts. À l'extinction, tous les radicaux amorceurs de combustion meurent. Le carbone biomoléculaire à 688 nm et la vapeur d'eau excitée dans le proche infrarouge continuent d'émettre jusqu'à 160 ms pour la richesse $\phi = 1,3$.

8.3 Effet de la richesse sur la spectroscopie de la flamme

Les spectres ci-dessous (*Figure III. 59*) montrent l'effet de la richesse sur la configuration des raies d'émissions des radicaux amorceurs OH^* CH^* et intensité d'émission de la flamme. L'ensemble des figures montre un niveau d'intensité qui augmente en faisant croître la valeur de la richesse cela se voit dans le code couleur de la barre de couleur placée à gauche de chaque figure. ($\phi=0,65$; $I_{\max}=1000$), ($\phi=0,9$; $I_{\max}=1500$), ($\phi=1,1$; $I_{\max}=4000$); ($\phi=1,3$; $I_{\max}=3000$), ($\phi=1,6$; $I_{\max}=800$), ($\phi=1,8$; $I_{\max}=5000$) et ($\phi=2,0$; $I_{\max}=15000$),

On rappelle que ces figures prennent en compte tout l'angle solide englobant l'émission complète du front de flamme qui se propage dans le volume du réacteur. D'après ces mesures on trouve pratiquement la même chose si on compare l'intensité des spectres à l'intensité mesurée par la photodiode *Figure III. 51*. Les mesures montrent une faible intensité vers la richesse $\phi = 1,6$. Pour l'instant, ce résultat peut être expliqué par une combustion incomplète du combustible $\text{C}_{10}\text{H}_{22}$ causé par la consommation totale de l'oxydant (O_2) Pour valider cette explication, une analyse des produits de combustion serait une solution qui pourrait valider cette supposition. La caractéristique du spectre correspondant ($\phi=1,6$) présente un continuum avec une faible émission dans lequel les mêmes radicaux OH^* , CH^* C_2^* et H_2O^* se distinguent mais avec une faible intensité. À la richesse $\phi=1,8$ l'intensité d'émission augmente et les émissions des radicaux sont noyées dans le continuum, la seule raie d'émission qui se distingue dans le continuum est la bande C_2^* (588 nm). À la richesse $\phi=2$ toutes les raies sont noyées dans le continuum et du coup on a pratiquement l'émission d'un corps noir car cette intensité est due aux rayonnements des suies. Dans le dernier spectre ($\phi=2$), on remarque un double amorçage un par le plasma ($t=0$ ms) et un amorçage par un front de flamme primaire ($50 < t < 100$ ms) et finalement une combustion complète à partir de 100 ms.

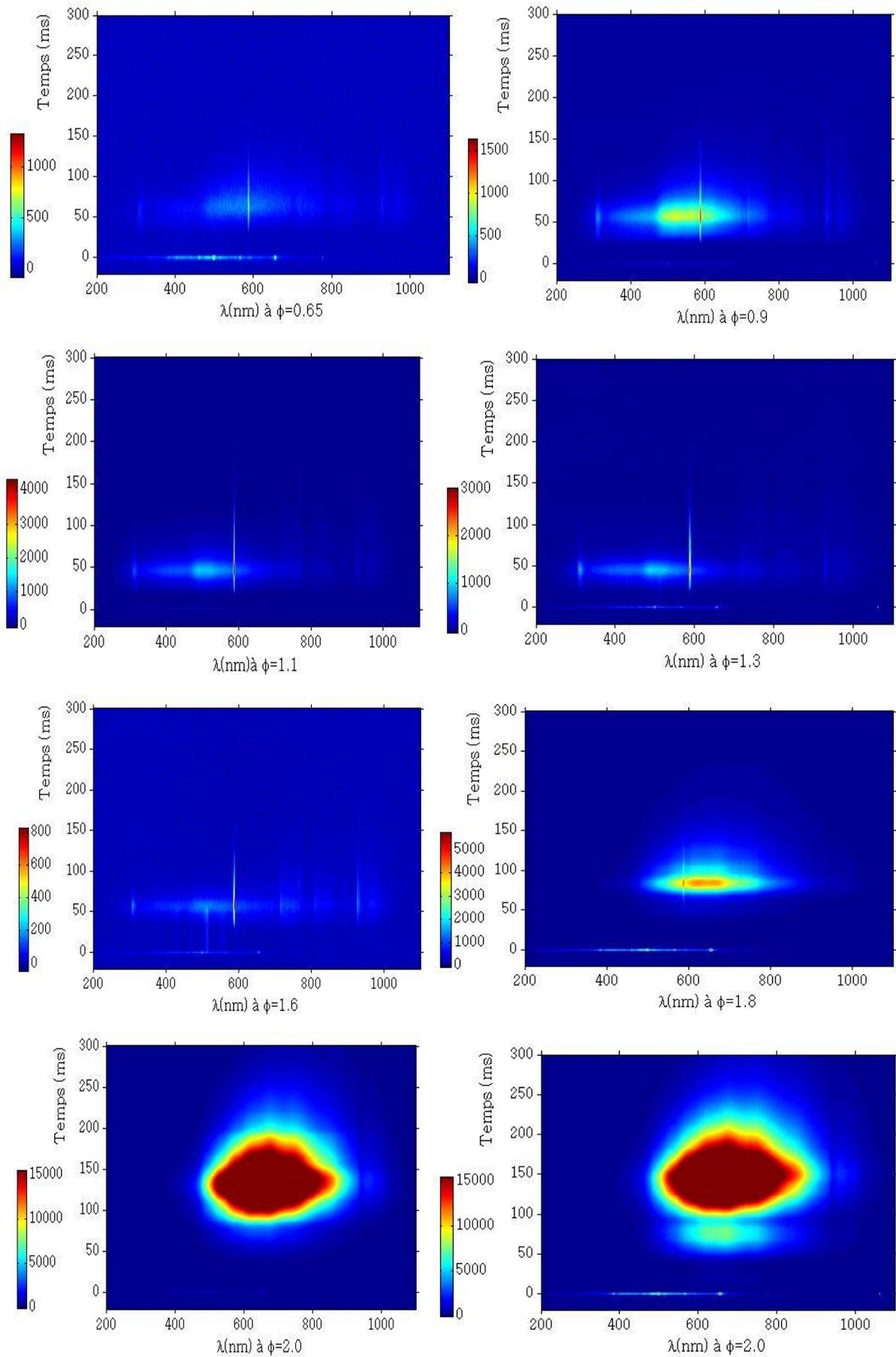


Figure III. 59 : Effet de la richesse sur la spectroscopie de la flamme en fonction du temps

9 Visualisations Schlieren par caméra rapide ($E_{inc}=100\text{ mJ}$)

Dans cette section, on présente quelques premières visualisations par méthode Schlieren correspondantes aux fronts de flammes primaires correspondant à des allumages par claquage laser. La *Figure III. 60* présente une grille utilisée pour calibrer les clichés captés par la caméra. La fenêtre de visualisation optique fait 6.13 cm qui est inférieure au diamètre optique du réacteur dont le diamètre fait 8 cm.

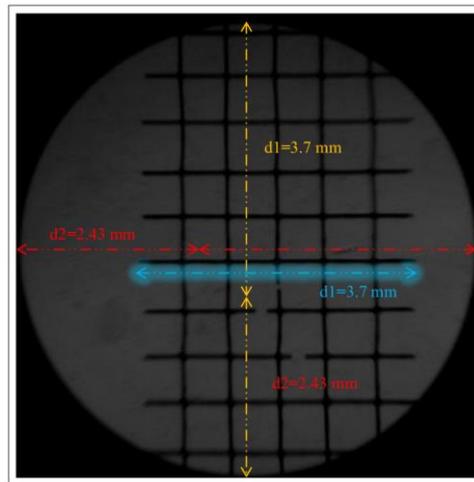


Figure III. 60 : Calibrage de la fenêtre optique

9.1 Effet de richesse ($P_0=1\text{ bar}$, $E_{inc}=100\text{ mJ}$)

La *Figure III. 61* présente des visualisations Schlieren captées à un temps de 1.5 ms grâce à une caméra rapide Phantom Miro 310. Si on compare ces différentes images on peut détecter que le volume des premiers lobes de flammes augmente au fur et à mesure qu'on s'approche de la stœchiométrie. Ces premiers lobes de flamme sont de faible taille pour la richesse $\phi = 0,65$ et $\phi = 2,0$. Cette observation explique les délais d'inflammation tardive des configurations proches des limites d'inflammabilité.

La forme des lobes est affectée par l'énergie déposée et par la composition du mélange gaz. La première figure à $\phi = 0,65$ présente une configuration pareille avec les visualisations de l'allumage laser du propane/air à voir dans le chapitre II avec les visualisations de Bradley (Bradley, 2004). Dans ces observations on voit pratiquement la même configuration présentée dans le chapitre II avec l'apparition du troisième lobe qui remonte vers le laser.

Une statistique sur les visualisations permettra de voir l'effet de l'énergie absorbée sur l'évolution de la forme des lobes de flamme primaires.

Certainement une caractérisation en faisant évoluer le volume focal peut donner des observations intéressantes. Un autre phénomène à voir aussi qui ne peut être mis en évidence

que par une statistique est l'effet de l'onde sonore émise et reflétée par les parois du réacteur sur la déformation des lobes primaires et sur la géométrie caractéristique de l'allumage laser.

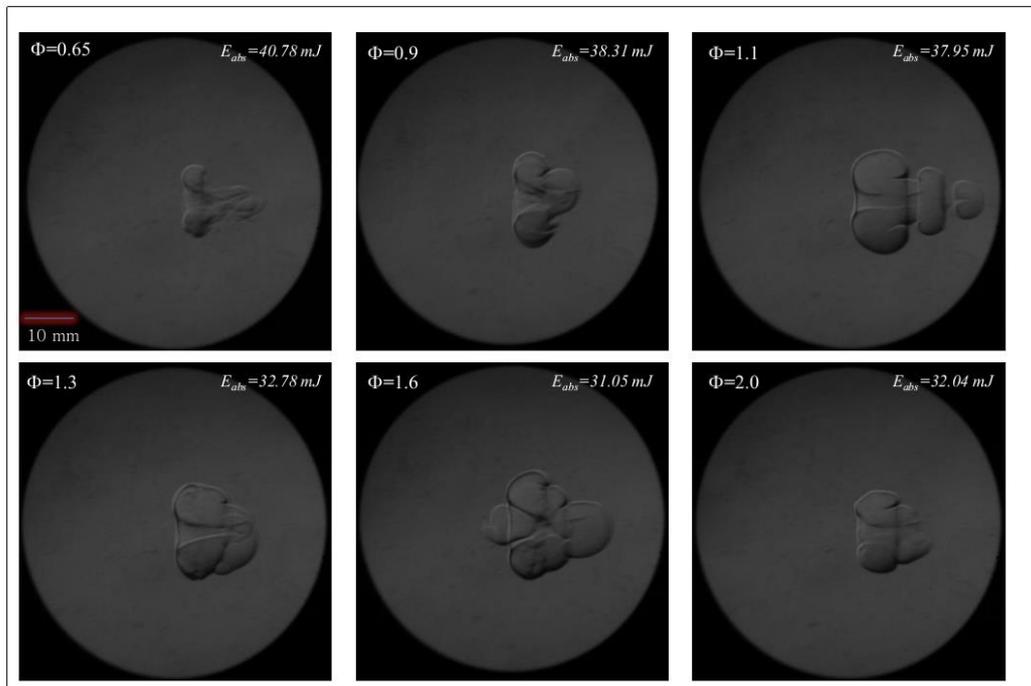


Figure III. 61 : Effet de la richesse : image par visualisation Schlieren à $t=1.5\text{ ms}$ et $t=347\text{ K}$: réalisée par caméra rapide Phantom Miro 310.

La Figure III. 63 montre bien l'effet de la richesse sur l'évolution de la vitesse de flamme apparente du lobe de flamme supérieure en suivant l'évolution du rayon pris par rapport à une origine fixée et une direction bien perpendiculaire au front de flamme (Voir la Figure III. 62). La richesse $\phi = 1,1$ présente la meilleure configuration avec une vitesse apparente de 300 cm/s . cette caractéristique diminue vers les zones proches des limites d'inflammabilité.

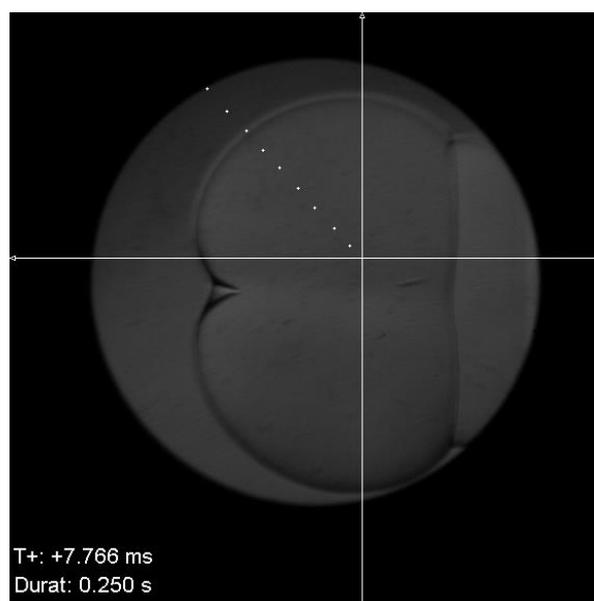


Figure III. 62 : Méthode d'extraction de la vitesse apparente sur le lobe supérieur ($P=1\text{ bar}$ et $\phi=1,1$)

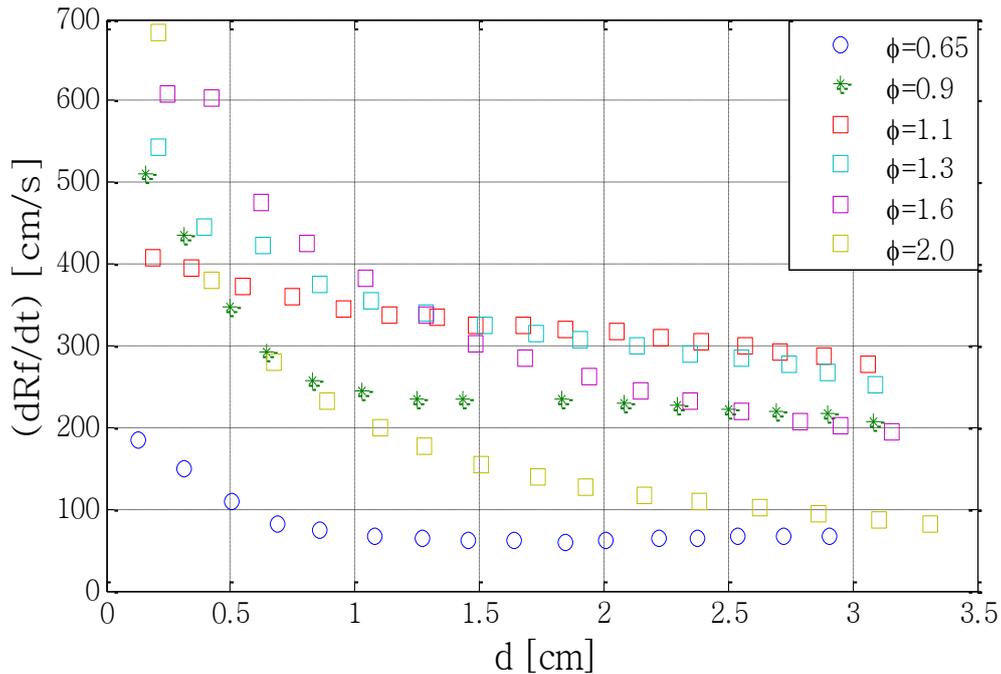


Figure III. 63 : Vitesses de flamme apparente (dr/dt) prises perpendiculairement sur la propagation du lobe supérieur.

9.2 Effet de la pression ($\phi=1.1$, $E_{inc}=100$ mJ)

L'effet de la pression est aussi considéré pour mettre en évidence son influence sur l'évolution de la géométrie des lobes de flammes correspondantes et pour un temps fixé à 1,5 ms. Les mélanges considérés sont faits à une richesse de $\phi = 1,1$ proche de la stœchiométrie.

L'absorption du milieu gaz vis-à-vis de la source lumineuse est parfaitement détectée par l'intensité lumineuse de la fenêtre optique qui diminue au fur et à mesure que la pression augmente. Ainsi l'intensité des gradients de densité qui représentent les fronts de flammes apparaît mieux vers les hautes pressions.

La pression affecte la configuration géométrique de l'allumage laser. Cela s'observe si on compare ces résultats avec les résultats des configurations proches de la stœchiométrie de la Figure III. 61 à 1 bar qui sont prises avec la même configuration de visualisation vers le temps de 1,5 ms après le trigger laser.

L'augmentation de la pression affaiblit le volume des premiers fronts de flamme si on considère la même échelle du temps i.e. l'augmentation de la pression retarde la combustion ce qui peut se voir aussi par des vitesses de propagation faible Figure III. 65.

On rappelle que la pression $P = 3$ bar entraîne la présence de condensats bien visible sur la dernière image.

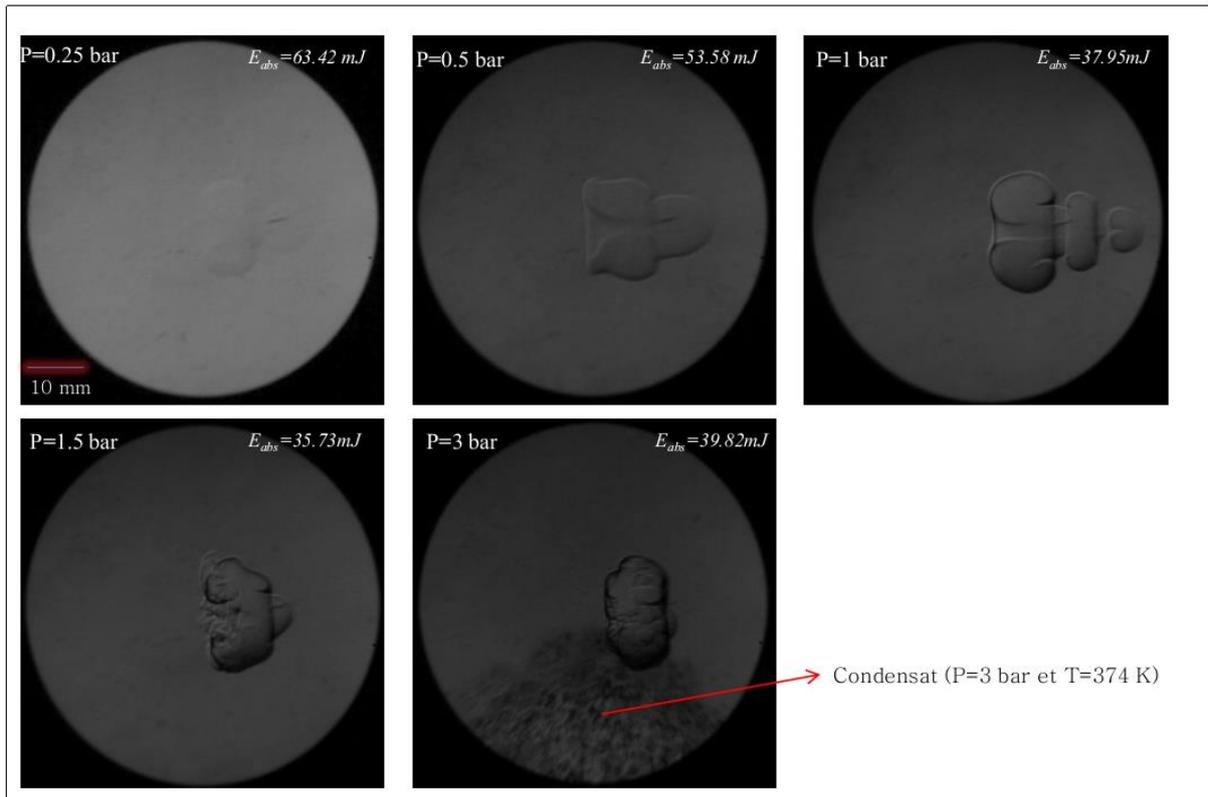


Figure III. 64 : Effet de la pression sur la formation des premiers lobes de flammes à $t=1.5$ ms : visualisations Schlieren par caméra rapide Phantom Miro 310

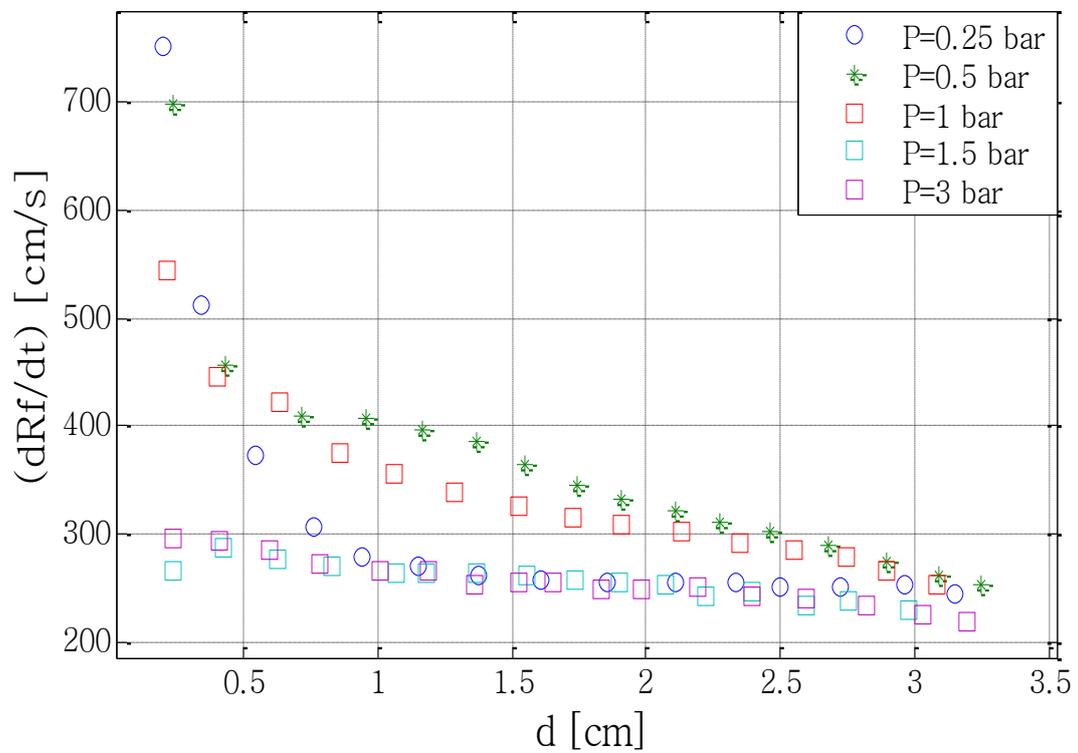


Figure III. 65 : Vitesse de flamme apparente (dRf/dt) prise sur la propagation du lobe supérieur.

10 Conclusion

L'applicabilité des systèmes d'allumage par claquage laser est démontrée dans ce chapitre. Ce système nous a permis de montrer l'effet des paramètres thermodynamiques initiaux sur l'absorption des photons du pulse laser. Une caractérisation de quelques mélanges inertes avec différentes compositions et des mélanges réactifs avec du ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2$) montre que le taux d'absorption augmente avec l'augmentation de la pression initiale. Les configurations de claquages dans les produits de combustion présentent les meilleures compositions qui absorbent le mieux le rayonnement laser. Donc, on peut dire que l'allumage laser peut fonctionner de préférence avec la recirculation EGR et un turbocompresseur pour augmenter la pression initiale.

Des études statistiques confirment bien ce qui avait déjà constaté précédemment sur d'autres combustibles en prenant en compte plusieurs paramètres d'études : énergie incidente du laser, l'énergie absorbée dans le mélange, la richesse, la pression et la composition des mélanges claqués ou allumés.

Les paramètres d'énergie MIE ont été déterminés pour deux focales 150 mm et 100 mm. Le constat montre que la valeur de la MIE diminue en utilisant une focale courte mais cela se répercute sur le seuil d'allumage des mélanges proches des limites d'inflammabilité qui voient leur seuil de claquage augmenté avec les focales courtes. Notre résultat avec la focale 150 mm est comparé aux résultats de (Strozzi et al, 2014), une conclusion est que les impuretés jouent le rôle d'un catalyseur de combustion vers les basses richesses et déplacent la valeur de la MIE, de plus elles inhibent la combustion vers les hautes richesses.

L'analyse des signaux de pression et de photodiode nous a permis de remonter aux caractéristiques thermodynamiques et aux caractéristiques temporelles de combustion. Ainsi on a déterminé les délais d'allumage en fonction de l'énergie absorbée (paramètres perturbateurs) et en fonction des conditions initiales. Le résultat donne des délais d'allumage plus faibles pour les mélanges proches stœchiométrie. Par contre, une augmentation de la pression accroît les délais d'allumages pour les deux études considérées ($\phi = 0,65$, $\phi = 1,1$). Les tendances présentées par les délais d'allumage en fonction de l'énergie absorbée sont pratiquement pareilles. Elles suivent toutes les deux une loi exponentielle décroissante en fonction des énergies absorbées par les mélanges.

Des estimations de vitesse de flamme laminaires ont été calculées en utilisant le modèle de Bradley. Ces dernières approximent les valeurs trouvées dans la littérature (Kumar & Sung, 2007) et les valeurs simulées avec un schéma cinétique réduit de (Chang et al, 2013).

L'exploration globale par spectroscopie d'émission a été réalisée pour l'identification des espèces ionisées du plasma. On a ainsi estimé la valeur de la température électronique du claquage, cette valeur est supérieure aux valeurs calculées en utilisant la loi de Beer-Lambert donnant le coefficient d'atténuation.

De même, l'identification des espèces lors de la combustion du $C_{10}H_{22}$ a été aussi réalisée. Les spectres montrent une forte émission du carbone moléculaire C_2^* (588nm). Le même travail a été utilisé pour remonter aux délais d'induction des espèces radicalaires OH^* CH^* et C_2^* . L'exploration nous donne des délais d'induction OH^* faibles vers les mélanges pauvres. Ces derniers se croisent à la stœchiométrie et ils se trouvent devancés par ceux de C_2^* vers les mélanges riches. Pendant les expériences, la combustion des mélanges caractérisés par la richesse 1,6 émet moins de lumière, ce fait est montré par les mesures photodiodes et confirmé par les mesures spectroscopiques qui montrent une intensité faible vers cette richesse.

Quelques visualisations par la technique Schlieren ont montré l'effet de la richesse et de la pression pour une énergie incidente de 100 mJ. On a vu que le fait de considérer la même échelle temporelle i.e. $t=1,5$ ms pour la visualisation, permet des comparaisons. Ainsi, les lobes de flammes primaires se caractérisent par un volume plus au moins important vers les zones de proche stœchiométrie, le contraire est observé avec les mélanges pauvres et riches. L'augmentation de la pression réduit le volume des lobes et affaiblit la vitesse de flamme apparente.

En conclusion, on peut dire que l'ensemble des données présentées dans ce chapitre peuvent constituer une base de données pour imaginer, élaborer, compléter et corriger des schémas cinétiques complets permettant la simulation des phénomènes étudiés.

Bibliographie (III)

- Bane, S. P. M., Shepherd, J. E., Kwon, E., & Day, a. C. (2011). Statistical analysis of electrostatic spark ignition of lean H₂/O₂/Ar mixtures. *International Journal of Hydrogen Energy*, 36(3), 2344–2350. <http://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2010.05.082>
- Beduneau, J. (2003). Measurements of minimum ignition energy in premixed laminar methane/air flow by using laser induced spark. *Combustion and Flame*, 132(4), 653–665. [http://doi.org/10.1016/S0010-2180\(02\)00536-9](http://doi.org/10.1016/S0010-2180(02)00536-9)
- Boretti, A. (2013). Water injection in directly injected turbocharged spark ignition engines. *Applied Thermal Engineering*, 52(1), 62–68. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2012.11.016>
- Bradley. (2004). Fundamentals of high-energy spark ignition with lasers. *Combustion and Flame*, 138(1–2), 55–77. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2004.04.002>
- Bradley, D., & Mitcheson, A. (1976). Mathematical solutions for explosions in spherical vessels. *Combustion and Flame*, 26(C), 201–217. [http://doi.org/10.1016/0010-2180\(76\)90072-9](http://doi.org/10.1016/0010-2180(76)90072-9)
- Bradley, D. et al. (1988). Fine Dust-Air Explosions. *Twenty-Second Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, 1988/pp. 1767 1775 BURNING*.
- Brady et al. (2015). Counterflow ignition of n-butanol at atmospheric and elevated pressures. *Combustion and Flame*, 162(10), 3596–3611. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.06.017>
- Burke, U., Somers, K. P., O'Toole, P., Zinner, C. M., Marquet, N., Bourque, G., ... Curran, H. J. (2015). An ignition delay and kinetic modeling study of methane, dimethyl ether, and their mixtures at high pressures. *Combustion and Flame*, 162(2), 315–330. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2014.08.014>
- Can, Ö., Öztürk, E., Solmaz, H., Aksoy, F., Çınar, C., & Yücesu, H. S. (2016). Combined effects of soybean biodiesel fuel addition and EGR application on the combustion and exhaust emissions in a diesel engine. *Applied Thermal Engineering*, 95(x), 115–124. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2015.11.056>
- Catoire, L., & Naudet, V. (2005). Estimation of temperature-dependent lower flammability limit of pure organic compounds in air at atmospheric pressure. *Process Safety Progress*, 24(2), 130–137. <http://doi.org/10.1002/prs.10072>
- Chang et al. (2013). Development of a new skeletal mechanism for n-decane oxidation under engine-relevant conditions based on a decoupling methodology. *Combustion and Flame*, 160(8), 1315–1332. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2013.02.017>
- Consalvi, J. L., & Liu, F. (2015). Numerical study of the effects of pressure on soot formation in laminar coflow n-heptane/air diffusion flames between 1 and 10 atm. *Proceedings of the Combustion Institute*, 35(2), 1727–1734. <http://doi.org/10.1016/j.proci.2014.07.045>
- Deepshikha et al. (2016). Application of adaptive Savitzky–Golay filter for EEG signal processing. *Perspectives in Science*, 4–6. <http://doi.org/10.1016/j.pisc.2016.06.056>
- Eckhoff, R. K., Ngo, M., & Olsen, W. (2010). On the minimum ignition energy (MIE) for propane/air. *Journal of Hazardous Materials*, 175(1–3), 293–7. <http://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.09.162>

- Galmiche, B. (2014). Caractérisation expérimentale des flammes laminaires et turbulentes en expansion. *Thesis*.
- Gillard et al. (2014). Effect of moisture and argon on laser ignition of ethanol and decane. *X ISHPMIE Tenth International Symposium Bergen, Norway 10-14 June 2014*, (Hazards, Prevention, and Mitigation of industrial Explosions), 11.
- Honnet, S., Seshadri, K., Niemann, U., & Peters, N. (2009). A surrogate fuel for kerosene. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32 I(1), 485–492. <http://doi.org/10.1016/j.proci.2008.06.218>
- Hui, X., Zhang, C., Xia, M., & Sung, C. J. (2014). Effects of hydrogen addition on combustion characteristics of n-decane/air mixtures. *Combustion and Flame*, 161(9), 2252–2262. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2014.03.007>
- J. Griffith et al. (2015). Effect of flow velocity and temperature on ignition characteristics in laser ignition of natural gas and air mixtures. *Optics and Lasers in Engineering*, 66, 132–137. <http://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2014.09.002>
- Kumar, K., & Sung, C.-J. (2007). Laminar flame speeds and extinction limits of preheated n-decane/O₂/N₂ and n-dodecane/O₂/N₂ mixtures. *Combustion and Flame*, 151(1–2), 209–224. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2007.05.002>
- Kurucz Database. (2016). Retrieved from <http://www.pmp.uni-hannover.de/cgi-bin/ssi/test/kurucz/sekur.html>
- Lee, Y., & Huh, K. Y. (2014). Analysis of different modes of low temperature combustion by ultra-high EGR and modulated kinetics in a heavy duty diesel engine. *Applied Thermal Engineering*, 70(1), 776–787. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2014.05.090>
- Lilley, D. G. (2003). *High temperature Air Combustion*. (Ashwani K. Gupta, Ed.) (High tempe). Björn Karlsson and James G. Quintiere.
- Ma et al. (1998). Laser spark ignition and combustion characteristics of methane-air mixtures. *Combustion and Flame*, 112(4), 492–506. [http://doi.org/10.1016/S0010-2180\(97\)00138-7](http://doi.org/10.1016/S0010-2180(97)00138-7)
- Maxim Thys, E. D. (2011). *Laser Beams: Theory, Properties & Applications*. Nova Science Publishers, Inc.
- Moorhouse, J., Williams, A., & Maddison, T. E. (1974). An investigation of the minimum ignition energies of some C1 to C7 hydrocarbons. *Combustion and Flame*, 203–213.
- NIST: Atomic Spectra Database Lines Form. (2016). Retrieved from http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html
- PEARSE & GAYDON. (1976). *The Identification Of Molecular Spectra*.
- Phuoc, T. X. (2000). Laser spark ignition: Experimental determination of laser-induced breakdown thresholds of combustion gases. *Optics Communications*, 175(4), 419–423. [http://doi.org/10.1016/S0030-4018\(00\)00488-0](http://doi.org/10.1016/S0030-4018(00)00488-0)
- Rinaldini, C. A., Breda, S., Fontanesi, S., & Savioli, T. (2015). Two-Stage Turbocharging for the Downsizing of SI V-Engines. *Energy Procedia*, 81, 715–722. <http://doi.org/http://dx.doi.org/10.1016/j.egypro.2015.12.077>
- Schafer, R. W. (2011). What is a savitzky-golay filter? *IEEE Signal Processing Magazine*, 28(4), 111–117. <http://doi.org/10.1109/MSP.2011.941097>
- Sircar, A. et al. (1996). Laser induced breakdown of Ar, N₂ and O₂ gases using 1.064, 0.532, 0.355 and 0.266 gm radiation. *Applied Physics B*, 627, 623–627. <http://doi.org/10.1007/BF01344877>

B 63, 623-627 (1996)

- Strozzi et al. (2014). Laser-Induced Spark Ignition of Gaseous and Quiescent N-Decane–Air Mixtures. *Combustion Science and Technology*, 186(10–11), 1562–1581. <http://doi.org/10.1080/00102202.2014.935601>
- Tihay, V. et al. (2012). Ignition study of acetone/air mixtures by using laser-induced spark. *Journal of Hazardous Materials*, 209–210, 372–8. <http://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2012.01.040>
- Tran X. Phuoc. (1999). Laser-Induced Spark Ignition of CH₄ / Air Mixtures, 2180(99), 203–216.
- Wähner, A. et al. (2010). Determination of the Minimum Ignition Energy on the Basis of a Statistical Approach, 1–11.
- Xie, F., Li, X., Su, Y., Hong, W., Jiang, B., & Han, L. (2016). Influence of air and EGR dilutions on improving performance of a high compression ratio spark-ignition engine fueled with methanol at light load. *Applied Thermal Engineering*, 94, 559–567. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2015.10.046>
- Zhang, Q., Xu, Z., Li, M., & Shao, S. (2016). Combustion and emissions of a Euro VI heavy-duty natural gas engine using EGR and TWC. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 28, 660–671. <http://doi.org/10.1016/j.jngse.2015.12.015>
- Zheng, Z., Yue, L., Liu, H., Zhu, Y., Zhong, X., & Yao, M. (2015). Effect of two-stage injection on combustion and emissions under high EGR rate on a diesel engine by fueling blends of diesel/gasoline, diesel/n-butanol, diesel/gasoline/n-butanol and pure diesel. *Energy Conversion and Management*, 90(X), 1–11. <http://doi.org/10.1016/j.enconman.2014.11.011>

11 Table des figures (III)

<i>Figure III. 1: Dispositif expérimental LIQUIM.</i>	153
<i>Figure III. 2 : Complément Schlieren du dispositif LIQUIM pour la visualisation des claquages et des fronts de flammes</i>	153
<i>Figure III. 3: Dimensions et photo du réacteur, disposition des optiques.</i>	154
<i>Figure III. 4 : Photo du Laser Nd-YAG et Configuration de la répartition spatiale de l'énergie laser (mesure faite par Quantel)</i>	155
<i>Figure III. 5: Oscilloscopes de mesure (A) Agilent (DSOX3034A Oscilloscope 350 Mhz) série 3000 (B) Oscilloscope à deux canaux pour pc-connexion USB PCSU1000</i>	156
<i>Figure III. 6 : Spectroscopie HR2000+ES</i>	157
<i>Figure III. 7: Capteur de mesure de l'énergie laser et sa carte d'acquisition couplée vers le Pc via un USB</i>	157
<i>Figure III. 8 : Dispositif de mesure des énergies incidentes et déposées dans le volume focal et disposition de la photodiode et la fibre optique du spectroscopie.</i>	158
<i>Figure III. 9 : Gaz neutre et état plasma dans le volume focal</i>	161
<i>Figure III. 10 : Effet de la pression et de la richesse sur la moyenne d'absorption de l'énergie. Cas d'un mélange pauvre et proche stœchiométrie (f=100 mm)</i>	162
<i>Figure III. 11: Influence de la richesse et de la pression sur le seuil de claquage.</i>	162
<i>Figure III. 12: Influence de la pression sur la transmission de l'énergie laser à travers le volume focal.</i>	163
<i>Figure III. 13: Rapport de la moyenne de l'énergie transmise à l'énergie incidente.</i>	164

Figure III. 14: Effets de la pression sur le coefficient d'atténuation K_v	165
Figure III. 15: Représentation graphique du terme (1) et (2) l'intersection définit une estimation de la température électronique du plasma.	166
Figure III. 16: Effets de la composition du mélange sur le taux d'absorption	167
Figure III. 17: Probabilité de claquage en fonction de l'énergie incidente pour différents mélanges.	171
Figure III. 18: Probabilité de claquage en fonction de l'énergie absorbée pour les différents mélanges considérés.	172
Figure III. 19: Effet de la richesse et de la focale sur les probabilité d'allumages	173
Figure III. 20 : Probabilité d'allumage en fonction de l'énergie absorbée (effet de la focale et de la richesse)	174
Figure III. 21 : Probabilité d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie incidente ($f=100$ mm)	175
Figure III. 22 : Effet de la pression sur l'E50 % d'allumage et l'E50% C de claquage	176
Figure III. 23 : Probabilités d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie absorbée.	176
Figure III. 24 : Effet de la pression sur l'EA50 % d'allumage et l'EA50% C de claquage.....	177
Figure III. 25 : Effet de la pression sur les probabilités d'allumage et de claquage dans le cas des mélanges proche stœchiométrie	178
Figure III. 26 : Effet de la pression sur E50% et E50%C dans le cas des mélanges proches de la stœchiométrie.....	178
Figure III. 27: Probabilités d'allumage (à gauche) et de claquage (à droite) en fonction de l'énergie absorbée.	179
Figure III. 28 : Effet de la pression sur E50% et E50%C dans le cas des mélanges proches de la stœchiométrie.....	179
Figure III. 29 : Influence de la richesse et de la pureté des mélanges sur la MIE	181
Figure III. 30 : Influence de la richesse et de la focale sur la MIE	182
Figure III. 31 : Effet de la pression sur les seuils d'énergie de claquage et d'allumage $f=100$ mm ...	183
Figure III. 32 : Récapitulatif de l'effet de la pression tiré de la figure précédente.	184
Figure III. 33 : Approche utilisée pour l'analyse des signaux de pression (mélanges de n-décane (99%) / $N_2 + O_2$ en utilisant une focale de 100 mm) (Filtrage par algorithme Savitzky Golay).	185
Figure III. 34: Pressions maximales de combustion en fonction des énergies absorbées pour les richesses étudiées et moyennes des pressions en fonction de la richesse sur la figure de droite.	186
Figure III. 35 : Effets de l'énergie absorbée sur les délais d'allumage (figure de gauche) et effets de la richesse sur la moyenne de délai d'allumage calculée (figure de droite).	186
Figure III. 36 : Gradients de pression maximaux et effet de la richesse.....	187
Figure III. 37 : Délais correspondants aux gradients maximaux des pressions enregistrés et effet de la richesse sur la moyenne des délais correspondants.	188
Figure III. 38 : Cartographie des allumages et leur pression maximale correspondante en fonction de l'énergie absorbée correspondante dans le cas proche stœchiométrie et le cas de mélange pauvre. .	188
Figure III. 39 : Effets de la pression sur les délais d'allumage dans le cas des mélanges pauvres et proches stœchiométrie.	189
Figure III. 40 : Effets de la pression sur le $(dP/dt)_{max}$ et la valeur de du temps correspondant dans le cas du mélange proche stœchiométrie.	190
Figure III. 41 : Effets de la pression sur le $(dP/dt)_{max}$ et la valeur de du temps correspondant dans le cas du mélange pauvre	190
Figure III. 42 : Moyennes des pressions maximales et les gradients maximaux de pression pour les mélanges pauvre et proche stœchiométrie.	191
Figure III. 43 : Vitesse de flamme laminaire à partir du signal de pression	192
Figure III. 44 : Evolution du rayon du front de flamme $P=1$ bar, $T_0=347$ K et $E_{inc}=60$ mJ	192
Figure III. 45 : Vitesse de flamme laminaire en fonction de l'énergie déposée.	193
Figure III. 46 (A), (B) et (C) Effet de la pression sur les valeurs des vitesses de flamme laminaires (D) Moyennes associées aux mélanges en fonction de la richesse.	194

Figure III. 47 : Moyenne des signaux de photodiodes pour des allumages laser avec des énergies incidentes de 10 à 80 mJ	195
Figure III. 48 : Moyenne des signaux de photodiodes montrant les fronts de flamme juste après les claquages.....	196
Figure III. 49 : Délais d'allumage en fonction de l'énergie absorbée et de la valeur de la richesse ($f=150$ mm).....	197
Figure III. 50 : Moyenne des délais d'allumages en fonction de la richesse sans tenir compte de l'énergie absorbée.	198
Figure III. 51 : Moyenne d'émission des flammes par mesure photodiode en fonction de la richesse.	199
Figure III. 52 : Spectroscopie d'émission résolue en temps du plasma et de la flamme ($t=2$ ms pour une acquisition $E_{inc}=80$ mJ et $\phi=1.1$)	200
Figure III. 53 : Moyenne des délais d'inductions chimiques de quelques radicaux en fonction de la richesse.	201
Figure III. 54 : Emission spectroscopique du plasma et détection des espèces ionisé et excité ($E_{inc}=80$ mJ et $\phi=1.1$)	202
Figure III. 55 : Intensité de la lampe tungstène en fonction de la longueur d'onde	203
Figure III. 56 : Application d'un Boltzmann sur les raie de l'azote NI dans le proche infrarouge.	203
Figure III. 57 : Droite de Boltzmann avec la raie d'émission NI.	204
Figure III. 58 : Evolution en temps de la spectroscopie de la flamme pour un cas à une pression 1 bar et $\phi=1.3$	204
Figure III. 59 : Effet de la richesse sur la spectroscopie de la flamme en fonction du temps.....	206
Figure III. 60 : Calibrage de la fenêtre optique.....	207
Figure III. 61 : Effet de la richesse : image par visualisation Schlieren à $t=1.5$ ms et $t=347$ K : réalisée par caméra rapide Phantom Miro 310.....	208
Figure III. 62 : Méthode d'extraction de la vitesse apparente sur le lobe supérieur ($P=1$ bar et $\phi=1,1$)	208
Figure III. 63 : Vitesses de flamme apparente (dr/dt) prises perpendiculairement sur la propagation du lobe supérieur.....	209
Figure III. 64 : Effet de la pression sur la formation des premiers lobes de flammes à $t=1.5$ ms : visualisations Schlieren par caméra rapide Phantom Miro 310.....	210
Figure III. 65 : Vitesse de flamme apparente (dRf/dt) prise sur la propagation du lobe supérieur. ..	210

12 Table des tableaux (III)

Tableau III. 1 : Plan des expériences et nombre de tirs en fonction du phénomène étudié	159
Tableau III. 2 : Exemple d'une feuille de données expérimentales (Méthodologie de travail).....	160
Tableau III. 3: K , ξ et β Paramètres d'optimisations expérimentales	163
Tableau III. 4 : Pression partielle des composants de mélange avant claquage calculée à l'équilibre en 0 D par Chemkin pro.	169
Tableau III. 5: Paramètres seuils des claquages dans les mélanges considérés.	169
Tableau III. 6: Paramètres statistiques des claquages en fonction de l'énergie incidente.	172
Tableau III. 7 : Paramètres statistiques des claquages en fonction de l'énergie absorbée	173
Tableau III. 8 : Caractéristiques géométriques et physiques du point focal.	174
Tableau III. 9 : Valeurs expérimentales de (A) et (B)	187
Tableau III. 10 : Valeur expérimentales de (A) et (B).....	198
Tableau III. 11 : Caractéristiques des rais d'azote type NI : ("Kurucz Database," 2016).....	203

CHAPITRE : IV

EFFETS DES ADDITIFS H₂O ET Ar SUR L'ALLUMAGE DU C₁₀H₂₂, C₂H₆O ET ALLUMAGE LASER DE QUELQUES FAMILLES DE COMBUSTIBLES

TABLE DES MATIERES (IV)

<i>Avant-propos</i>	221
1 <i>Introduction</i>	221
2 <i>Plan des expériences</i>	222
3 <i>Résultats des Expériences</i>	223
3.1 <i>Spectroscopie de l'argon et de la vapeur d'eau</i>	223
3.2 <i>Signaux de photodiode à l'échelle du nanomètre</i>	225
3.3 <i>Signaux de photodiode aux temps de claquage laser</i>	227
3.4 <i>Signaux photodiode des allumages laser</i>	228
3.5 <i>Délais d'allumage : effet de l'argon</i>	228
3.6 <i>Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau H₂O</i>	229
3.6.1 <i>Statistiques paramétrées en énergie incidente</i>	229
3.6.2 <i>Statistiques paramétrées en énergie absorbée (C₁₀H₂₂+N₂+O₂)</i>	231
3.6.3 <i>Effet des impuretés de C₁₀H₂₂ et de la qualité du comburant</i>	232
3.7 <i>Effets de la vapeur d'eau (H₂O+C₁₀H₂₂+N₂+O₂)</i>	234
3.7.1 <i>Statistiques paramétrées en énergie incidente</i>	234
3.7.2 <i>Statistiques paramétrées en énergie absorbée</i>	235
3.8 <i>Effet de l'argon et effet combiné avec H₂O sur un alcool (C₂H₆O)</i>	235
3.8.1 <i>Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente</i>	236
3.8.2 <i>Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée</i>	238

3.9	<i>Effets de la vapeur d'eau seule ($H_2O+C_2H_6O+N_2+O_2$)</i>	239
3.9.1	<i>Statistiques paramétrées en énergie incidente</i>	239
3.9.2	<i>Statistiques paramétrées en énergie absorbée</i>	239
3.10	<i>Allumage laser de quelques combustibles (effet de la liaison)</i>	240
3.10.1	<i>Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente</i>	241
3.10.2	<i>Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée</i>	243
4	<i>Conclusion</i>	244
	<i>Bibliographie (IV)</i>	246
	<i>Table des figures (IV)</i>	247
	<i>Table des tableaux (IV)</i>	247

Avant-propos

L'allumage par claquage laser de quelques mélanges combustibles a été étudié pour mettre en évidence l'influence de l'argon et de l'humidité. Cette approche est faite en utilisant une approche stochastique sur les tirs laser. La température est fixée à 347 K et la pression est de 1 bar. Les probabilités d'allumages obtenues dépendent de la concentration de l'argon et de la vapeur d'eau présente dans le mélange combustible. La même approche statistique a été utilisée dans le chapitre précédent (Cf : chapitre III) et sera appliquée pour voir les effets de l'argon et de la vapeur d'eau sur les allumages réalisés par claquage laser.

De la même manière, la pureté du combustible $C_{10}H_{22}$ (94% et 99%) sera investiguée pour montrer l'effet des impuretés sur l'allumage. La plateforme expérimentale sera la même durant tous les essais expérimentaux et la focale utilisée dans ce cas d'étude est celle de 150 mm. Ce chapitre a pour but de montrer les effets catalytiques et/ou inhibiteurs de ces additifs (Ar, H_2O) lors de l'allumage laser. L'étude est faite pour une richesse de 1,1 en utilisant 20 tirs par énergie incidente ($\phi = 1,1$ présente les meilleures caractéristiques de combustion : Cf. chapitre III).

1 Introduction

L'argon et l'humidité sont connus pour être des facteurs qui influent sur l'efficacité thermique et les émissions de certains gaz. Plusieurs études ont montré l'influence des additifs et des diluants sur les rejets de gaz à effet de serre. Par exemple, une comparaison effectuée par Zhuoyao He (He, 2015) sur les effets de CO_2 , N_2 et Ar a montré que le CO_2 est le plus efficace pour réduire les émissions de NO_x et de CO, suivi par N_2 . Cependant, CO_2 et N_2 comme agents de dilution affaiblissent l'efficacité thermique tandis que l'Ar comme diluant l'améliore. De nombreux effets de l'Ar sont également discutés par Weifeng (Weifeng Li et al, 2015) dans le cas des moteurs opérant au gaz naturel. D'autres travaux expérimentaux par (Zhang et al., 2015) sur les effets des diluants, à savoir l'argon et l'azote, sur des mélanges diméthyle éther (DME)-air ont montré que les paramètres de combustion des mélanges pauvres et riches présentent différents comportements. L'effet de l'humidité a été étudié par (Zacharias Nikolaou et al, 2013) qui ont rapporté un certain effet de H_2O en utilisant un mécanisme cinétique réduit à 5 étapes. Il est bien connu que les turbines à gaz sont une source de polluants. Les émissions sont causées par les différents régimes de vol et la qualité du carburant et de l'air comburant lors de la combustion. Le fonctionnement à faible température intensifie la formation des THC (hydrocarbures imbrulé) et du mono oxyde de carbone CO. Inversement, les hautes

températures augmentent la formation des NOx (Lilley, 2003). Des composants tels que le SO₂, SO₃ et SOx peuvent également être créés. Leur formation est provoquée par les impuretés du carburant (Jones, 1978). Les régimes de fonctionnement peuvent être liés à la phase de décollage ou d'atterrissage des avions. Ils peuvent également être liés à la variation de densité d'air due à des variations d'altitude, accompagnés des phases d'extinction ou de rallumage des moteurs.

Il existe différentes solutions pour contrer ces problèmes, comme le redimensionnement des chambres de combustion dans le but de réduire les (NOx) et d'augmenter le temps de séjour des polluants concernés (CO, THC) (Jones, 1978). Une autre solution est l'injection d'eau déminéralisée afin de diminuer la température des flammes (Boretti, 2013) ou l'incorporation d'argon comme additif dans le processus de combustion (Karthikeya Sharma, 2014).

Cette problématique nous a incité à utiliser notre approche expérimentale stochastique, qui impliquera l'étude de l'effet de l'humidité et de l'argon sur les propriétés d'allumages par claquage laser dans des stratégies différentes pour la propulsion aérienne. Le combustible principalement utilisé dans cette étude est le n-décane car ce dernier représente un composant majoritaire dans la composition du kérosène utilisé pour la propulsion (mélanges C₁₀H₂₂ / N₂ + O₂+additif). L'éthanol est considéré dans la deuxième stratégie pour la propulsion terrestre (C₂H₆O / N₂ + O₂+additif). Il est donc apparu possible et essentiel dans la présente étude d'examiner l'effet des deux additifs argon et humidité.

2 Plan des expériences

Le plan d'expériences est montré dans le *Tableau IV. 1*. L'énergie incidente est variée de 10 mJ à 60 mJ. Ce plan implique un total de 2160 tirs laser. L'ensemble de l'étude est faite pour une seule richesse de 1.1 qui représente le cas idéal de combustion.

Deux configurations d'études sont rajoutées. Ces dernières sont réalisées avec le pentane (C₅H₁₂) et le decene (C₁₀H₂₀) pour montrer l'influence de la chaîne de carbone et l'influence de la liaison chimique propre portée par la molécule du combustible étudié (C-C), (C-H), (C=C), (-OH).

Tableau IV. 1 : plan des expériences pour étudier l'effet de l'argon et de la vapeur d'eau sur l'allumage laser du $C_{10}H_{22}$ (n-décane à 94%) et du C_2H_6O (éthanol à 99%)

H ₂ O \ Ar	0 %	1%	2%
0 mbar	240 tirs	240 tirs	240 tirs
15 mbar	240 tirs	240 tirs	240 tirs
30 mbar	240 tirs	240 tirs	240 tirs

Remarque :

L'ajout des additifs argon et vapeur d'eau se fait en conservant une pression totale constante ainsi que la quantité de combustible injecté. Il en résulte une légère augmentation de la richesse de l'ordre de 0,05.

Une configuration avec 0.5 % et 1.5 % d'argon complète le *Tableau IV. 1* en s'intéressant à des mesures réalisées par photodiode pour montrer la configuration du signal d'émission à l'échelle de la nanoseconde et à l'échelle de la milliseconde propre aux délais d'allumage.

Pour ces cas d'études, les configurations ne comportent aucun risque de condensation sachant que la température du réacteur est initialement fixée à 347 K avec une pression de 1 bar. La procédure d'injection et de nettoyage du réacteur est la même que celle présentée dans le chapitre précédent :

- on nettoie le réacteur en faisant le vide,
- on remplit avec de l'air synthétique,
- on refait le vide une deuxième fois,
- on réinjecte de l'air synthétique,
- on fait un dernier vide,
- enfin, on injecte le combustible à l'aide d'une micro seringue et on remplit le réacteur avec la quantité d'air +additif nécessaire pour obtenir le mélange considéré dans le *Tableau IV. 1*.

3 Résultats des Expériences

3.1 Spectroscopie de l'argon et de la vapeur d'eau

Le choix de l'argon (Ar) et de la vapeur d'eau (H₂O) peut être expliqué par les effets de pompage de photon et d'ions qui peuvent se voir par les raies concernées de ces éléments dans

le mélange à composition inerte ou réactif. Les raies de l'argon dans le proche infrarouge peuvent servir comme source d'émission de photons ou comme un puits absorbant, les autres raies de la composition chimique ou atomique comprises dans le mélange lors d'un claquage. L'argon métastable formé lors des collisions électroniques participe réellement dans la cinétique chimique d'amorçage, les auteurs de ces travaux (I.N. Kosarev et al, 2009)(I.N. Kosarev et al, 2008) en parlent bien sur sa contribution. Les travaux de (Nicholas Tsolas et al, 2016) concernant la cinétique de l'hydrogène soulignent bien cette influence par les équations suivantes :

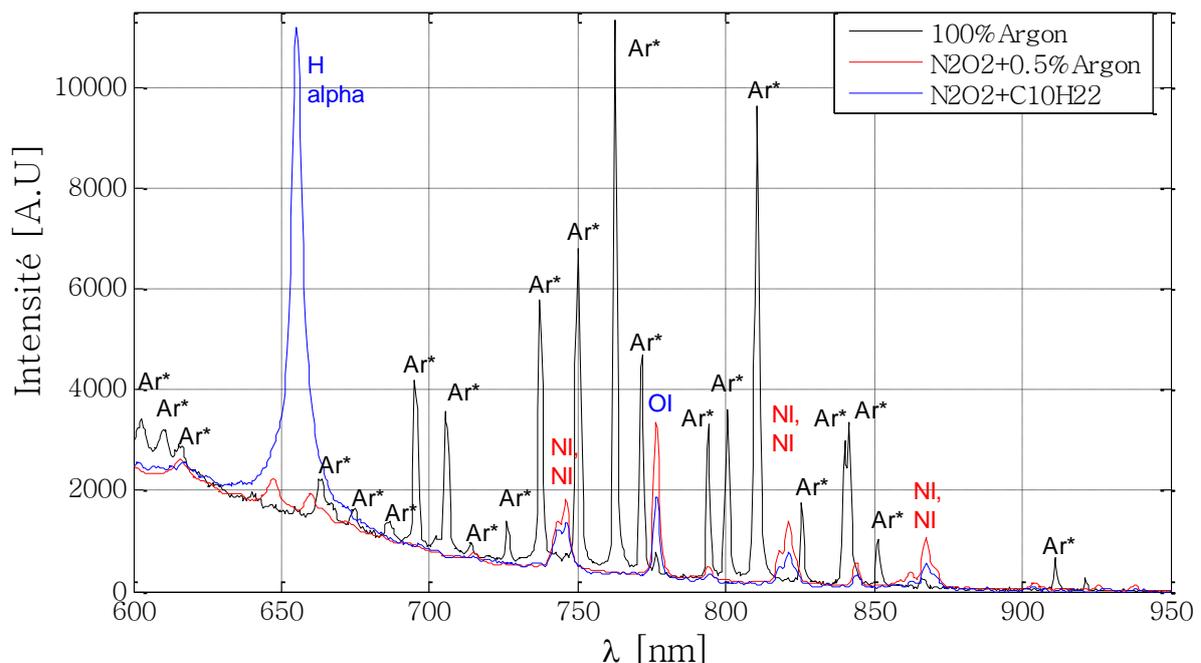
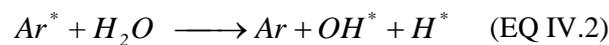
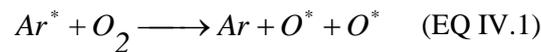


Figure IV. 1 : Spectres de claquage dans des mélanges différents $E_{inc}=60$ mJ.

La vapeur d'eau est quant à elle une source qui génère des ions hydrogène et plusieurs états excités émetteurs de photons qui peuvent faciliter l'activation du mélange, surtout à haute température.

Ajoutons à cela que les molécules H_2O sont une source d'agents d'oxydation qui viennent de la décomposition de la vapeur d'eau dans le volume focal, qui est lui à une température de 10000 K. Ces agents offrent une réactivité supérieure. Il est bon à savoir que la molécule H_2O commence à se décomposer à partir d'une température de 850 K. Le spectre de claquage de la

vapeur d'eau à 100 mbar est représenté sur la *Figure IV. 2*. Ce spectre montre bien les raies d'hydrogène H_{α} , H_{β} , et H_{γ} qui pompent une quantité de photons considérable.

Les raies d'oxygène type OI, OII et OIII (agents oxydants) se caractérisent par une émission plus au moins faible mais qui restent détectables sur le spectre.

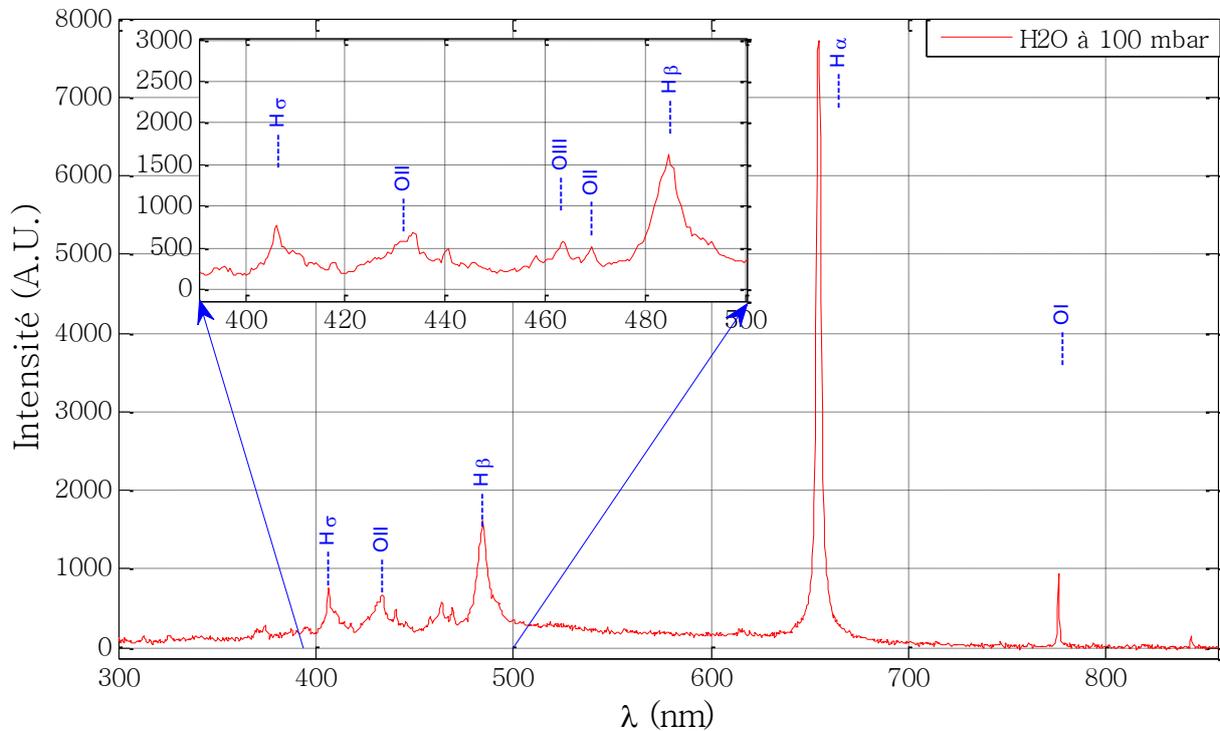


Figure IV. 2 : Claquage de la vapeur d'eau à 100 mbar $E_{inc}=60mJ$.

D'un point de vue expérimental, le fait de rajouter ces états excités et ionisés (i.e. les additifs) aux états ionisés et excités d'un mélange combustible réactif offre une meilleure configuration, à condition de trouver le bon équilibre et la bonne portion d'additif à rajouter au mélange réactif pour augmenter sa réactivité. Si ces conditions ne sont pas remplies, cela provoquera la recombinaison rapide des radicaux primaires créés et inhibera la combustion.

3.2 Signaux de photodiode à l'échelle du nanomètre

Dans cette série d'expériences, on a considéré 3 configurations expérimentales avec des pourcentages d'argon rajoutés de 0%, 0,5% et 1,5% au n-décane type 94 % de pureté. Une 4^{ème} configuration avec un n-décane pur à 99% est expérimentée en plus pour permettre une comparaison entre les différents mélanges étudiés. La *Figure IV. 4* montre des résultats expérimentaux d'une moyenne calculée sur l'ensemble signaux lumineux émis par le plasma pour certaines plages d'énergies déposées. Dans la totalité des cas, l'intensité du signal augmente avec le taux d'énergie déposée. Les signaux sont enregistrés avec des laps de temps

inférieurs à 1 μ s. Par l'intermédiaire de ces résultats, on peut déduire 3 régimes pour la création de plasma en fonction de l'énergie déposée dans le mélange.

Régime à basse absorption : Ce régime est caractérisé par des ondulations qui peuvent durer plus de 1 μ s. Ce régime caractérise la zone d'énergie comportant l'énergie minimale d'allumage (MIE). L'énergie dans ce cas est inférieure à 5 mJ.

Régime à moyenne absorption : Dans ce cas de figure, les ondulations sont atténuées vers des temps compris entre 450 ns et 1 μ s. Après ce temps-là, le plasma s'épaissit, prend du volume et fait augmenter son émission grâce aux électrons thermiques créés. L'énergie déposée est comprise entre 5 et 20 mJ.

Régime à haute absorption : A haute absorption, c'est-à-dire au-delà de 20 mJ d'énergie déposée, le plasma s'épaissit en prenant du volume tout en augmentant son émission lumineuse. L'interaction avec le milieu gaz donne directement un plasma établi sans observation d'ondulations.

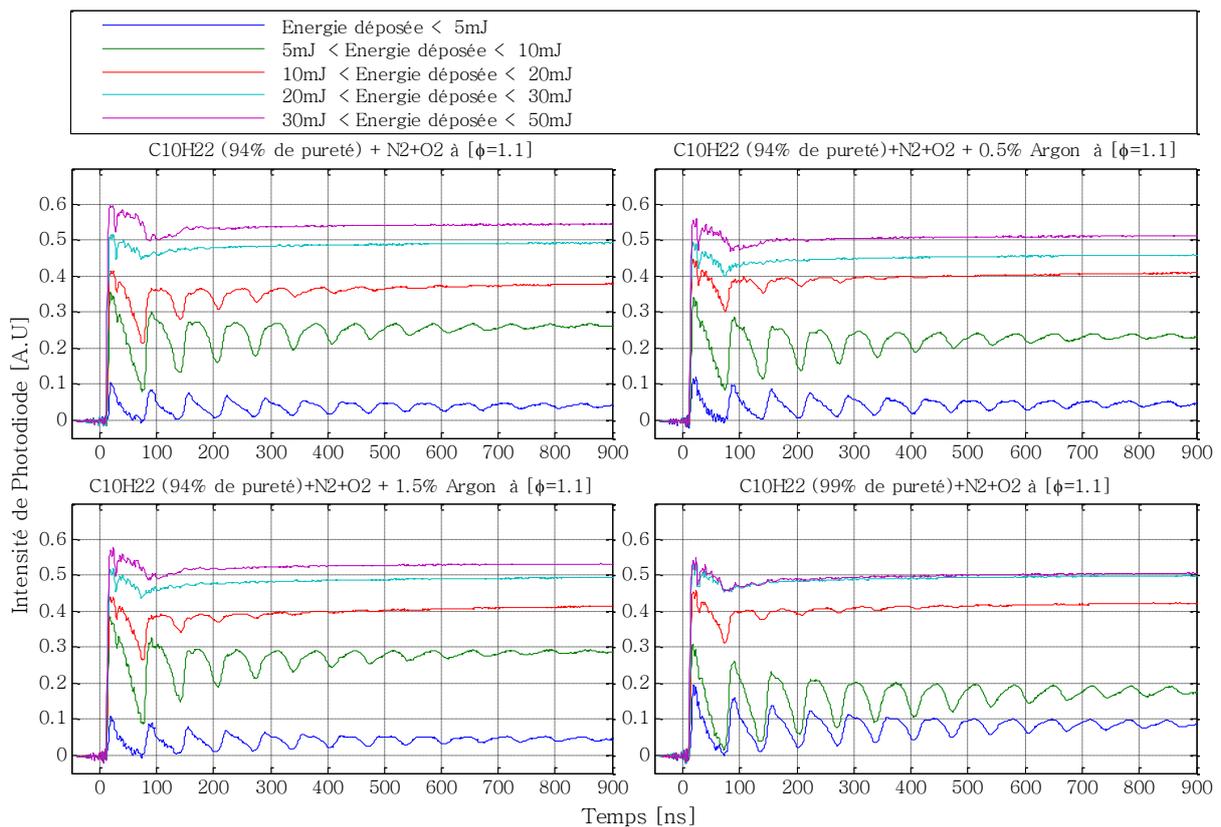


Figure IV. 3 : Mesures de photodiode montrant la moyenne d'émission du plasma en fonction de la plage de l'énergie déposée.

En comparant les trois cas, on peut dire que l'argon a tendance à augmenter l'absorption du mélange gazeux vers les énergies déposées intermédiaires ($5 \text{ mJ} < E_{\text{abs}} < 20 \text{ mJ}$). Il a tendance aussi à atténuer les ondulations, c'est-à-dire que l'inertie thermique de l'argon stabilise le

plasma vis-à-vis des interactions avec le gaz froid. Ceci se voit clairement sur les courbes des cas de mélanges avec 1.5% d'argon et un décane à 94%.

Les signaux collectés montrent une série de cycles d'émission et d'extinction d'intensité, surtout vers les basses énergies déposées, i.e. le dépôt d'énergie crée un phénomène d'expansion et d'implosion du volume plasma. Ces ondulations présentent dans les signaux à faible absorption viennent des effets hydrodynamiques de l'interaction du plasma avec le gaz froid qui est autour. Le phénomène hydrodynamique dont on parle ici est régi par les équations de Rayleigh-Plesset dans le cas des problèmes de dynamique simple (Qotba, 2006), à voir aussi (Akhatov, 2001) dans le cas des liquides. Mais dans le cas des claquages laser dans des gaz, on ne trouve aucun modèle qui permet de décrire la dynamique du volume plasma en interaction avec l'interface du gaz froid qui l'entoure.

3.3 Signaux de photodiode aux temps de claquage laser

L'influence de la composition du mélange avec l'argon comme additif et l'effet de l'énergie déposée est montrée sur la *Figure IV. 4* en utilisant une échelle de temps courte, de l'ordre de la durée de l'impulsion laser.

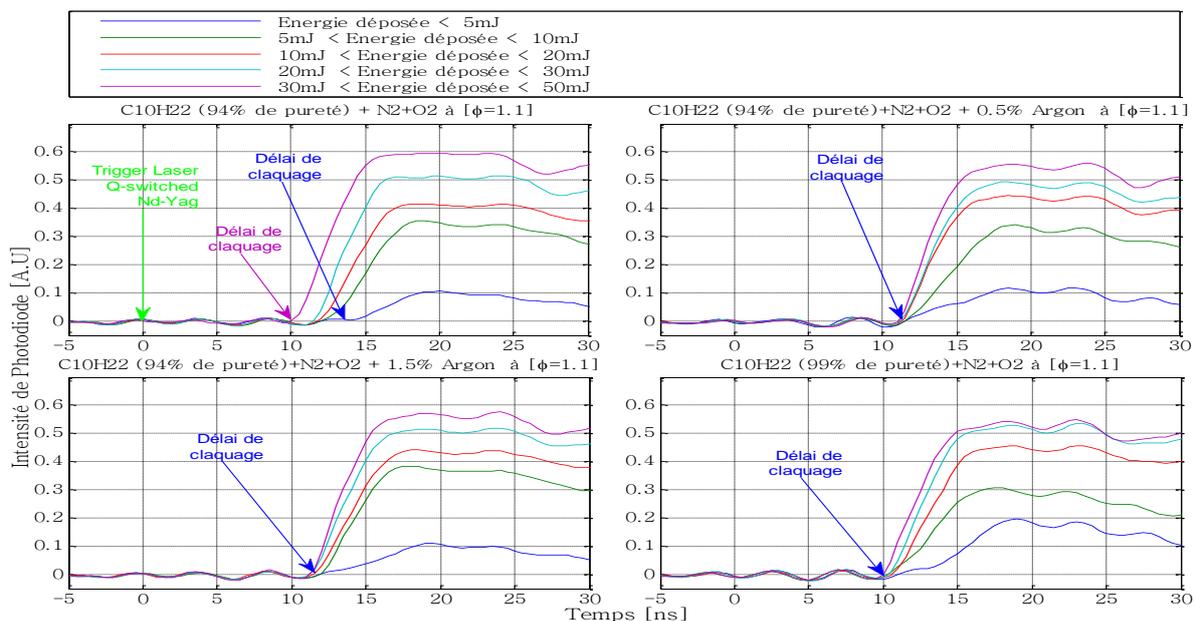


Figure IV. 4 : Moyenne des signaux de photodiode aux temps de claquage

Le mélange impur sans argon présente des délais de claquage partant de 10 à 14 ns et au fur et à mesure que l'énergie augmente, ces délais diminuent. Dans les deux configurations avec de l'argon à 0,5 et 1,5%, celles-ci présentent des délais de claquage similaire en partant pratiquement du même point (à 0,5% $t_c=11$ ns) et (à 1,5% $t_c=11,5$ ns). La configuration du mélange pur à 99% se claque avec un temps réduit qui avoisine 10 ns.

Ce résultat nous laisse dire que les impuretés et les additifs comme l'argon retardent le claquage laser. L'interprétation des résultats concernant l'argon ne peut se justifier pour l'instant que par son inertie thermique et sa densité de masse élevée.

3.4 Signaux photodiode des allumages laser

Ces cas de mesures permettent de voir l'ensemble des phénomènes à l'échelle de la milliseconde, i.e. l'observation des fronts de flammes primaires développées juste après le claquage et l'onde de choc. Ce résultat utilise les mêmes signaux que précédemment, enregistrés sur un autre oscilloscope, ainsi que des configurations similaires aux précédentes sur une gamme de temps plus large. Ces résultats sont triés en fonction de l'énergie déposée (Voir Figure IV. 5).

3.5 Délais d'allumage : effet de l'argon

A partir de ces spectres de photodiode, on peut voir que l'intensité du plasma et les lobes de flammes primaires (kernel) augmentent au fur et à mesure que l'énergie déposée augmente. Cet ensemble de spectres montre aussi les délais d'allumage associés aux quatre configurations considérées et l'influence de l'argon.

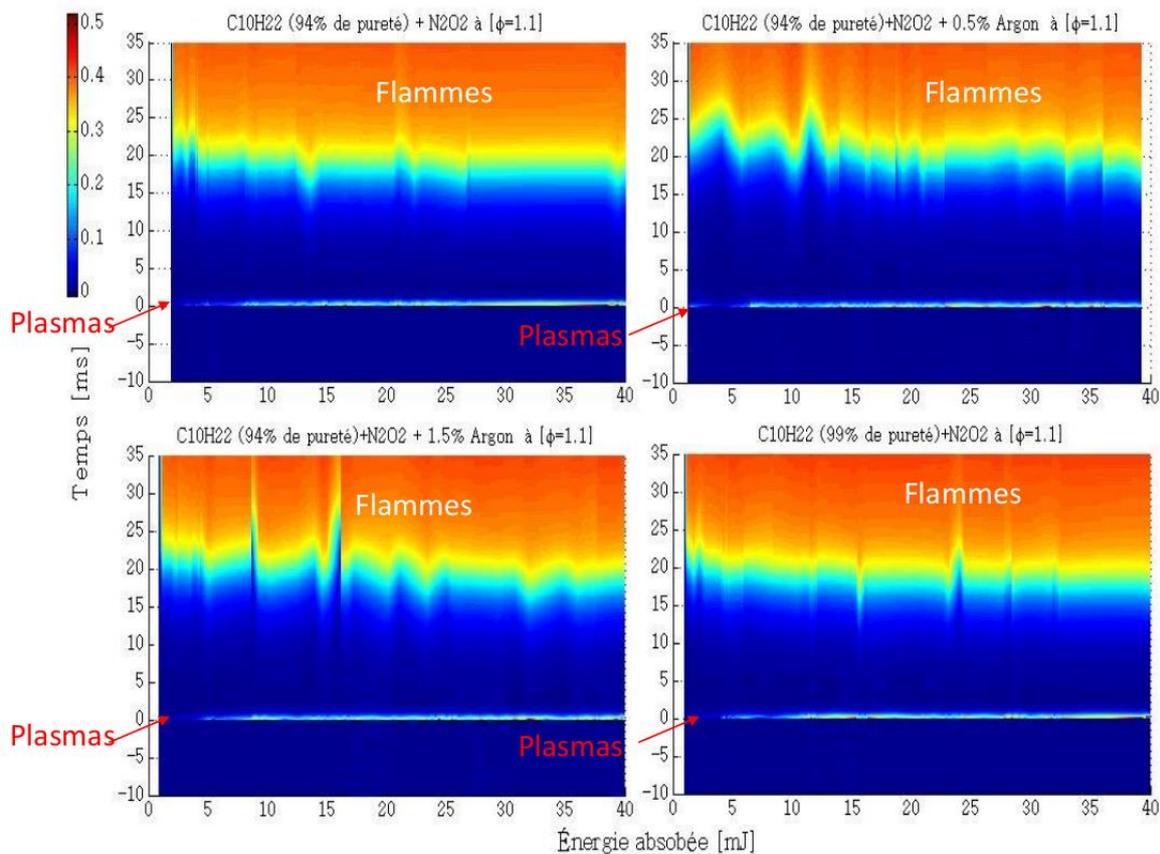


Figure IV. 5 : Effet de l'argon et des impuretés sur les allumages en fonction de l'énergie absorbée

On voit bien que l'argon perturbe les délais d'allumage, surtout vers les basses énergies déposées. Précédemment, on a vu que l'argon retarde les délais de claquage (délai de formation de la première bulle plasma), ce qui peut aussi être constaté sur la *Figure IV. 4*. Ce retard se répercute sur le délai d'allumage, ce qui peut être constaté sur la *Figure IV. 5*. Ce résultat montre l'effet mémoire des gaz hautement chauds le long du chemin d'amorçage, le paramètre principal influant est l'énergie déposée (i.e. un temps de claquage court dans un mélange réactif conditionne également un délai d'allumage court du combustible et vice versa).

3.6 Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau H₂O

Dans cette section, on considère des mélanges proches de la stœchiométrie avec le n-décane pur à 94%. Les résultats bruts et approximatifs des fréquences d'allumage avec les énergies incidentes et absorbées sont présentés ci-dessous.

3.6.1 Statistiques paramétrées en énergie incidente

La *Figure IV. 6* présente les fréquences d'allumage des configurations montrant l'effet de l'argon et l'effet de l'argon combiné à de la vapeur d'eau formant les mélanges réactifs.

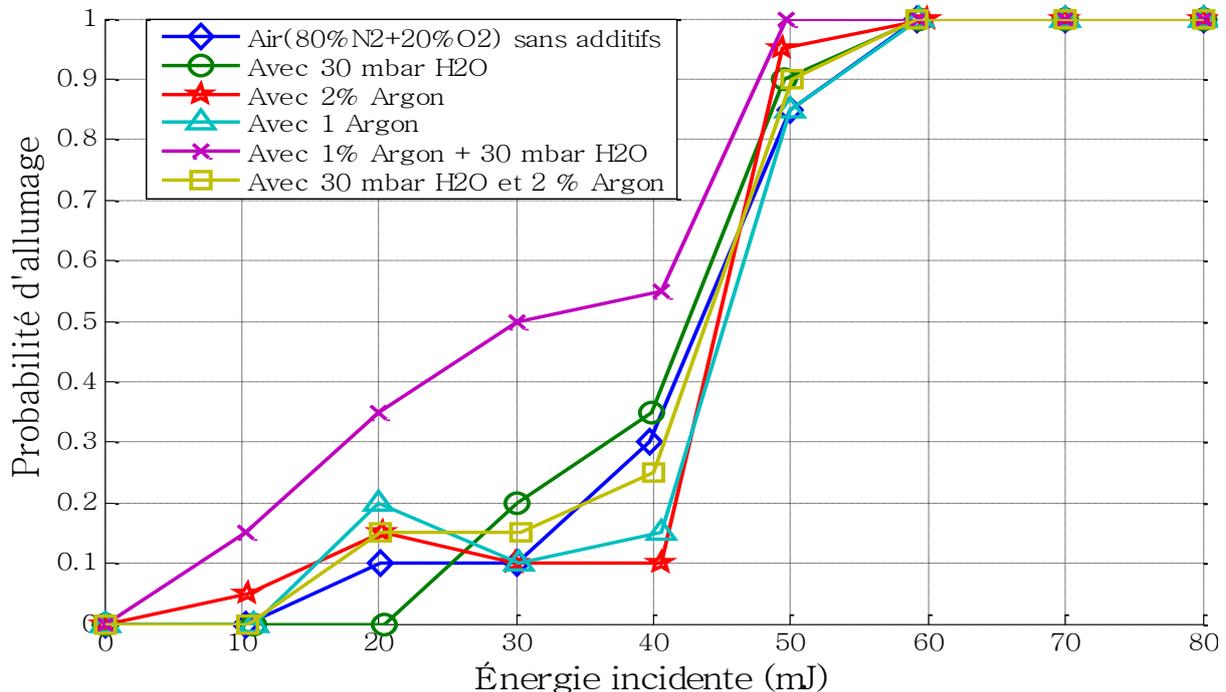


Figure IV. 6 : fréquences d'allumage brutes des configurations expérimentales testées ($f=150$ mm et $\phi=1.1$).¹

¹ Le cas des mélanges expérimentés à la richesse $\phi=1.1$ ne comporte pas les claquages seuls (étincelle sans allumage) car ces configurations présentent un équilibre carburant-comburant très sensible. C'est pour cela que des études paramétriques vis-à-vis des claquages ne seront pas présentées dans ce chapitre. Pour ce faire, il faudrait considérer le cas des richesses pauvres ou très riches, ce qui n'est pas le cas dans ce travail.

Par comparaison par rapport à des expériences menées avec les mélanges sans aucun additif, ces expériences ont montré que la combinaison d'additifs ($\text{Ar} + \text{H}_2\text{O}$) a un effet significatif sur la probabilité d'allumage. Avec 1% d'argon, ce qui est proche de la composition de l'air ambiant et sec, cet additif joue un rôle de catalyseur de combustion à des énergies incidentes faibles et agit comme un inhibiteur de combustion à 30 et 40 mJ d'énergies incidentes. Les résultats montrent le comportement de l'argon vis-à-vis des énergies d'excitation qu'il reçoit, il apparaît bien que dans certains cas l'argon peut être utilisé comme une source de pompage de photons et un puits de réception d'énergie qui peut stabiliser le plasma à haute énergie. La zone d'allumage basse varie de 30 à 40 mJ pour l'argon. Dans cette zone, l'argon joue le rôle d'un puits. Pour l'humidité (30 mbar H_2O), les fréquences d'allumage augmentent en fonction de l'énergie incidente avec un effet de catalyseur modéré par rapport au cas de référence.

A haute température, la molécule poly-atomique de H_2O peut souvent être utilisée comme source d'agent d'oxydation qui augmente la concentration en oxygène (O_2). La configuration combinée (30 mbar H_2O et 1 % Ar) rend le mélange très sensible et facile à amorcer, sans doute en raison de l'effet combiné de Ar et H_2O , qui implique l'un, pompage de photons et l'autre, une augmentation de la concentration en O_2 et H_2 , facilitant ainsi l'allumage. Les résultats présentés sur la *Figure IV. 6* ont été approchés par une fonction de distribution logarithmique afin d'obtenir la loi de probabilité d'allumage de chaque configuration de mélange (loi de Galton EQ III.11 chapitre III). L'ensemble des résultats sont présentés sur *Figure IV. 6*.

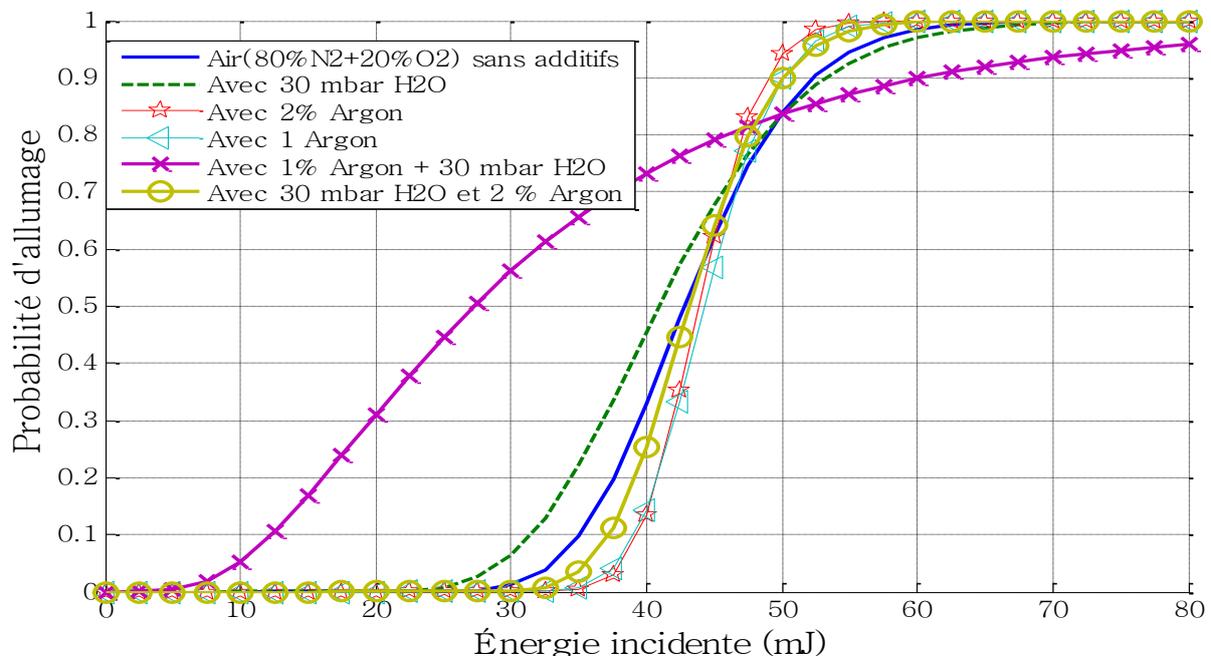


Figure IV. 7 : Approximations stochastiques par le même modèle d'équation montrant l'effet de l'argon et l'effet combiné en énergie incidente.

La Figure IV. 2 montre les paramètres statistiques des configurations étudiées au sujet de l'effet des additifs. On peut voir que la configuration avec 30 mbar H₂O et 1 % Ar est très intéressante : la médiane est de 27,11 mJ, représentant l'énergie E50%, comme la plus faible énergie incidente en la comparant avec les autres compositions.

Tableau IV. 2 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximations en énergie incidente

Paramètres $C_{10}H_{22}+Composition$	Paramètres		Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Mediane (E50%) [mJ]
	C_1	C_2			
N_2+O_2	3,75	0,15	43,00	6,49	42,52
$N_2+O_2+30mbar H_2O$	3,71	0,20	41,68	8,42	40,85
$N_2+O_2+2\% Ar$	3,78	0,08	43,96	3,52	43,82
$N_2+O_2+1\% Ar$	3,79	0,09	44,44	4,01	44,26
$N_2+O_2+30mbar H_2O+1\% Ar$	3,30	0,62	33,73	23,55	27,66
$N_2+O_2+30mbar H_2O+2\% Ar$	3,76	0,11	43,21	4,77	42,95

Il faut se rappeler que les effets des deux éléments (Ar, H₂O) ont un rôle très important dans la physique des phénomènes d'inflammation, à savoir la physique du plasma (création d'un point chaud plasma) et la cinétique chimique (développement des fronts de flammes) du mélange air / n-décane.

3.6.2 Statistiques paramétrées en énergie absorbée ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2$)

La même procédure est réalisée avec l'énergie absorbée, les résultats des lois de probabilités sont présentés dans la Figure IV. 8.

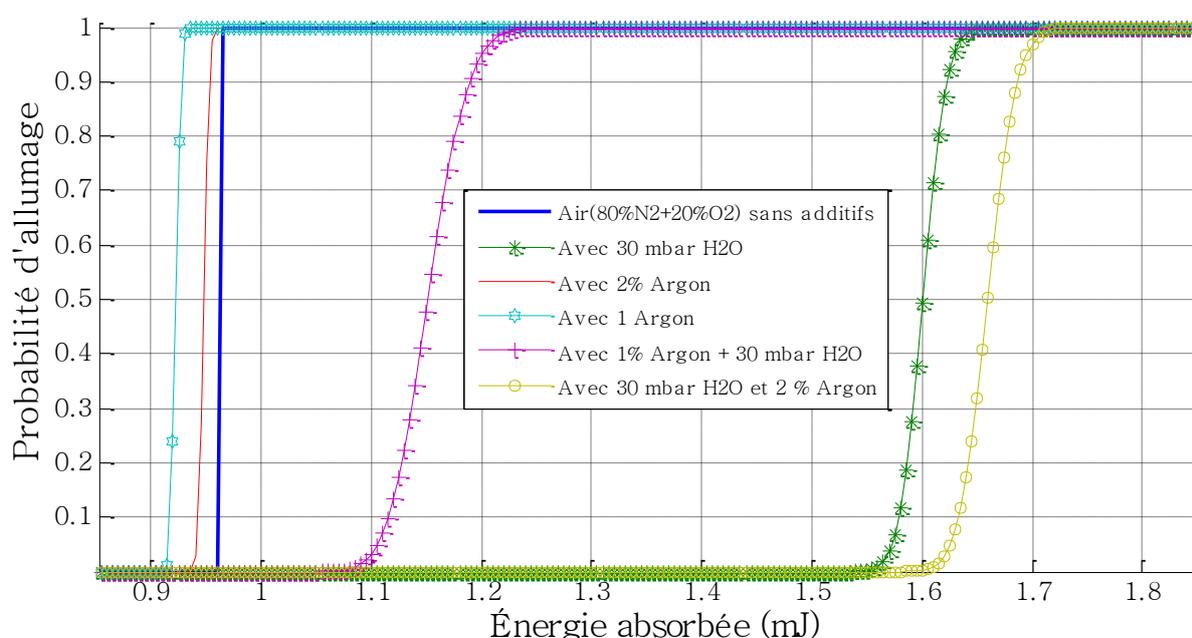


Figure IV. 8 : Approximation stochastique en énergie absorbée montrant l'effet de l'argon et l'effet combiné avec la vapeur d'eau.

Cette figure et le *Tableau IV. 3* comportant les paramètres statistiques par rapport à l'énergie absorbée montrent une grande sensibilité de la configuration avec 1 % d'argon. Celle-ci se caractérise par une énergie EA50% (correspondant à une probabilité de 50%) de 0,92 mJ. La configuration avec 30 mbar et 2% d'Argon se dote d'un paramètre EA50% élevée de l'ordre de 1.65 mJ et la configuration avec 30 mbar se rapproche de cette dernière.

Tableau IV. 3 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximation en énergie absorbée

$C_{10}H_{22}+Composition$	C_1	C_2	Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]
N_2+O_2	$-4,04 \cdot 10^{-2}$	$3,16 \cdot 10^{-5}$	0,96	0,00003	0,9604
$N_2+O_2+30mbar H_2O$	$4,70 \cdot 10^{-1}$	$1,08 \cdot 10^{-2}$	1,60	0,0172	1,6003
$N_2+O_2+2\% Ar$	$-5,41 \cdot 10^{-2}$	$4,06 \cdot 10^{-3}$	0,95	0,0038	0,9473
$N_2+O_2+1\% Ar$	$-8,08 \cdot 10^{-2}$	$3,56 \cdot 10^{-3}$	0,92	0,0033	0,9223
$N_2+O_2+30mbar H_2O+1\% Ar$	$1,41 \cdot 10^{-1}$	$2,49 \cdot 10^{-2}$	1,15	0,0287	1,1516
$N_2+O_2+30mbar H_2O+2\% Ar$	$5,07 \cdot 10^{-1}$	$1,28 \cdot 10^{-2}$	1,66	0,0212	1,6599

Ce résultat montre l'obligation de chercher la composition optimale qui combine ces deux agents additifs pour permettre une réactivité optimale du mélange.

3.6.3 Effet des impuretés de $C_{10}H_{22}$ et de la qualité du comburant

Dans cette section, la qualité des deux carburants choisis a été testée, à savoir, le n-décane à 94 et 99 % de pureté.

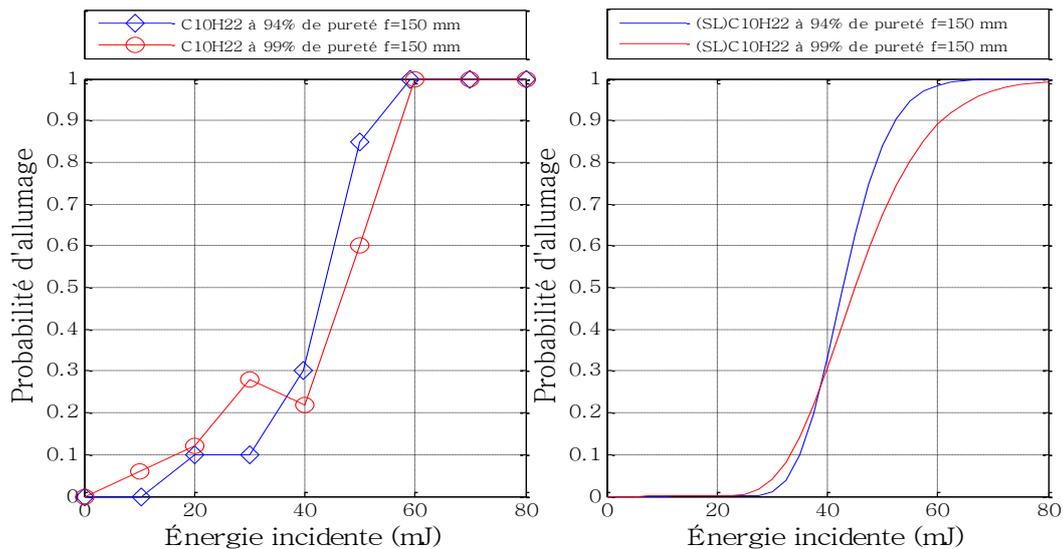


Figure IV. 9 : Effet des impuretés comprises dans le combustible (comparaison entre $C_{10}H_{22}$ pur à 94 % et 99 %)

La *Figure IV. 9* montre l'effet des impuretés comprises dans le combustible $C_{10}H_{22}$ pur à 94% en le comparant avec les résultats du n-décane à 99% de pureté.

L'analyse par chromatographie couplée à la spectrométrie de masse d'un échantillon de n-décane pur à 94 % a été réalisée pour étudier la nature des impuretés du carburant. Les résultats sont donnés dans *Tableau IV. 4*.

Tableau IV. 4 : Nature des impuretés comprises dans le n-décane 94 %.

Temps (min)	Composant	Molécule	Pourcentage
5	Nonane	C_9H_{20}	0,5 %
5,5	Nonene	$CH_3(CH_2)_6CH=CH_2$	0,6 %
6,5	Decane	$C_{10}H_{22}$	94 %
8,1	Undecane	$C_{11}H_{24}$	1,0 %
8,6	Undecene	$CH_3(CH_2)_8CH=CH_2$	Unknown %
9,6	Dodecane	$C_{12}H_{26}$	1,6 %

De même, nos résultats obtenus avec des mélanges n-décane pur à 99% ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2$) ont été comparés aux résultats de (Strozzi et al, 2014) réalisés avec le même réacteur. Ces derniers ont opéré avec le même n-décane pur à 94 % mélangé avec de l'air ambiant. Les résultats de comparaison sont reportés dans la *Figure IV. 10* pour les richesses $\phi=0,9$ et $\phi=2,0$.

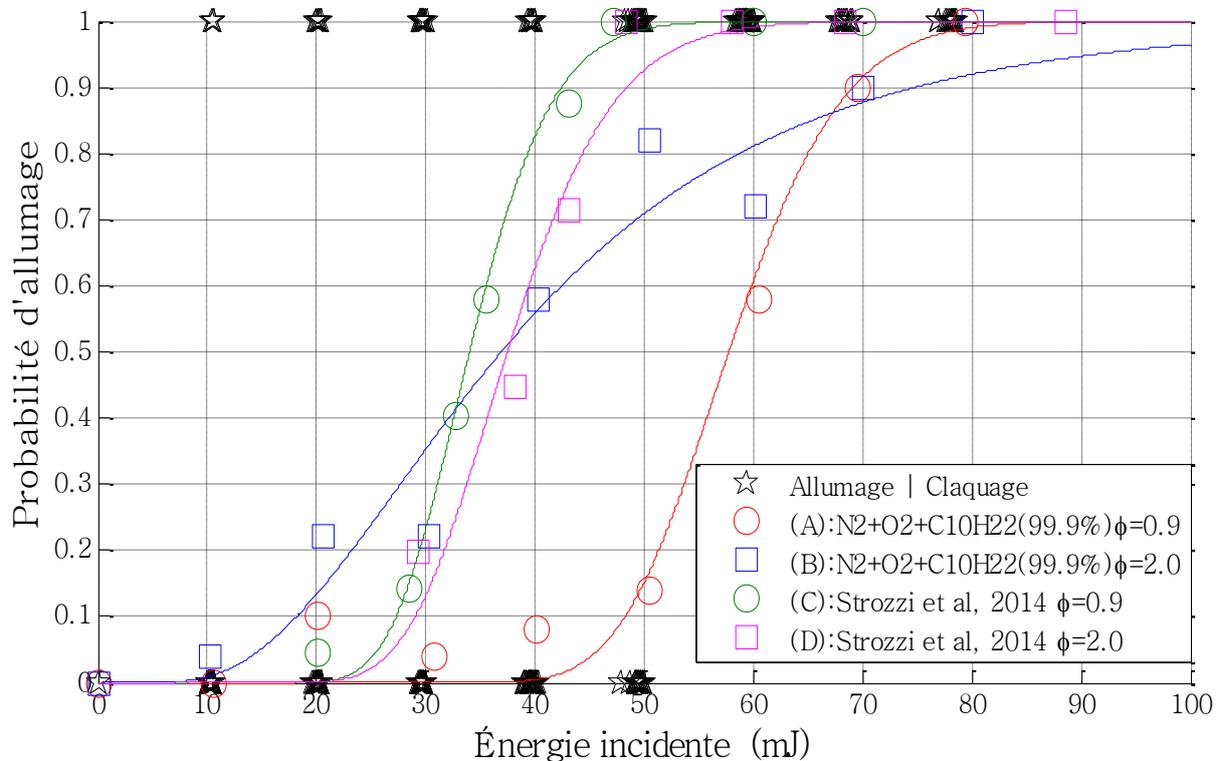


Figure IV. 10 : Effet combiné des impuretés et de la qualité du carburant utilisé : comparaison entre nos résultats ($C_{10}H_{22}$ qualité à 99%+(80%N₂+20%O₂)) et les résultats de Strozzi et al. 2014 ($C_{10}H_{22}$ qualité à 94%+(Air ambiant)).

Ces résultats montrent que les impuretés de l'air ambiant et du combustible rendent les mélanges sensibles à l'allumage laser, chose intéressante qui peut réjouir les industriels à considérer ce système et à le standardiser dans les moteurs à allumage commandé et les propulseurs en général.

Tableau IV. 5 : Paramètres statistiques de l'effet des impuretés et de l'air utilisé.

Composition	Paramètres	ϕ	Espérance		Ecart type	Médiane	
			C_1	C_2	[mJ]	[mJ]	
(A): $N_2O_2+C_{10}H_{22}$ (99%)		0,9	4,05	0,14	58,3	8,23	57,8
(B): $N_2O_2+C_{10}H_{22}$ (99%)		2,0	3,60	0,55	43,0	25,64	37,0
(C): Strozzi et al 2014		0,9	3,52	0,17	34,5	6,00	34,0
(D): Strozzi et al 2014		2,0	3,62	0,20	38,3	7,72	37,5

3.7 Effets de la vapeur d'eau ($H_2O+C_{10}H_{22}+N_2+O_2$)

Dans ce cas et pour ne pas surcharger les figures précédentes qui présentent l'effet de l'argon et l'effet combiné avec de la vapeur d'eau, on présente l'effet de la vapeur d'eau seule pour les deux configurations avec 15 mbar et 30 mbar d'humidité.

3.7.1 Statistiques paramétrées en énergie incidente

La vapeur d'eau seule incorporée dans un mélange réactif $C_{10}H_{22}+N_2+O_2$ ne présente pas d'effet sensible sur les probabilités d'allumage. Un léger effet catalyseur vers les basses énergies incidentes est observé.

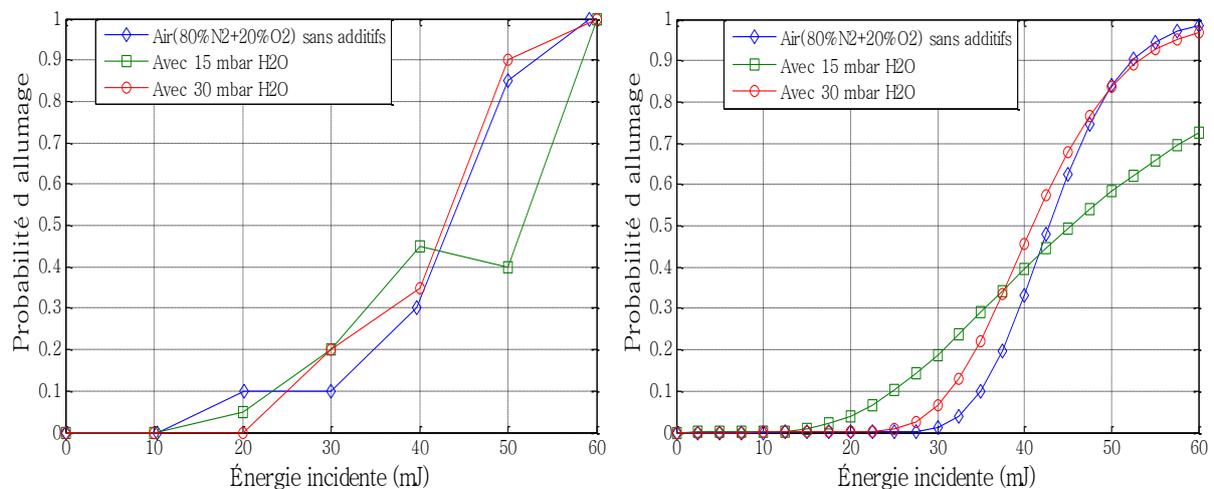


Figure IV. 11: Effet de la vapeur d'eau seule et lois d'approximation des probabilités d'allumages.

3.7.2 Statistiques paramétrées en énergie absorbée

Le résultat présenté ici avec la *Figure IV. 12* montre que les configurations avec 15 et 30 mbar d'H₂O diminuent la sensibilité du mélange si on compare au cas de référence en prenant l'énergie déposée comme paramètre des lois stochastiques.

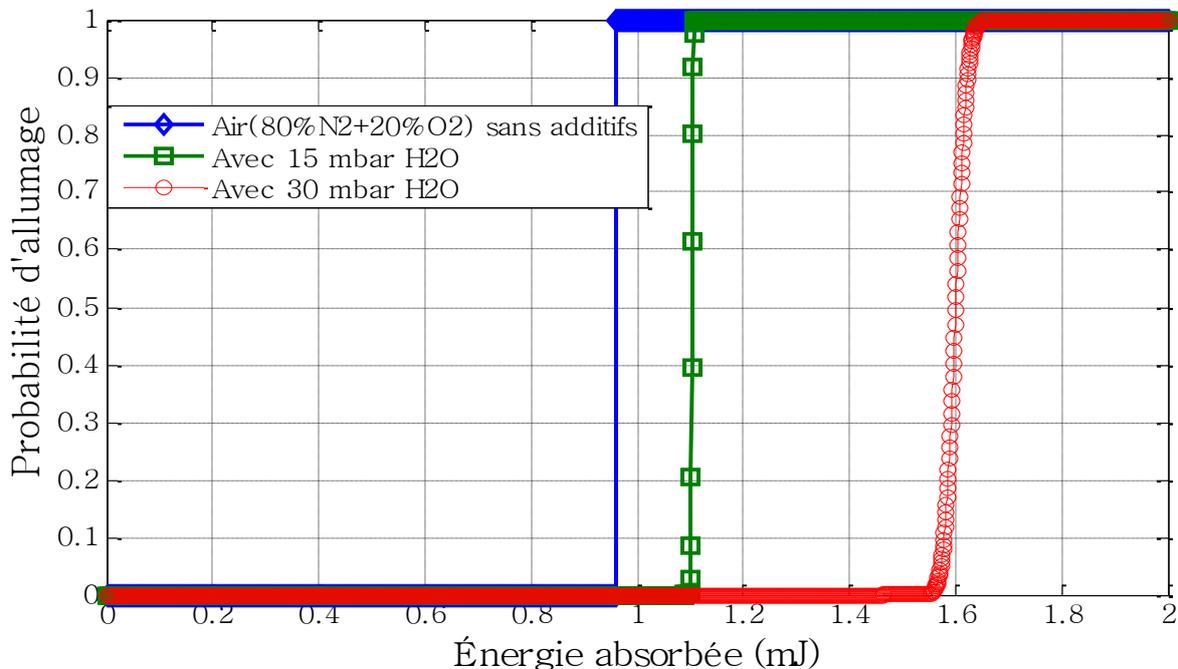


Figure IV. 12 : Effets de la vapeur d'eau sur les probabilités d'allumages paramétrées sur l'énergie absorbée

L'incorporation de la vapeur d'eau dans une chaîne saturée comme le n-décane demande plus d'énergie déposée pour produire l'allumage. Ceci peut se voir dans le *Tableau IV. 6* où la valeur de l'énergie EA50% augmente avec la pression de la vapeur d'eau incorporée dans le mélange réactif.

Tableau IV. 6 : Paramètres statistiques associés à l'effet de la vapeur d'eau.

$C_{10}H_{22+}$ Composition	Paramètres		Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]
	C_1	C_2			
N_2+O_2	$-4,04 \cdot 10^{-2}$	$3,16 \cdot 10^{-5}$	0,96	0,00003	0,9604
$N_2+O_2+15mbar H_2O$	$9,84 \cdot 10^{-2}$	$1,63 \cdot 10^{-3}$	1,10	0,0018	1,1035
$N_2+O_2+30mbar H_2O$	$4,70 \cdot 10^{-1}$	$1,08 \cdot 10^{-2}$	1,60	0,0172	1,6003

3.8 Effet de l'argon et effet combiné avec H₂O sur un alcool (C₂H₆O)

Dans le but d'élargir notre approche et pour montrer davantage l'effet de ces deux additifs (Ar et H₂O), on a considéré ici un alcool (éthanol) qui est du C₂H₆O à 99% de pureté. Rappelons que l'éthanol est en effet le biocarburant le plus largement utilisé pour la propulsion terrestre

avec les moteurs à allumage commandé souvent mélangé à de l'essence. Cela permettra de voir son comportement en le comparant au comportement d'une chaîne saturée (n-décane).

3.8.1 Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente

L'ensemble des résultats concernant l'effet de l'argon et l'effet combiné avec de la vapeur d'eau sont présentés sur la *Figure IV. 13*. On remarque que la probabilité d'allumage du mélange avec de l'air synthétique $N_2 + O_2$ présente une tendance régulière et monotone, comme dans le cas du n-décane sans additif. Ceci n'est pas le cas lorsque l'argon est rajouté seul ou mélangé avec de l'eau.

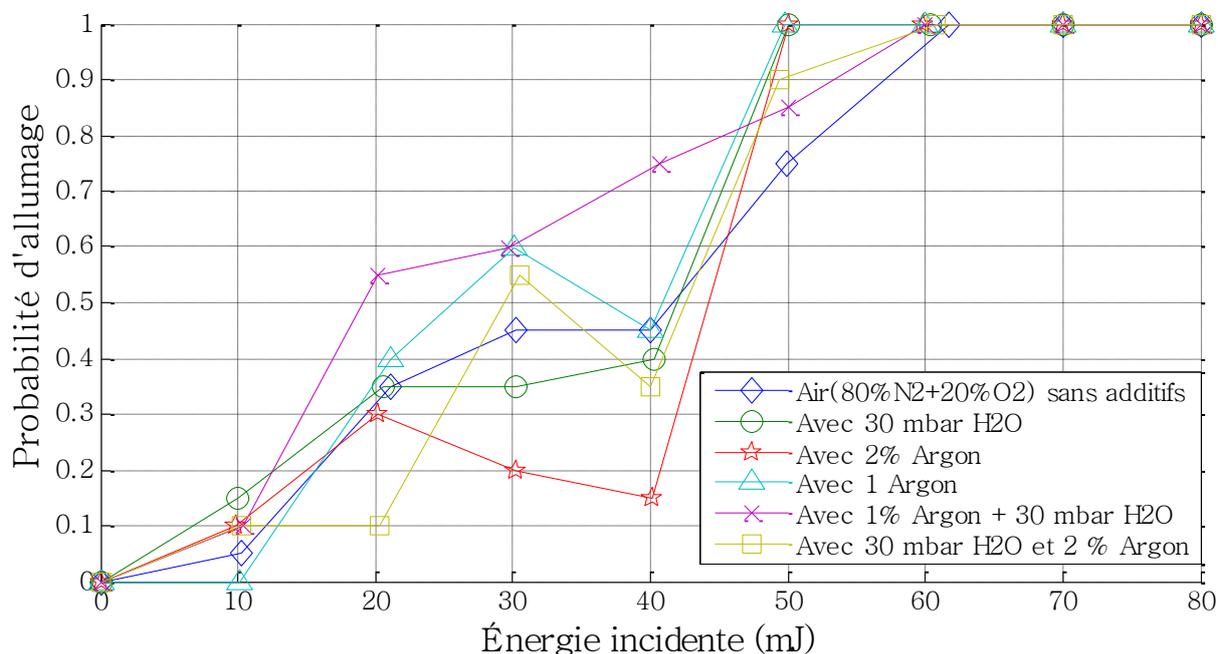


Figure IV. 13 : Fréquences d'allumage brutes de la combustion (éthanol C_2H_6O) avec incorporation des mêmes additifs Argon et H_2O .

L'effet de l'argon est fortement dépendant de sa concentration. Ajouté à 1%, il catalyse l'allumage sauf pour l'énergie incidente de 40 mJ. La configuration avec 2% d'argon inhibe l'allumage vers les énergies 30 et 40 mJ. Cette observation a été également constatée dans le cas du n-décane. Le comportement des mélanges combinés avec 1% d'Ar et 30 mbar d' H_2O présente les meilleures configurations d'allumage. Des remarques similaires peuvent être faites avec le n-décane. Ce constat présente certainement un effet chimique collaboratif combiné entre les deux additifs $Ar+H_2O$.

Les lois stochastiques de ces configurations sont représentées sur la *Figure IV. 14*. L'effet inhibiteur à 2% d'argon est bien visible et se caractérise par le paramètre $E_{50\%}$ le plus élevé, avoisinant l'énergie incidente de 43,32 mJ pour avoir 50% d'allumages réussis.

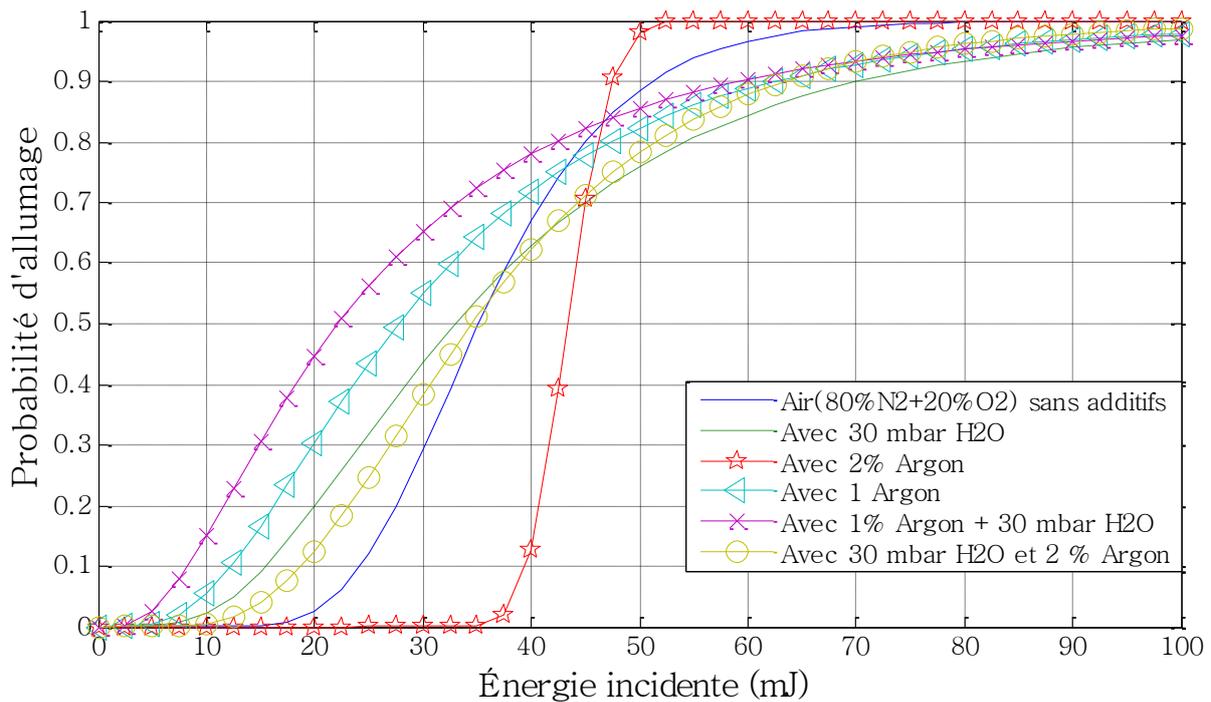


Figure IV. 14 : Approximation statistique des effets des additifs paramétrés en énergie incidente.

Les paramètres statistiques liés aux configurations portées par la précédente figure sont affichés dans le *Tableau IV. 7* . La configuration sans additif se trouve placée au milieu de la configuration précédente et la configuration avec 1 % argon avec un E50% de 27.72 mJ.

Les configurations avec additifs, à part le cas à 2 % d'argon, se caractérisent par des valeurs d'écart type élevées en les comparant à la configuration de référence avec N_2+O_2 seule.

Cela peut s'expliquer par une composition hétérogène de la distribution du combustible, de la vapeur d'eau et de l'argon dans l'espace du volume focal. Celle-ci est probablement différente d'un cas d'allumage à l'autre et ce constat a déjà été fait avec le n-décane/ N_2+O_2 avec des variations énormes de l'écart type lié à la moyenne d'absorption en fonction de l'énergie incidente (vu au chapitre 3 (cf : *Figure III. 16*)).

Tableau IV. 7 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximations en énergie absorbée

$C_2H_6O_+$ Composition	Paramètres		Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane (E50%) [mJ]
	C_1	C_2			
N_2+O_2	3,56	0,29	36,69	10,91	35,16
$N_2+O_2+30mbar H_2O$	3,50	0,59	39,26	25,35	32,98
$N_2+O_2+2\% Ar$	3,77	0,07	43,43	3,034	43,32
$N_2+O_2+1\% Ar$	3,32	0,63	33,91	23,88	27,72
$N_2+O_2+30mbar H_2O+1\% Ar$	3,10	0,77	29,74	26,60	22,16
$N_2+O_2+30mbar H_2O+2\% Ar$	3,54	0,47	38,64	19,36	34,53

3.8.2 Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée

La *Figure IV. 15* présente les lois de distribution des probabilités d'allumage correspondantes aux différents mélanges avec et sans additif en fonction de l'énergie déposée.

Cette figure montre la grande sensibilité du cas du mélange avec 30 mbar d'H₂O. Ce mélange présente une faible énergie déposée pour 100 % de cas d'allumage, puis vient le cas avec le mélange de référence N₂+O₂ suivi par le cas 30 mbar d'H₂O+2% d'argon. Le mélange présentant l'énergie la plus élevée est celui à 2% d'argon.

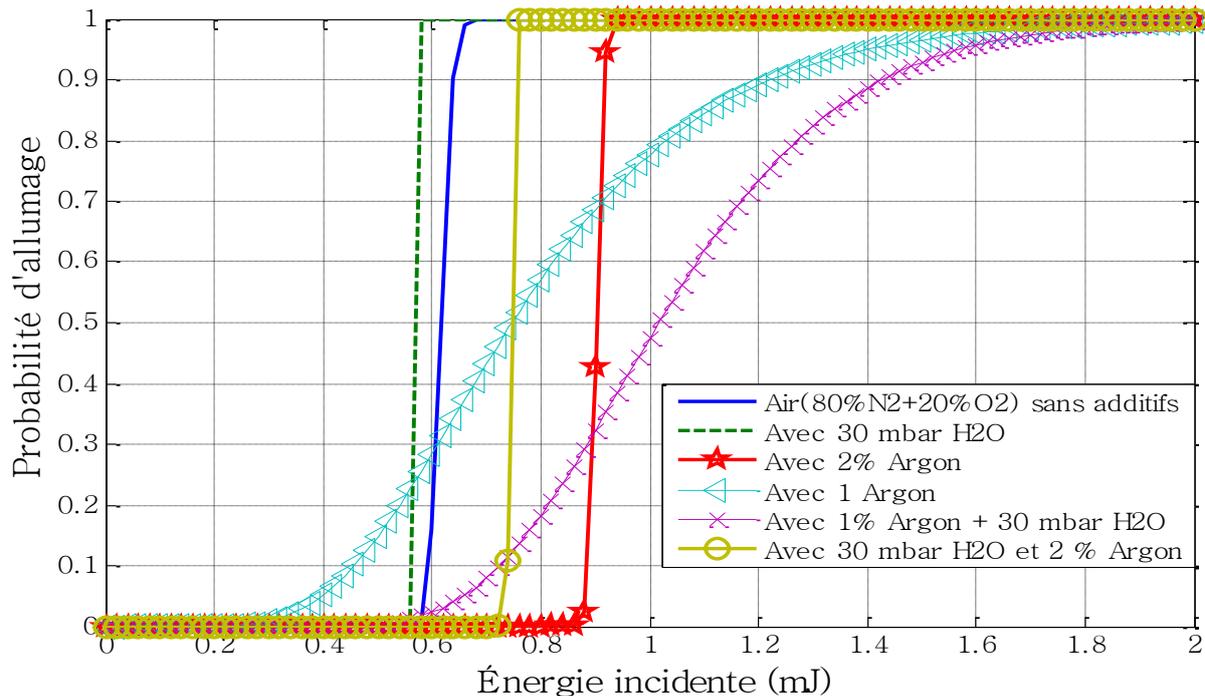


Figure IV. 15 : Effets des additifs paramétrés en énergie absorbée de l'allumage du C₂H₆O.

Les deux cas avec 1% d'argon (proche de la configuration de l'air ambiant) et le cas avec 1 % d'argon +30 mbar d'H₂O présentent des écarts type élevés, ce qui peut être constaté sur la *Figure IV. 15* et sur le *Tableau IV. 8* des paramètres statistiques correspondant.

On peut constater aussi que pour une énergie absorbée supérieure à 2 mJ, les probabilités d'allumages sont estimées à 100 % de réussite dans tous les mélanges testés.

Tableau IV. 8 : Paramètres statistiques des configurations paramétrées avec l'énergie absorbée

C ₂ H ₆ O+ Composition	Paramètres		Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]
	C ₁	C ₂			
N ₂ +O ₂	-4,8 10 ⁻¹	2,8 10 ⁻²	0,617	0,017	0,62
N ₂ +O ₂ +30 mbar H ₂ O	-5,5 10 ⁻¹	2,6 10 ⁻³	0,575	0,001	0,58
N ₂ +O ₂ +2% Ar	-1,0 10 ⁻¹	1,2 10 ⁻²	0,902	0,011	0,90
N ₂ +O ₂ +1% Ar	-2,9 10 ⁻¹	3,8 10 ⁻¹	0,804	0,320	0,75
N ₂ +O ₂ +30 mbar H ₂ O+1% Ar	1,7 10 ⁻²	2,6 10 ⁻¹	1,053	0,283	1,02
N ₂ +O ₂ +30 mbar H ₂ O+2% Ar	-2,9 10 ⁻¹	6,0 10 ⁻³	0,746	0,004	0,75

3.9 Effets de la vapeur d'eau seule ($H_2O+C_2H_6O+N_2+O_2$)

Pour permettre une compréhension de l'effet de la vapeur d'eau, on la considère seule et on la compare au cas de référence sans additif. L'ensemble des résultats correspondant aux probabilités d'allumages en fonction de l'énergie incidente et absorbée est présenté ci-dessus.

3.9.1 Statistiques paramétrées en énergie incidente

Lorsque la vapeur d'eau est rajoutée à l'éthanol, on constate un effet catalyseur modéré sur les probabilités d'allumages vers les faibles énergies incidentes de 10 à 40 mJ. A partir de 40 mJ on remarque un inversement d'effet en comparant avec l'état de référence.

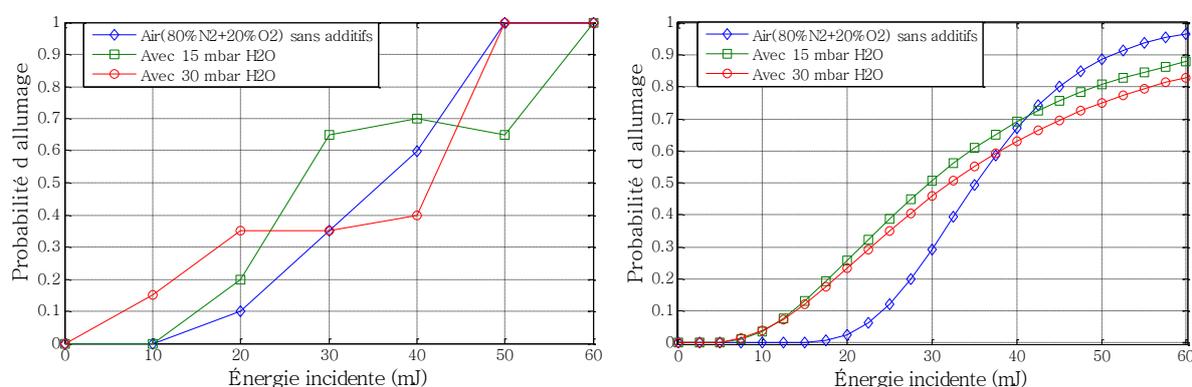


Figure IV. 16 : Effet de la vapeur d'eau seule sur les probabilités d'allumages et les lois de probabilités correspondantes.

Ce résultat peut s'expliquer par un surplus d'oxydant produit par la dissociation de la vapeur d'eau pendant les claquages laser.

3.9.2 Statistiques paramétrées en énergie absorbée

L'étude statistique des probabilités paramétrée en énergie absorbée montre que le comportement de l'éthanol n'est pas semblable à celui observé précédemment avec le n-décane. Dans ce cas de figure, la sensibilité du mélange est très supérieure à celle d'un mélange avec une chaîne saturée comme le n-décane. Les 100 % d'allumage sont atteints à une énergie absorbée de 1.60 mJ, valeur qui montre la grande inflammabilité de l'éthanol comparée à celle du n-décane.

Une explication à l'effet de la vapeur d'eau est que l'éthanol constitue un combustible à caractère polaire (liaison-OH) et ce type de molécules présente une bonne miscibilité dans l'eau².

² La miscibilité des alcools diminue avec l'augmentation du nombre d'atomes de carbone.

Cela peut expliquer la différence avec le n-décane qui est une chaîne saturée apolaire contenant un nombre d'atomes de carbone considérable. Ce type de molécules est non soluble dans l'eau. A notre avis, cette caractéristique polaire et apolaire (de miscibilité dans l'eau) joue un rôle même dans le cas des états gaz, mais cela reste à démontrer.

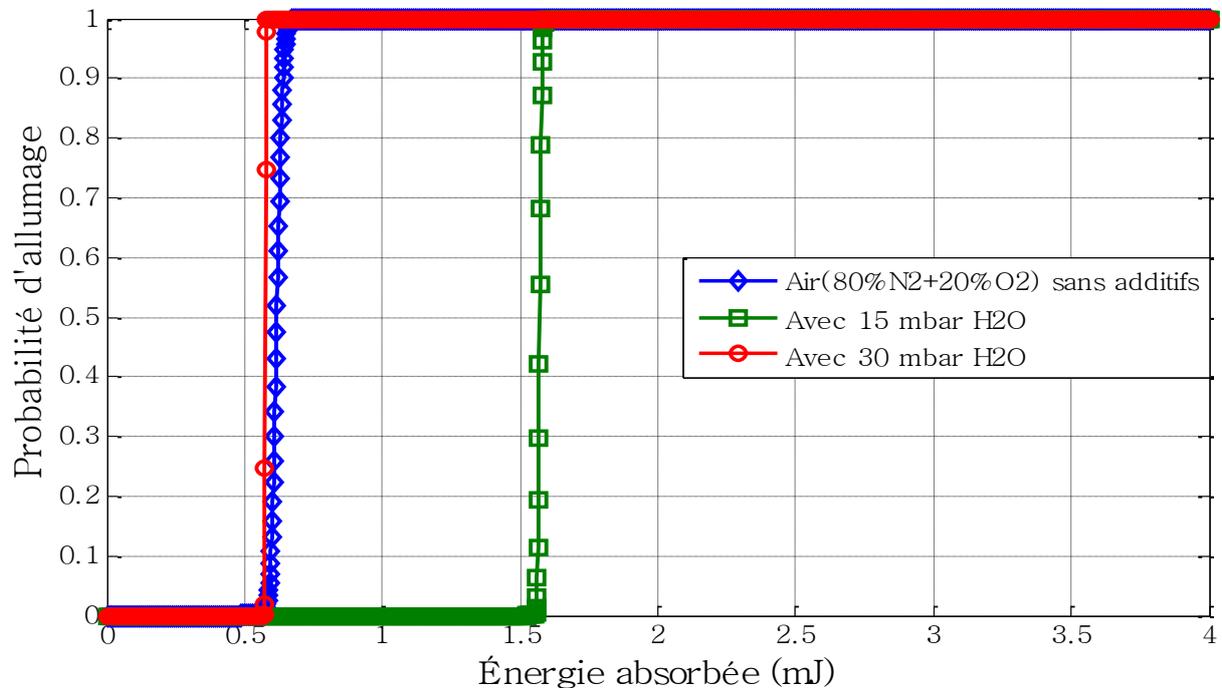


Figure IV. 17 : Effets de la vapeur d'eau seule sur les probabilités d'allumage laser de l'éthanol en fonction de l'énergie déposée.

Les paramètres statistiques de l'effet de la vapeur d'eau sur l'allumage laser de l'éthanol sont présentés sur le *Tableau IV. 9*. L'effet de sensibilité vis-à-vis de la vapeur d'eau peut se remarquer par le faible écart type des configurations contenant H₂O.

Tableau IV. 9 : Paramètres statistiques associés à l'effet de la vapeur d'eau.

C_2H_6O+ Composition	Paramètres		Espérance [mJ]	Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]
	C_1	C_2			
N_2+O_2	$-4,83 \cdot 10^{-1}$	$2,82 \cdot 10^{-2}$	0,62	0,0174	0,6171
$N_2+O_2+15mbar H_2O$	$4,52 \cdot 10^{-1}$	$3,82 \cdot 10^{-3}$	1,57	0,0060	1,5712
$N_2+O_2+30mbar H_2O$	$-5,53 \cdot 10^{-1}$	$2,57 \cdot 10^{-3}$	0,58	0,0015	0,5750

3.10 Allumage laser de quelques combustibles (effet de la liaison)

Le type de combustible utilisé est aussi expérimenté pour voir s'il y a des effets à remarquer vis-à-vis de l'allumage laser. Pour cela, on considère les deux études réalisées précédemment avec le n-décane+N₂+O₂ pour voir l'effet de la longueur de la chaîne et l'éthanol+N₂+O₂ pour voir l'effet de la liaison polaire (C-OH), configurations auxquelles on ajoute deux

configurations en considérant le décène en présence de N_2+O_2 pour montrer l'effet de la double liaison (C=C) et aussi le pentane pour une chaîne saturée de petite taille (C-C). Tous ces mélanges sont pris à richesse $\phi=1,1$ et $f=150$ mm.

Les résultats bruts des fréquences d'allumage laser des différentes configurations considérées sont représentés dans la *Figure IV. 18* en fonction de l'énergie incidente. On peut voir que la double liaison du décène rend le combustible très difficile à allumer par rapport au n-décane. L'effet de la liaison polaire OH améliore l'allumage laser si on la compare avec les résultats obtenus avec le n-décane et le décène. L'effet de la longueur de chaîne est bien mis en évidence en comparant les résultats du n-pentane aux résultats du n-décane.

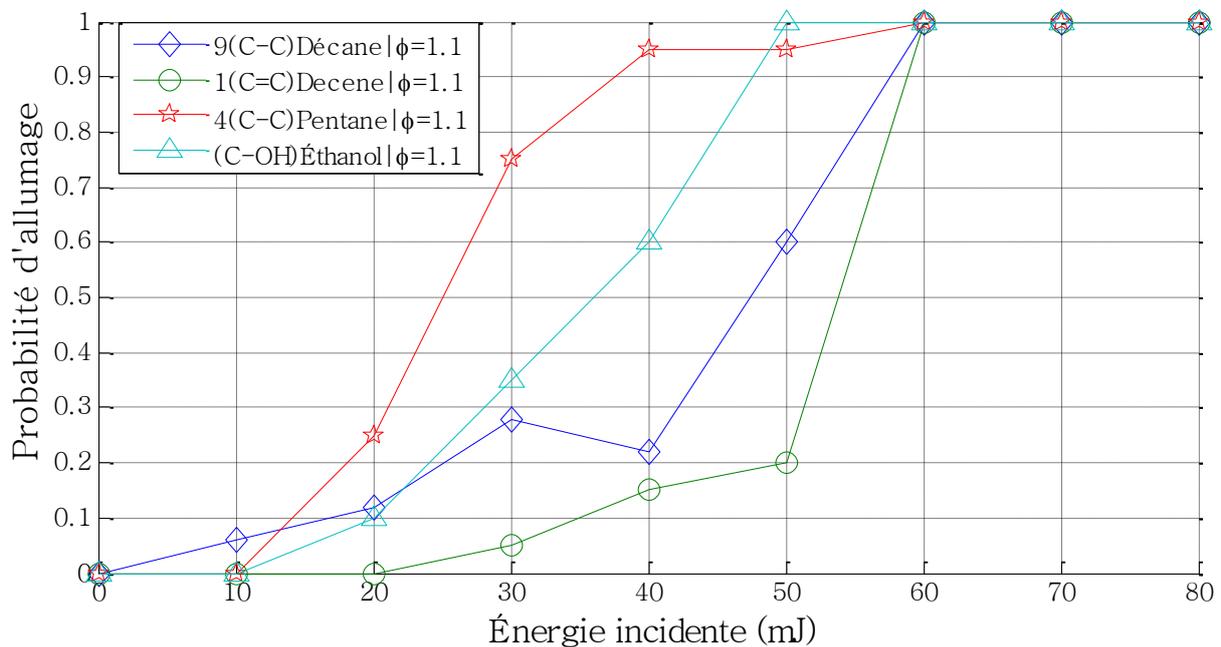


Figure IV. 18 : Effets de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible.

L'ensemble de ces résultats est approximé avec la même loi statistique que celle présentée au chapitre III.

3.10.1 Statistiques des allumages paramétrées en énergie incidente

Les approximations montrent les effets de chaque combustible (longueur de chaîne de carbone, liaison simple ou double, liaison polaire OH d'un alcool).

Le constat est que les petites longueurs de chaîne d'alcane sont beaucoup plus faciles à allumer car la densité moléculaire du combustible dans le volume focal est très supérieure à celle d'un alcane de longueur de chaîne de carbone supérieure. Le pentane possède une énergie $E_{50\% C_5H_{12}} = 24.87$ mJ (Voir *Figure IV. 19* et *Tableau IV. 10*).

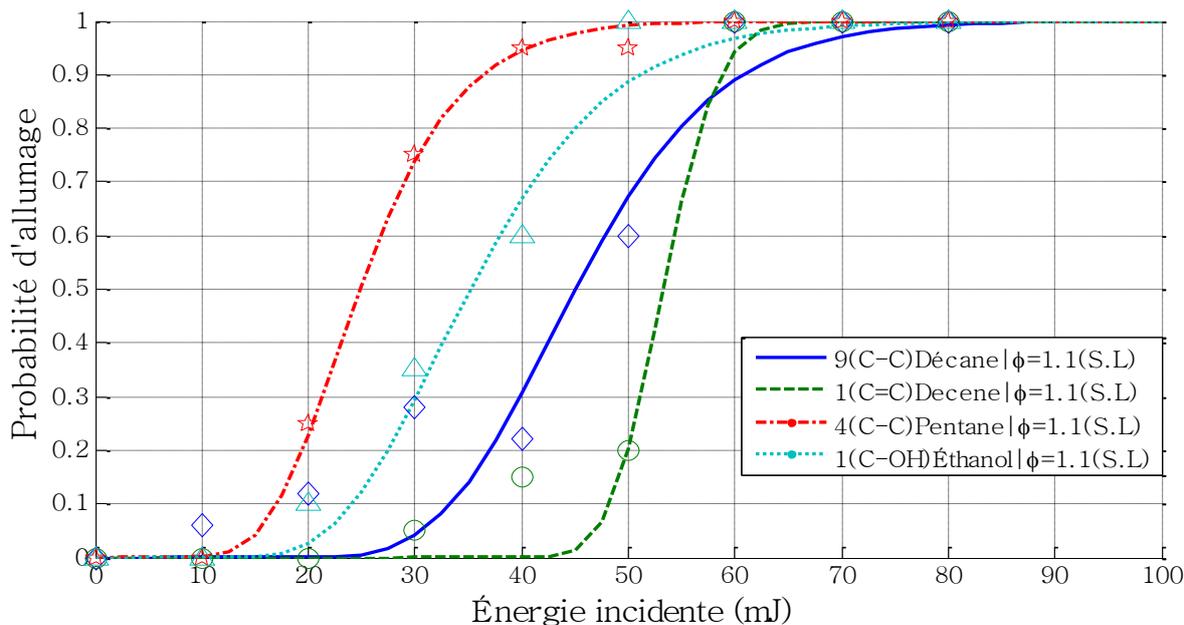


Figure IV. 19 : Lois statistiques montrant l'effet de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible, lois paramétrées en énergie incidente.

La liaison OH de l'éthanol implique une plus grande difficulté à allumer si on compare par rapport au pentane. Ce combustible se caractérise par un paramètre $E_{50\% C_2H_6O} = 35,16$ mJ.

La plus grande longueur de chaîne, correspondant au n-décane, offre une énergie $E_{50\% C_{10}H_{22}} = 45,01$ mJ, valeur supérieure à la valeur des combustibles avec des chaînes de carbone plus courtes. La double liaison du décène offre un $E_{50\% C_{10}H_{20}} = 53,25$ mJ, valeur considérable pour avoir 50 % d'allumages réussis en la comparant avec les autres configurations. Ces résultats peuvent s'expliquer par l'énergie de liaison caractéristique portée par chaque molécule du combustible (Tableau IV. 11).

Tableau IV. 10 : Paramètres statistiques reliés au type de combustible utilisé

Composition	Paramètres	Espérance		Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]
		C_1	C_2		
$C_{10}H_{22}+N_2+O_2$	9(C-C)	3,807	0,234	46,26	10,99267
$C_{10}H_{20}+N_2+O_2$	1(C=C)	3,975	0,076	53,41	4,05955
$C_5H_{12}+N_2+O_2$	4(C-C)	3,214	0,294	25,98	7,81280
$C_2H_6O+N_2+O_2$	1(C-OH)	3,560	0,291	36,69	10,91776

Tableau IV. 11 : Energie de dissociation de certaines liaisons chimiques portées par les combustibles

Composition	Énergie de dissociation [KJ/mol]
(C-C) Alcane	347-356
(C=C) Alcène	611-632
(C≡C) Alcyne	837
(O-H) hydroxyle	460

3.10.2 Statistiques des allumages paramétrées en énergie absorbée

Le même travail que précédemment est effectué en tenant compte de l'énergie déposée comme paramètre dans les lois stochastiques. Les résultats sont présentés en *Figure IV. 20*.

Les résultats montrent que les mélanges réactifs avec l'éthanol sont les plus sensibles à l'allumage laser en présentant un $EA50\%_{C_2H_6O} = 0.61$ mJ.

Après l'éthanol, le composé le plus facile à allumer en termes d'énergie absorbée est le décène avec $EA50\%_{C_{10}H_{20}} = 0.98$ mJ, on trouve ensuite le n-décane avec $EA50\%_{C_{10}H_{22}} = 1.21$ mJ et enfin le pentane avec $EA50\% = 2.16$ mJ.

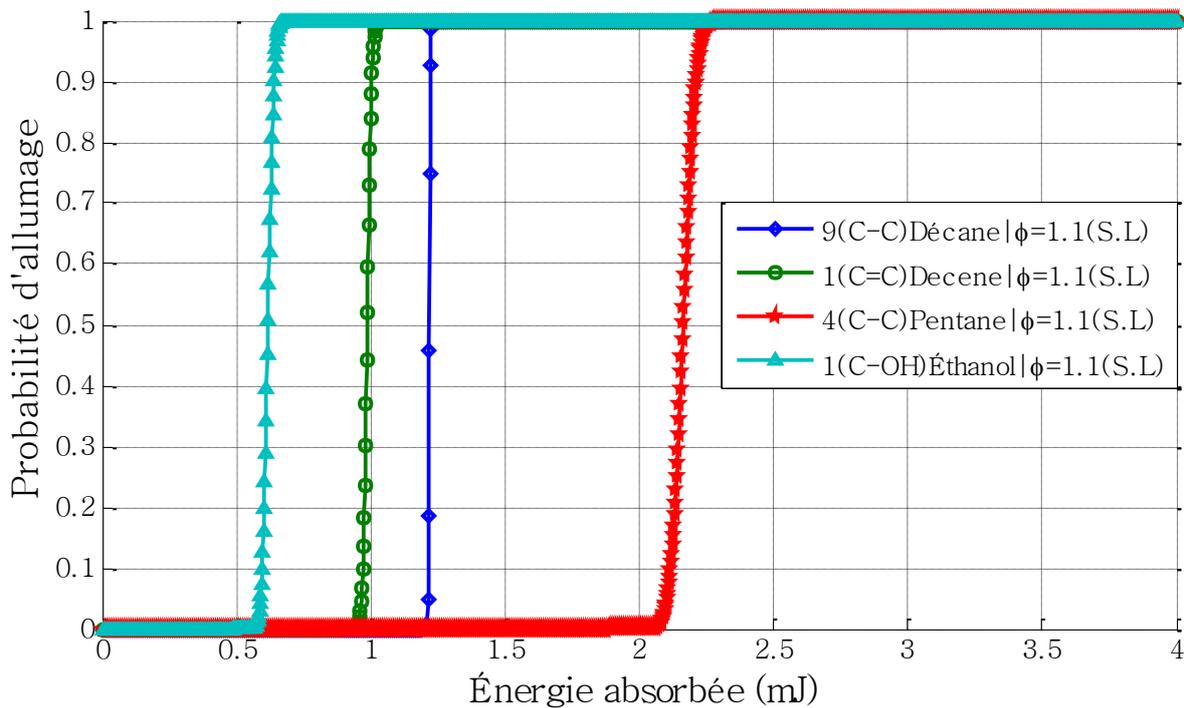


Figure IV. 20 : Lois statistiques montrant l'effet de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible, loi paramétrée en énergie absorbée.

La chose intéressante que l'on peut noter à la lecture dans le *Tableau IV. 12* est que tous les combustibles considérés sont caractérisés par des écarts types très faibles, ce qui montre une sensibilité et stabilité à l'allumage très forte à la richesse $\phi = 1,1$ considérée.

Tableau IV. 12 : Paramètres stochastiques des combustibles considérés en fonction de l'énergie déposée

Composition	Paramètres	Espérance		Ecart type [mJ]	Médiane (EA50%) [mJ]	
		C_1	C_2			
$C_{10}H_{22}+N_2+O_2$	9(C-C)	0,197	0,003	1,22	0,003	1,2179
$C_{10}H_{20}+N_2+O_2$	1(C=C)	-0,013	0,013	0,99	0,013	0,9869
$C_5H_{12}+N_2+O_2$	4(C-C)	0,772	0,017	2,16	0,037	2,1647
$C_2H_6O+N_2+O_2$	1(C-OH)	-0,483	0,028	0,62	0,017	0,6171

Il est important de noter ici que le comportement des différents combustibles est très dépendant du fait que l'on s'intéresse à l'énergie incidente ou à l'énergie absorbée. En effet, les résultats sont très différents, voire inversés, selon le paramètre étudié. Il est donc impératif de considérer ces deux paramètres pour caractériser le comportement à l'allumage laser d'un combustible donné.

4 Conclusion

La présente étude complète la première partie des travaux expérimentaux présentés dans le chapitre III. Dans le cas de ce chapitre, on s'est intéressé principalement à l'influence de l'argon et de la vapeur d'eau comme additif dans certains mélanges réactifs allumés par claquage laser non résonant, principalement avec des mélanges combustible contenant le n-décane. D'autres expériences ont été menées sur différents combustibles mais en considérant une seule richesse proche de la stœchiométrie ($\phi=1.1$).

Le constat des travaux expérimentaux montre que l'addition du gaz inerte argon augmente légèrement les délais de claquage des mélanges $C_{10}H_{22}+N_2+O_2$ lorsque ce gaz est ajouté en faibles concentrations (0.5 et 1.5% d'argon en volume d'air). Les impuretés comprises dans le combustible modifient aussi les délais de claquage en considérant différentes plages d'énergie déposée. Ces retards aux claquages influencent les propriétés physiques de la combustion, i.e. on les retrouve aussi comme une conséquence de certains retards à l'allumage (délais d'allumages longs) en prenant également en compte l'influence de l'énergie déposée (voir dans le Chapitre III l'effet de l'énergie absorbée).

Les effets de l'humidité et de l'argon ont été testés séparément et combinés ensemble pour deux concentrations différentes dans de l'air synthétique pur 80% N_2 + 20% O_2 .

Pour les deux combustibles n-décane et éthanol, on a constaté que l'humidité et l'argon jouaient un rôle significatif sur les probabilités d'allumages. Ce résultat est valable que l'on considère l'énergie incidente provenant de la source laser ou que l'on considère l'énergie absorbée dans le mélange réactif.

Il apparaît que l'argon seul dans le cas du n-décane et de l'éthanol inhibe les cas d'allumage laser, chose bien observée avec la concentration à 2% en argon. La vapeur d'eau reste insensible dans le cas des mélanges avec le n-décane si on la considère seule. Concernant l'éthanol, celle-ci présente un effet catalyseur modéré pour l'allumage laser. Cette différence entre le n-décane et l'éthanol peut s'expliquer par les structures moléculaires polaire et apolaire des deux combustibles considérés vis-à-vis de l'eau.

Les configurations ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2$) et ($C_2H_6O+N_2+O_2$) avec 1% d'argon + 30 mbar d' H_2O se caractérisent par des probabilités d'allumages supérieures en les comparant aux cas des références et aux autres cas présentés dans ce chapitre. L'effet combiné des deux agents (Ar et H_2O) avec ces quantités considérées rendent les mélanges très sensibles à l'allumage. Un effet chimique entre la vapeur d'eau et l'argon existe probablement à ces concentrations considérées. Les observations constatées sur les probabilités d'allumages montrent que la vapeur d'eau diminue la sensibilité d'allumage en termes d'énergie absorbée pour le n-décane. Le comportement de l'éthanol avec la vapeur d'eau est complètement différent du point de vue de l'énergie absorbée.

Deux autres types de combustible ont été testés, à savoir le n-pentane et le décène pour montrer l'effet de la double liaison du décène et l'effet de la longueur de la chaîne carbonée du n-pentane en les comparant au n-décane. Les résultats montrent une sensibilité à l'allumage laser supérieure des alcanes ayant une chaîne de carbones plus petite en considérant une étude en fonction de l'énergie incidente. La double liaison du décène offre une difficulté à l'allumage laser en présentant des probabilités d'allumages médiocres comparées à celles du n-décane et aux autres cas. La liaison OH de l'éthanol affaiblit la probabilité d'allumage de ce dernier par rapport au n-pentane. Le constat est que les liaisons doubles (C=C) et les liaisons type (C-OH) sont difficiles à détruire si on considère la même longueur de chaîne en carbones (Ex : n-décane et décène) ou même avec un combustible de nature différente avec moins d'atome de carbone (éthanol et n-pentane).

Cette étude souligne l'influence des additifs et des impuretés présentes initialement dans les mélanges réactifs. Nous avons également remarqué l'effet de quelques liaisons caractéristiques portées par les combustibles expérimentés. À noter que la longueur d'onde et l'effet de résonance porté spécialement sur certaines liaisons ou sur certains agents additifs peuvent considérablement améliorer l'allumage laser. Considérer l'effet de résonance sur la composition chimique peut donc probablement être une solution industrielle intéressante comparée à l'allumage par bougie électrique.

Bibliographie (IV)

- Akhatov, I. et al. (2001). Collapse and rebound of a laser-induced cavitation bubble. *Physics of Fluids*, 13(10), 2805–2819. <http://doi.org/10.1063/1.1401810>
- Boretti, A. (2013). Water injection in directly injected turbocharged spark ignition engines. *Applied Thermal Engineering*, 52(1), 62–68. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2012.11.016>
- He, Z. et al. (2015). The effects of different intake charge diluents on the combustion and emission characteristics of a spark ignition natural gas engine. *Applied Thermal Engineering*, 89(x), 958–967. <http://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2015.06.072>
- I.N. Kosarev et al. (2008). Kinetics of ignition of saturated hydrocarbons by nonequilibrium plasma: CH₄-containing mixtures. *Combustion and Flame*, 154(3), 569–586. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2008.03.007>
- I.N. Kosarev et al. (2009). Kinetics of ignition of saturated hydrocarbons by nonequilibrium plasma: C₂H₆- to C₅H₁₂-containing mixtures. *Combustion and Flame*, 156(1), 221–233. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2008.07.013>
- Jones, R. E. (1978). Gas turbine engine emissions-Problems, progress and future. *Progress in Energy and Combustion Science*, 4(2), 73–113. [http://doi.org/10.1016/0360-1285\(78\)90006-0](http://doi.org/10.1016/0360-1285(78)90006-0)
- Karthikeya Sharma, T. (2014). Performance and emission characteristics of the thermal barrier coated SI engine by adding argon inert gas to intake mixture. *Journal of Advanced Research*, (2). <http://doi.org/10.1016/j.jare.2014.06.005>
- Lilley, D. G. (2003). *High temperature Air Combustion*. (Ashwani K. Gupta, Ed.) (High tempe). Björn Karlsson and James G. Quintiere.
- Nicholas Tsolas et al. (2016). Plasma flow reactor studies of H₂/O₂/Ar kinetics. *Combustion and Flame*, 165, 144–153. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.11.021>
- Qotba, R. (2006). *Etude expérimentale des phénomènes induits dans un liquide par une injection fortement localisée d'énergie*. Université Joseph-Fourier.
- Strozzi et al. (2014). Laser-Induced Spark Ignition of Gaseous and Quiescent N-Decane–Air Mixtures. *Combustion Science and Technology*, 186(10–11), 1562–1581. <http://doi.org/10.1080/00102202.2014.935601>
- Weifeng Li et al. (2015). Experimental and theoretical analysis of effects of atomic, diatomic and polyatomic inert gases in air and EGR on mixture properties, combustion, thermal efficiency and NO_x emissions of a pilot-ignited NG engine. *Energy Conversion and Management*, 105, 1082–1095. <http://doi.org/10.1016/j.enconman.2015.08.052>
- Zacharias Nikolaou et al. (2013). A 5-step reduced mechanism for combustion of CO/H₂/H₂O/CH₄/CO₂ mixtures with low hydrogen/methane and high H₂O content. *Combustion and Flame*, 160(1), 56–75. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2012.09.010>

Table des figures (IV)

<i>Figure IV. 1 : Spectres de claquage dans des mélanges différents $E_{inc}=60$ mJ.</i>	224
<i>Figure IV. 2 : Claquage de la vapeur d'eau à 100 mbar $E_{inc}=60$ mJ.</i>	225
<i>Figure IV. 3 : Mesures de photodiode montrant la moyenne d'émission du plasma en fonction de la plage de l'énergie déposée.</i>	226
<i>Figure IV. 4 : Moyenne des signaux de photodiode aux temps de claquage.</i>	227
<i>Figure IV. 5 : Effet de l'argon et des impuretés sur les allumages en fonction de l'énergie absorbée</i>	228
<i>Figure IV. 6 : fréquences d'allumage brutes des configurations expérimentales testées ($f=150$ mm et $\phi=1.1$).</i>	229
<i>Figure IV. 7 : Approximations stochastiques par le même modèle d'équation montrant l'effet de l'argon et l'effet combiné en énergie incidente.</i>	230
<i>Figure IV. 8 : Approximation stochastique en énergie absorbée montrant l'effet de l'argon et l'effet combiné avec la vapeur d'eau.</i>	231
<i>Figure IV. 9 : Effet des impuretés comprises dans le combustible (comparaison entre $C_{10}H_{22}$ pur à 94 % et 99 %)</i>	232
<i>Figure IV. 10 : Effet combiné des impuretés et de la qualité du comburant utilisé : comparaison entre nos résultats ($C_{10}H_{22}$ qualité à 99%+(80%N₂+20%O₂)) et les résultats de Strozzi et al. 2014 ($C_{10}H_{22}$ qualité à 94%+(Air ambiant)).</i>	233
<i>Figure IV. 11: Effet de la vapeur d'eau seule et lois d'approximation des probabilités d'allumages.</i>	234
<i>Figure IV. 12 : Effets de la vapeur d'eau sur les probabilités d'allumages paramétrées sur l'énergie absorbée</i>	235
<i>Figure IV. 13 : Fréquences d'allumage brutes de la combustion (éthanol C_2H_6O) avec incorporation des mêmes additifs Argon et H_2O.</i>	236
<i>Figure IV. 14 : Approximation statistique des effets des additifs paramétrés en énergie incidente. ..</i>	237
<i>Figure IV. 15 : Effets des additifs paramétrés en énergie absorbée de l'allumage du C_2H_6O.</i>	238
<i>Figure IV. 16 : Effet de la vapeur d'eau seule sur les probabilités d'allumages et les lois de probabilités correspondantes.</i>	239
<i>Figure IV. 17 : Effets de la vapeur d'eau seule sur les probabilités d'allumage laser de l'éthanol en fonction de l'énergie déposée.</i>	240
<i>Figure IV. 18 : Effets de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible.</i>	241
<i>Figure IV. 19 : Lois statistiques montrant l'effet de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible, lois paramétrées en énergie incidente.</i>	242
<i>Figure IV. 20 : Lois statistiques montrant l'effet de la longueur de chaîne carbonée et du type de liaison comprise dans le combustible, loi paramétrée en énergie absorbée.</i>	243

Table des tableaux (IV)

<i>Tableau IV. 1 : plan des expériences pour étudier l'effet de l'argon et de la vapeur d'eau sur l'allumage laser du $C_{10}H_{22}$ (n-décane à 94%) et du C_2H_6O (éthanol à 99%)</i>	223
<i>Tableau IV. 2 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximations en énergie incidente..</i>	231
<i>Tableau IV. 3 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximation en énergie absorbée ..</i>	232
<i>Tableau IV. 4 : Nature des impuretés comprises dans le n-décane 94 %.</i>	233
<i>Tableau IV. 5 : Paramètres statistiques de l'effet des impuretés et de l'air utilisé.</i>	234
<i>Tableau IV. 6 : Paramètres statistiques associés à l'effet de la vapeur d'eau.</i>	235
<i>Tableau IV. 7 : Paramètres C_1 et C_2 des lois stochastiques d'approximations en énergie absorbée..</i>	237
<i>Tableau IV. 8 : Paramètres statistiques des configurations paramétrées avec l'énergie absorbée</i>	238
<i>Tableau IV. 9 : Paramètres statistiques associés à l'effet de la vapeur d'eau.</i>	240

<i>Tableau IV. 10 : Paramètres statistiques reliés au type de combustible utilisé</i>	<i>242</i>
<i>Tableau IV. 11 : Energie de dissociation de certaines liaisons chimiques portées par les combustibles</i>	<i>242</i>
<i>Tableau IV. 12 : Paramètres stochastiques des combustibles considérés en fonction de l'énergie déposée</i>	<i>243</i>

CHAPITRE V

INFLUENCE DE LA VAPEUR D'EAU ET DE L'ARGON SUR LA CINETIQUE CHIMIQUE DE COMBUSTION DE $C_{10}H_{22}$

TABLE DES MATIERES (V)

Avant-propos	253
1 Cinétique chimique	253
2 Mécanisme réactionnel	254
2.1 Processus d'amorçage.....	254
2.2 Processus de ramification (Chain branching).....	255
2.3 Processus de propagation	255
2.4 Processus de terminaison	257
3 Construction d'un schéma cinétique.....	257
4 Modèles d'oxydation du n-décane	259
5 Calculs 0D sur quelques schémas cinétiques du $C_{10}H_{22}$	260
5.1 Chemkin Pro et procédures de simulation	260
5.2 Données cinétiques	261
5.3 Mécanisme squelette de Chang (BT et HT).....	262
5.4 Mécanisme de Honnet (BT et HT).....	262
5.5 Mécanisme de Dagaut (HT)	262
5.6 Mécanisme de (Sarathy et al., 2011) (BT et HT).....	262
6 Cinétique de l'oxydation du $C_{10}H_{22}$ à travers les 4 schémas.....	263
6.1 Effet de la richesse sur l'oxydation du n-décane à 1000 K.....	263
6.2 Effet de la richesse sur la vitesse de flamme laminaire.....	265
7 Influence de la vapeur d'eau à travers la cinétique chimique du n-décane	266
7.1 Effet sur les délais d'allumage ($T_0=1000$ K).....	266
7.2 Effet sur la vitesse de flamme (500 K).....	268
7.3 Effet sur la pression et la température maximale.....	268

8	<i>Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau</i>	270
8.1	<i>Effet sur les délais d'allumage</i>	270
8.2	<i>Effets combinés sur la pression et la température maximale</i>	271
9	<i>Conclusion</i>	272
	<i>Bibliographie (V)</i>	273
	<i>Table des figures (V)</i>	274
	<i>Table des tableaux (V)</i>	274

Avant-propos

La combustion est soumise à une forte incitation pour améliorer les technologies en termes de rendement, pour permettre des économies de carburants et également pour réduire les émissions de polluants. Les nouvelles stratégies de combustion ont attiré de plus en plus l'attention ces dernières années afin de comprendre les réactions importantes de la cinétique de combustion. En effet, cette compréhension peut fournir des informations afin de contrôler la combustion pour éviter ou réduire la formation des NO_x, SO_x, CO, ainsi que d'autres composants ou des particules. Cette réduction des émissions polluantes doit être faite tout en maintenant au maximum l'efficacité du moteur et une combustion complète du carburant.

La cinétique chimique est une discipline en soit qui regarde l'évolution des espèces de départ (mélange combustible/comburant) et la formation des espèces nouvelles (produits de combustion : états intermédiaires et les états finaux) formant des composants d'un état moléculaire souvent différent de l'état d'origine si la combustion est complète.

L'objectif des simulations présentées dans ce chapitre est d'étudier les effets des additifs comme l'argon et la vapeur d'eau tant sur les délais d'allumage que sur la vitesse de flamme laminaire si cela est possible. Durant cette investigation, on effectuera une étude paramétrique avec 4 schémas cinétiques d'oxydation du n-décane présentant un nombre de réactions différent qui viennent de différentes écoles à travers le monde.

1 Cinétique chimique

Dans la recherche concernant les moteurs à combustion interne, la cinétique chimique répond aux besoins de modèles numériques conçus pour représenter la combustion d'hydrocarbures et permet d'établir et développer un certain nombre de modèles numériques plus au moins complexes. Dans ces derniers les schémas cinétiques sont utilisés pour la conception et la prédiction des performances des systèmes pratiques tels que le turbo, l'EGR... dans les moteurs. D'une manière générale, la cinétique chimique forme un lien entre l'observation expérimentale et les interprétations analytiques des procédés de combustion.

La plupart des réactions élémentaires de combustion sont bi-moléculaire, i.e. deux molécules entrent en collision et réagissent pour former deux molécules différentes qui peuvent être exprimées sous la forme générale



a, b, c, et d sont des coefficients stœchiométriques

$$\frac{1}{a} \frac{d[A]}{dt} = \frac{1}{b} \frac{d[B]}{dt} = -\frac{1}{c} \frac{d[C]}{dt} = -\frac{1}{d} \frac{d[D]}{dt} = -k[A][B] \quad (\text{EQ V-2})$$

La théorie cinétique des gaz et les expériences ont constaté que la constante de vitesse k pour une réaction élémentaire est une fonction exponentielle qui est fonction de la température appelée loi d'Arrhenius.

$$\begin{cases} k = A \exp(-E_A / RT) \\ \text{Ou} \\ k = AT^n \exp(-E_A / RT) \end{cases} \quad (\text{EQ V-3})$$

Avec la disponibilité des calculateurs, la représentation des processus de combustion par la modélisation des mécanismes cinétiques détaillés est devenue une discipline d'actualité. L'exigence de ces calculs est le recours à une large connaissance des constantes de vitesse pour chaque réaction élémentaire impliquée dans le processus de combustion.

La plupart de ces paramètres de vitesse est déterminée à partir d'études expérimentales, dans le cas contraire ces paramètres sont estimés avec des calculs approximatifs à l'exemple des méthodes suivantes : théorie des collisions, théorie de Lindemann Hinshelwood, théorie de l'état de transition... (Pauwels, 2010).

2 Mécanisme réactionnel

Un mécanisme réactionnel comporte souvent au minimum 4 processus qui sont classés en quatre types. Ces processus sont les suivants : les processus d'amorçages, les processus de ramification, les processus de propagation et enfin les processus de terminaison. De nombreux modèles existent pour plusieurs familles d'hydrocarbures (ex : les alcanes) et pour certains hydrocarbures spéciaux (Frédéric BUDA, 2006; Liu, 2010; Pauwels, 2010)

2.1 Processus d'amorçage

Durant le processus d'amorçage, un atome excité, un ion ou un fragment moléculaire d'un réactif neutre est formé, généralement par l'action d'un agent tel qu'une espèce chimique active, un contact avec un composant catalytique, la lumière ou la chaleur.



2.2 Processus de ramification (Chain branching)

Les produits d'amorçage et les radicaux créés se multiplient et créent de nouveaux radicaux en collisionnant avec les molécules du réactif. Ces derniers sont produits et détruits en même temps. Si le taux de production est suffisant, le processus passe au processus de propagation.



2.3 Processus de propagation

Les radicaux R produits pendant les phases d'amorçage et de ramification réagissent selon la plage de température où ils se trouvent. Durant ce processus, le nombre de radicaux ne change pas de manière significative, mais différents radicaux sont fabriqués.



Les auteurs distinguent depuis longtemps deux types de schémas essentiels : un à basse température ($T < 1000 \text{ K}$) et l'autre à haute température ($T > 1000 \text{ K}$). Cela est fait pour une différenciation très nette entre les types de réactions qui dominent en fonction de chaque régime (J. F. Griffiths & J. A. Barnard, 1995). Après plusieurs études et des observations expérimentales, les scientifiques font une classification en trois régimes :

Régime de basse température $T < 650 \text{ K}$

Régime intermédiaire $650 < T < 1000 \text{ K}$

Régime haute température $T > 1000 \text{ K}$

Chaque régime est dominé par des réactions impliquant différentes espèces radicalaires et des espèces stables selon différentes voies :

- *Addition des radicaux $R \bullet$ et $\bullet QOOH$ sur l'oxygène*
- *Isomérisation des radicaux (isomérisation, i.e. même formule brute mais la forme géométrique de la molécule est différente et les propriétés physiques, chimiques et biologiques sont différentes)*
- *Décomposition des radicaux $R \bullet$ et $\bullet QOOH$*
- *Oxydation des radicaux $R \bullet$ et $\bullet QOOH$*
- *Décomposition des radicaux hydroperoxyalkyles $\bullet QOOH$ en éthers cycliques*
- *Capture d'un hydrogène par un radical de la molécule du réactif (métathèse)*
- *Dismutation et recombinaison des espèces actives.*

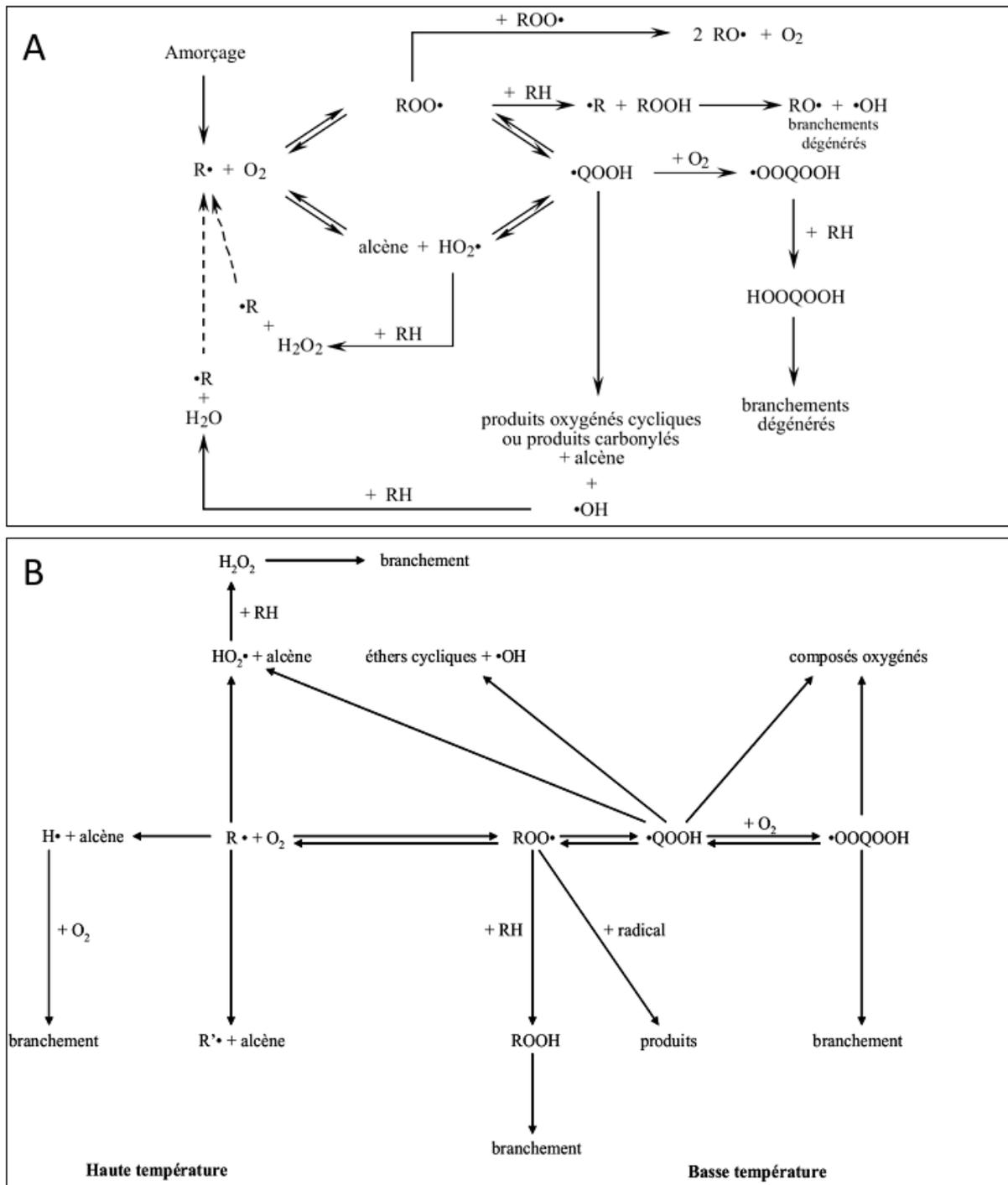


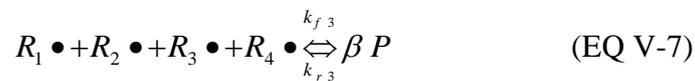
Figure V. 1: (A) Oxydation d'un alcane à basse température (A) et dans le régime intermédiaire (B). Oxydation d'un alcane à basse température et haute température. (Frédéric BUDA, 2006).

Pour plus d'information, le lecteur peut se référer à la thèse de (Frédéric BUDA, 2006).

Les conditions initiales et l'environnement de combustion, i.e. la température, la pression, la richesse et les composants catalytiques incorporés définissent les régimes de combustion suivis et les voies réactionnelles privilégiées.

2.4 Processus de terminaison

Au cours de ce processus, les radicaux produits sont détruits soit par des réactions en phase gazeuse de recombinaison soit par des réactions de collision avec les surfaces. Souvent, les produits finaux sont du CO₂, H₂O et les inerts et le catalyseur de départ si il y a lieu.



$R_1 \bullet, R_2 \bullet, R_3 \bullet$ et $R_4 \bullet$ représentent les molécules intermédiaires du carburant, P les produits de combustion. α, β sont des coefficients de type entiers et k_f, k_r sont des constantes de vitesse de réactions (formation et recombinaison).

3 Construction d'un schéma cinétique

Un mécanisme d'oxydation est caractéristique du type de carburant utilisé qui est souvent de type $C_xH_yO_z$. Ce dernier ne s'effectue pas sur une seule étape mais sur plusieurs réactions qui interviennent dans un mécanisme complexe. Le nombre des espèces générées et le nombre de réactions dépendent de la longueur de la chaîne de carbone de la molécule de combustible comme le montre la *Figure V. 2*

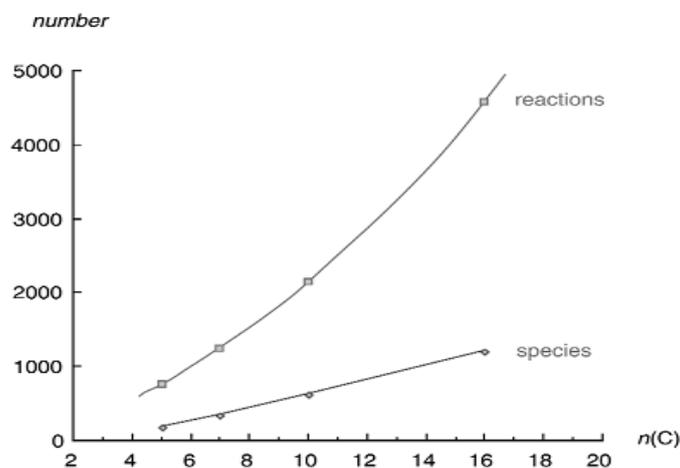


Figure V. 2 : Nombre d'espèces et de réactions d'un alcane pour une oxydation à basse température en fonction du nombre d'atomes de carbone de la chaîne moléculaire (Warnatz, 2000).

La *Figure V. 2* montre la complexité de concevoir un schéma détaillé de façon la plus fidèle possible pour coller à la réalité de ce qui se passe dans les expériences. Pour remédier à cette complexité, on trouve plusieurs catégories de modèles de schémas cinétiques conçues par plusieurs écoles en utilisant des conceptions manuelles ou générées par calculateurs (MAMOX...).

On retrouve le système de Milan, le système de Leeds, le système de Stuttgart, le système de Gand, le système SHELL, le système Netgen, le système de Linz, celui de Lund, le système de Budapest, le système EXGAZ et finalement le système GazEl.

La plupart des modèles venant de ces écoles citées précédemment proposent des schémas de tailles différentes (*Tableau V. 1*) générés principalement selon un algorithme exhaustif afin d'obtenir un mécanisme comportant au minimum une structure primaire (*Figure V. 3*) qui rappelle les étapes importantes de combustion et une structure secondaire si il y a lieu complétant l'ensemble du schéma pour obtenir un schéma détaillé.

Tableau V. 1 : Catégories de modèles de schémas cinétiques. (Zheng et al., 2004).

Catégorie du modèle	description	Nombre d'espèces	Nombre de réactions
Schéma détaillé	Comporte une série de réaction complète	Dès 100	Dès 1000
Schéma groupé (Lumped)	Utilise une description plus au moins réduite pour une large gamme d'espèces	Dès 100	Dès 1000
Schéma réduit	Sous-ensemble d'un modèle détaillé	Des 10	10-100
Schéma squelette (Skeletal)	Emploie une chimie de classe et les concepts lumping (réduction)	Dès 10	Dès 10
Schéma global	Utilise des réactions globales pour réduire au minimum l'ensemble des réactions	<10	<10

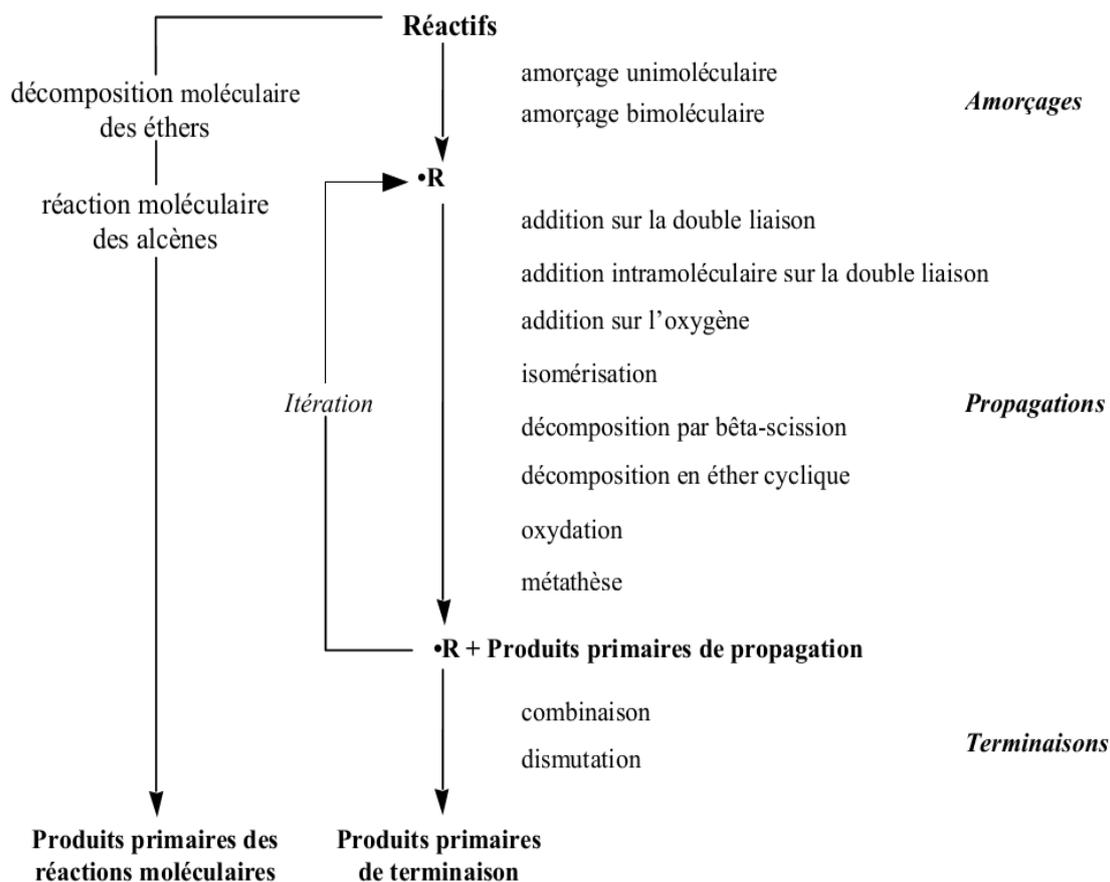


Figure V. 3: Algorithme de génération exhaustive du mécanisme cinétique primaire. (Frédéric BUDA, 2006)

4 Modèles d'oxydation du n-décane

La cinétique de combustion du n-décane a été étudiée par plusieurs auteurs, les différents modèles ont été validés par plusieurs bases de données expérimentales déjà existantes.

Chacun de ces nombreux modèles proposés a sa plage d'utilisation en termes de température et de pression, le *Tableau V. 2* réalisé par (HELENA P. RAMIREZ L, 2012) représente une synthèse des travaux essentiels sur la cinétique d'oxydation du n-décane.

Tableau V. 2: Schémas d'oxydation du n-décane (HELENA P. RAMIREZ L, 2012)

Conditions expérimentales			Réacteur	Résultats	Référence
T (K)	P (bar)	ϕ			
550-1150	10 ; 40	0,1-1,5	auto-agité	Profils d'espèces	Dagaut <i>et al.</i> 1994
873;1033	1	0,2-1,5	auto-agité	Profils d'espèces	Bales-Gueret <i>et al.</i> 1997
900-1150	1	0,5-2,0	auto-agité	Profils d'espèces	Ristori 2000
900-1300	1	0,5-2,0	auto-agité	Profils d'espèces	Dagaut <i>et al.</i> 2006
550-1150	10	0,25-0,5	auto-agité	Profils d'espèces	Diévert 2008
550-1100	1	1	auto-agité	Profils d'espèces	Biet <i>et al.</i> 2008
1060	1	∞	à écoulement turbulent	Profils d'espèces	Zeppieri <i>et al.</i> 2000
1019	1	1			
700-1300	13 ; 50	0,5-2	Tube à choc	Délais d'auto-inflammation	Pfahl <i>et al.</i> 1996
1450-1550	1	1	Tube à choc	Délais d'auto-inflammation	Horning <i>et al.</i> 2002
1239-1616	1,8-10	0,7-3	Tube à choc	Délais d'auto-inflammation Profils d'espèces	Olchanski <i>et al.</i> 2006
800-1300	13 ; 80	0,5 et 1	Tube à choc	Délais d'auto-inflammation	Zhukov <i>et al.</i> 2008
1345-1537	5-6	0,5-1,3	Tube à choc	Délais d'auto-inflammation	Skjoth-Rasmussen <i>et al.</i> 2003
473	1	0,8-1,3	Brûleur	Vitesse de flamme	
300	1	0,6-1,4	Brûleur	Vitesse de flamme	Zhao <i>et al.</i> 2005
473	1	1,7	Brûleur	Structure de flamme	Delfau <i>et al.</i> 1991
473	1	1,7	Brûleur	Structure de flamme	Doute <i>et al.</i> 1997

D'autres travaux existent et ils sont souvent une reproduction améliorée ou une réduction des schémas déjà existants, à l'exemple des travaux de (Biet, Hakka, Warth, Glaude, & Battin-Leclerc, 2008. Chang et al, 2013. Honnet, Seshadri, Niemann, & Peters, 2009. Zeng et al., 2014)...

5 Calculs 0D sur quelques schémas cinétiques du $C_{10}H_{22}$

5.1 Chemkin Pro et procédures de simulation

Le code utilisé pour les différentes simulations est Chemkin-pro. Ce dernier offre une rapidité de calcul incomparable avec les autres codes antérieurs (Design, 2014). Il est composé d'un ensemble d'outils et différents modèles de réacteurs, les bases de ce logiciel sont écrites en Fortran, en C et C++ dans le but de résoudre différentes configurations de combustion par une cinétique chimique détaillée (ou plus ou moins détaillée) en phase gazeuse. La structure globale est constituée de quatre parties : l'interpréteur, les bases de données thermodynamiques et de transport, les fichiers liens et la bibliothèque de sous-programmes de calculs cinétiques en phase gazeuse.

La structure du code est représentée dans la *Figure V. 4* et pour plus d'informations sur ce dernier vous pouvez vous référer à (R. J. Kee et al, 2000).

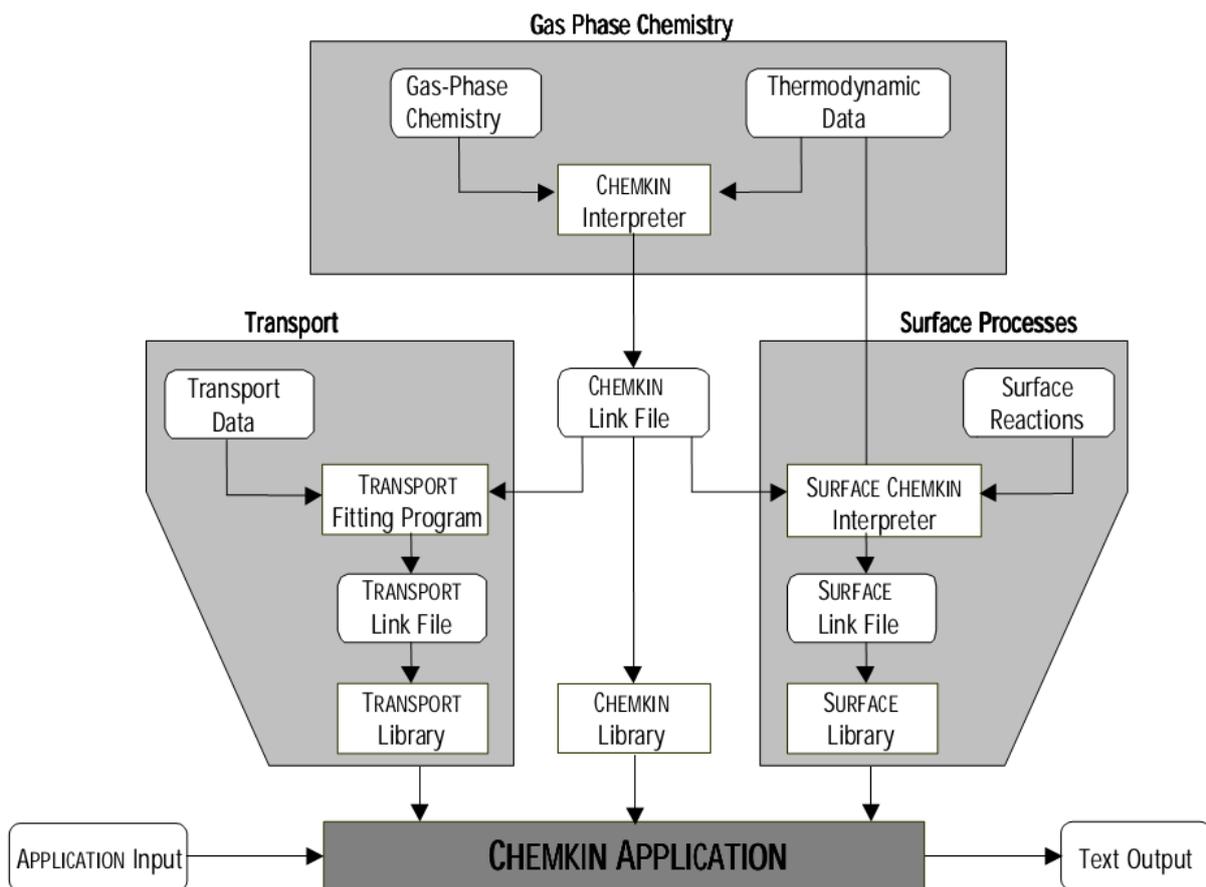


Figure V. 4 : Structure du code Chemkin-Pro(R. J. Kee et al, 2000)

Les simulations effectuées dans ce chapitre regroupent 4 schémas cinétiques qui sont disponibles. Les données sources comportent principalement 3 fichiers (données cinétiques, données thermodynamiques et données de transport).

Ces fichiers sont décrits ci-dessous.

5.2 Données cinétiques

Les fichiers d'entrée sont souvent générés automatiquement par des ordinateurs en utilisant le générateur EXGAS et sont écrits de la façon représentée dans les *Figure V. 5* et *Figure V. 6*.

Kinetic Mechanism

$$k_{f,i} = A_i T^{n_i} \exp\left(\frac{-E_i}{RT}\right)$$

ELEMENTS	O	H	N	END						
SPECIES	O	O2	H	H2	OH	HO2	H2O	H2O2	N2	END
REACTIONS										
H+O2 = O+OH						5.1E16	-0.82	16510	!MILLER	81
H2+O = H+OH						1.8E10	1.0	8830	!MILLER	77
H2+OH = H2O+H						1.2E09	1.3	3630	!DIXON-LEWIS	77
OH+OH = H2O+O						6.0E08	1.3	0.0	!COHEN	79
H+OH+M = H2O+M						7.5E23	-2.6	0.0	!MILLER	77
H2O /20.0/										
O2+M = O+O+M						1.9E11	0.5	95560	!MILLER	81
H2+M = H+H+M						2.2E12	0.5	92600	!MILLER	77
H2O /6.0/										
H /2.0/										
H2 /3.0/										
H2+O2 = OH+OH						1.7E13	0.0	47780	!MILLER	77
H+O2+M = HO2+M						2.1E18	-1.0	0.0	!SLACK	77
H2O /21.0/										
H2 /3.3/										
O2 /0.0/										
N2 /0.0/										
H+O2+O2 = HO2+O2						6.7E19	-1.42	0.0	!SLACK	77
H+O2+N2 = HO2+N2						6.7E19	-1.42	0.0	!SLACK	77
HO2+H = H2+O2						2.5E13	0.0	700	!LLOYD	74
HO2+H = OH+OH						2.5E14	0.0	1900	!LLOYD	74
HO2+O = OH+O2						4.8E13	0.0	1000	!LLOYD	74
HO2+OH = H2O+O2						5.0E13	0.0	1000	!LLOYD	74
HO2+HO2 = H2O2+O2						2.0E12	0.0	0.0	!TROE	69
H2O2+M = OH+OH+M						1.2E17	0.0	45500	!BAULCH	72
H2O2+H = HO2 + H2						1.7E12	0.0	3750	!BAULCH	72
H2O2+OH = H2O+HO2						1.0E13	0.0	1800	!BAULCH	72
END										

Kinetic Mechanism is written in a text file

Figure V. 5 : Représentation du fichier d'entrée des données cinétiques (Giancarlo Sorrentino, 2012)

Thermodynamic Data

Species	Comment	Elements	Phase	Range of temperatures			
OH	1212860	1H 1	G	0300.00	5000.00	1000.00	1
	0.02882730E+02	0.10139743E-02	-0.02276877E-05	0.02174683E-09	-0.05126305E-14		2
	0.03886888E+05	0.05595712E+02	0.03637266E+02	0.01850910E-02	-0.16761646E-05		3
	0.02387202E-07	-0.08431442E-11	0.03606781E+05	0.13588605E+01			4
OH+	1212860	1H 1E -1	G	0300.00	5000.00		1
	0.02719058E+02	0.15085714E-02	-0.05029369E-05	0.08261951E-09	-0.04947452E-13		2
	0.15763414E+06	0.06234536E+02	0.03326978E+02	0.13457859E-02	-0.03777167E-04		3
	0.04687749E-07	-0.01780982E-10	0.15740294E+06	0.02744042E+02			4
OH-	1212860	1H 1E 1	G	0300.00	5000.00		1
	0.02846204E+02	0.10418347E-02	-0.02416850E-05	0.02483215E-09	-0.07775605E-14		2
	-0.01807280E+06	0.04422712E+02	0.03390037E+02	0.07922381E-02	-0.01943429E-04		3
	0.02001769E-07	-0.05702087E-11	-0.01830493E+06	0.12498923E+01			4
MyOH		OO 1H 1 0	OG	300.000	5000.000		0 1
TEMP	300.000	1000.000	2500.000	5000.000			
	0.30563941E+01	0.89059362E-03	-0.20849917E-06	0.24115927E-10	-0.10516720E-14		
	0.37260112E+04	0.44780081E+01					
	0.34298433E+01	-0.25250392E-03	0.80470663E-06	-0.33336490E-09	0.43425671E-13		
	0.37097800E+04	0.26751302E+01					
	0.37695923E+01	-0.59256858E-03	-0.21359336E-06	0.13644331E-08	-0.63575666E-12		
	0.35908836E+04	0.78130486E+00					
END							

Figure V. 6 : Représentation du fichier d'entrée des données thermodynamiques (Giancarlo Sorrentino, 2012)

Le fichier de transport comporte des données sur la diffusion des espèces considérées dans le mécanisme. Souvent, ce troisième fichier est inexistant car dans la plupart des applications de

combustion, comme les tubes à choc, les taux de réactions sont supposés être cinétiquement contrôlés puisque il s'agit souvent de réactifs pré-mélangés et la combustion est supposée se produire d'une façon homogène. Par conséquent, plusieurs modèles publiés excluent la base de données de transport. Cependant, les processus cinétiques et les processus de transport contrôlent le taux de réaction dans le cas des flammes de diffusion laminaires.

Les propriétés de transport sont nécessaires pour toutes les espèces du modèle si l'on s'intéresse aux vitesses de flammes laminaires.

5.3 Mécanisme squelette de Chang (BT et HT)

Ce modèle est développé principalement pour une optimisation du temps de calcul, il contient 41 espèces et 141 réactions. Sa plage de température va de 550 à 1800K, la plage de pression est de $P = 1$ à 80 bar et la plage de richesse est comprise entre 0.5 et 2.0. (Chang et al, 2013).

5.4 Mécanisme de Honnet (BT et HT)

Ce mécanisme est une extension du mécanisme Aachen. Ce schéma compte 900 réactions et 122 espèces. La plage de validité de la richesse est comprise entre 0.8 et 1.4, la plage de température va de 550 à 1200 K.

5.5 Mécanisme de Dagaut (HT)

Ce schéma est développé par le groupe de Cathonnet et Dagaut d'Orléans (P. Dagaut, Reuillon, & Cathonnet, 1994). Ce dernier contient 209 espèces et 1673 réactions. Ils ont également développé une grande variété de mécanismes cinétiques, y compris un pour le n-hexa-décane. La plupart de ces mécanismes ont été testés initialement au moyen de comparaisons avec des résultats expérimentaux, principalement dans les régimes de hautes températures (Philippe Dagaut & Cathonnet, 2006).

5.6 Mécanisme de (Sarathy et al., 2011) (BT et HT)

Le mécanisme est complet et détaillé. Il contient environ 7200 espèces et 31400 réactions (Sarathy et al., 2011). Il est utilisé pour une large gamme d'alcanes, souvent sous une forme réduite pour optimiser les temps de calcul. Il a déjà été validé et utilisé pour l'oxydation du 2-methylalcane et des n-alcanes pour des chaînes inférieures à 20 atomes de carbones (C_{20}), et est principalement utilisé pour le 2-methylalcane (Sarathy et al., 2011). Ce mécanisme détaillé présente un bon accord avec diverses données expérimentales sur une large gamme de températures de 500 à 1200 °C et pour des richesses comprises entre 0.6 et 1.8 (Chemical kinetic mechanisms web page, 2016). Il a été utilisé dans ce travail pour l'oxydation du n-décane.

6 Cinétique de l'oxydation du $C_{10}H_{22}$ à travers les 4 schémas

Dans ces études de cinétique, on s'intéresse aux caractéristiques temporelles (délais d'allumage) et thermodynamiques (pression maximale et température maximale).

De plus, pour certains schémas qui contiennent les données de transport (Chang et Honnet), on regardera l'effet de la richesse et de la température sur les vitesses de flamme laminaires.

Selon l'étude, deux types de réacteurs seront donc considérés : SENKIN pour les délais d'allumages, température et pression maximales de combustion et PREMIX pour les vitesses de flammes laminaires.¹

6.1 Effet de la richesse sur l'oxydation du n-décane à 1000 K

Les simulations sont faites dans un modèle de réacteur fermé homogène (Closed Homogeneous Batch Reactor : SENKIN). Les résultats des simulations, en opérant à une température initiale de 1000 K, sont représentés sur la *Figure V. 7* qui montre les délais d'allumage en fonction de la richesse et sur la *Figure V. 8* qui montre les pressions et les températures adiabatiques maximales de combustion également en fonction de la richesse des mélanges.

Le choix de cette température se justifie pour les raisons suivantes : Cette température est suffisamment élevée pour donner des délais d'allumage de même ordre de grandeur que celles obtenues dans nos expériences. De plus elle est compatible avec les plages de températures des 4 schémas.

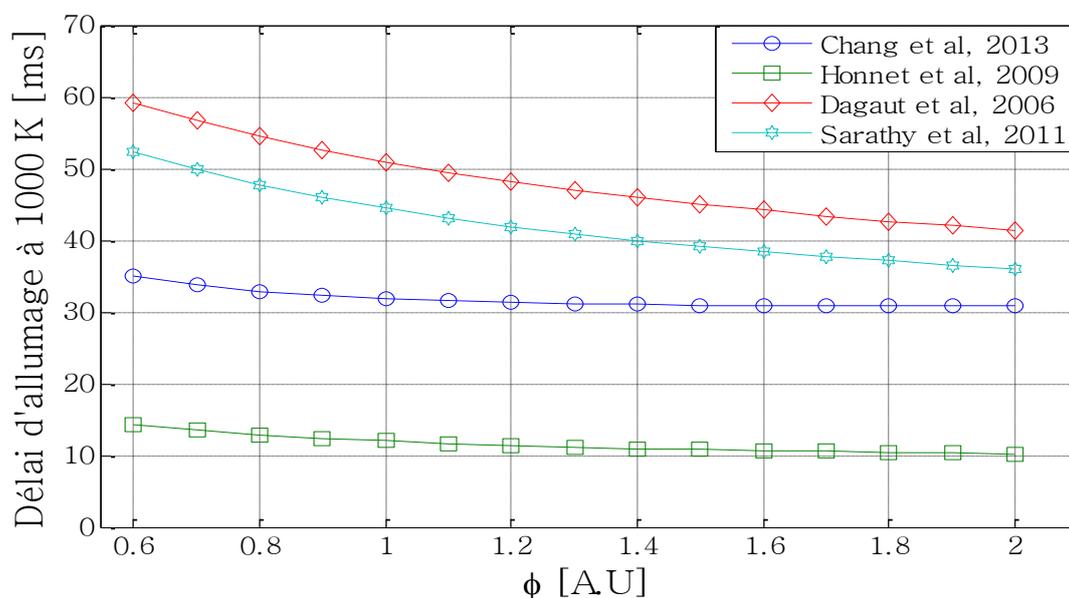


Figure V. 7 : Délais d'allumage en fonction de la richesse et du type du schéma utilisé à $T_0=1000$ K.

¹ La différence entre ces modèles cinétiques conçus pour le n-décane présentera certainement des profils d'espèces différents d'un modèle à l'autre, ces derniers ne seront pas présentés ici.

Les délais d'allumages calculés en 0D présentent des différences plus au moins flagrantes avec des tendances similaires en présentant une décroissance au fur et à mesure que la richesse augmente, chose qui souligne une contradiction avec nos mesures expérimentales qui présentent des délais d'allumages plus faibles vers la stœchiométrie. Cela peut s'expliquer par la physique d'amorçage qui est différente.

Dans le cas des simulations SENKIN, l'inflammation n'intègre pas les phénomènes de transports spatiaux comme le cas des expériences. De plus le niveau de température initiale n'est pas le même. Par ailleurs l'étape de claquage n'est pas prise en compte dans les modèles de cinétique chimique.

La différence entre les valeurs données par chaque mécanisme peut s'expliquer par la réduction appliquée au modèle cinétique du n-décane (Honnet : mécanisme de taille réduite et et Chang de taille extra réduite (squelettique)). Rajoutons aussi que le mécanisme cinétique de Dagaut est un mécanisme pour les hautes températures, ce qui explique les valeurs plus au moins importantes de ce modèle.

Cependant, les caractéristiques thermodynamiques de combustion sont relativement semblables pour les trois mécanismes de Honnet, Dagaut et Sarathy. Le mécanisme de Chang présente une petite différence par rapport aux autres. Cela est certainement dû à la taille extra-réduite du modèle. Globalement, on retrouve un parfait accord sur les caractéristiques thermodynamiques finales de combustion, en termes de température maximale et de pression maximale adiabatique, bien qu'une divergence en termes de délai d'allumage ait été soulignée précédemment. Il est bon à savoir que le schéma de Dagaut est un schéma pour de hautes températures et qu'il est donc différent des autres qui simulent sur les deux plages de températures BT et HT. La tendance de la figure donnant la pression en fonction de la richesse reproduit bien d'un point de vue qualitatif les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre III (Figure III. 34). On peut observer que dans le cas des simulations Chemkin le maximum de pression s'obtient vers la richesse de 1,6 contre environ 1,3 pour nos expériences.

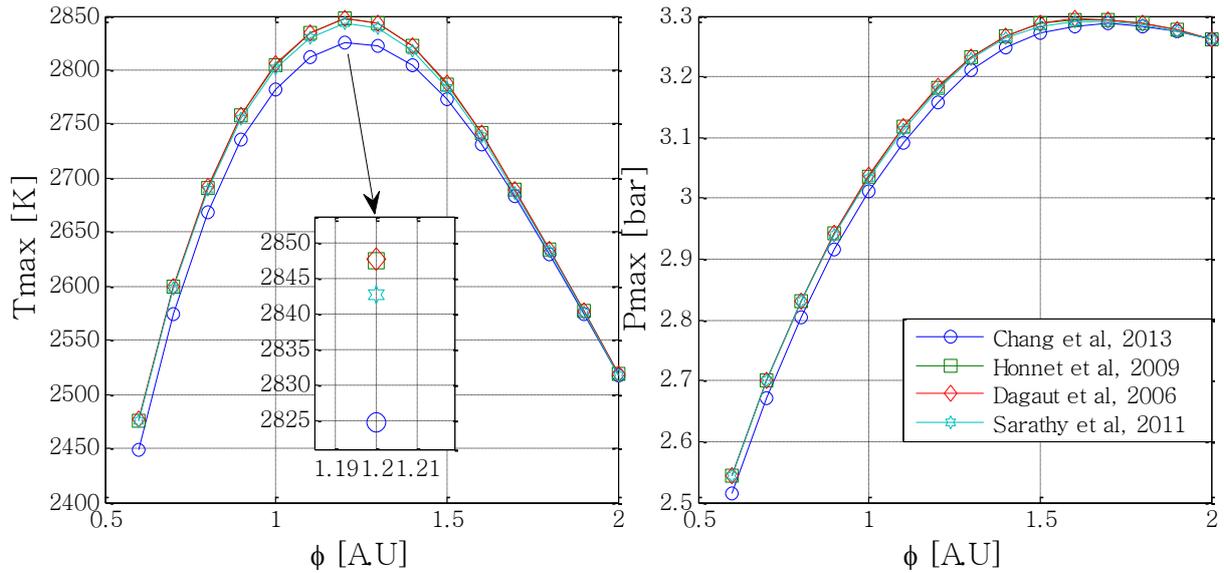


Figure V. 8 : Valeurs des températures maximales et des pressions maximales lors de l'oxydation du n-décane en fonction du schéma cinétique.

6.2 Effet de la richesse sur la vitesse de flamme laminaire

Pour rester dans les mêmes conditions, on considère les deux mécanismes de Chang et Honnet pour lesquels nous avons les fichiers de données de transport utilisés dans le module Premix pour le calcul des vitesses de flammes. Notons que ces deux mécanismes s'appliquent aux régimes de basse température et de haute température.

La Figure V. 9 montre l'effet de la richesse sur la vitesse de flamme laminaire. A 500 K, les valeurs de vitesses de flamme laminaire données par le mécanisme de Chang sont supérieures à celles du mécanisme de Honnet. A la richesse $\phi = 1.1$, où l'on enregistre la valeur maximale de SL, on remarque une différence de 20 cm/s si l'on compare entre les deux modèles.

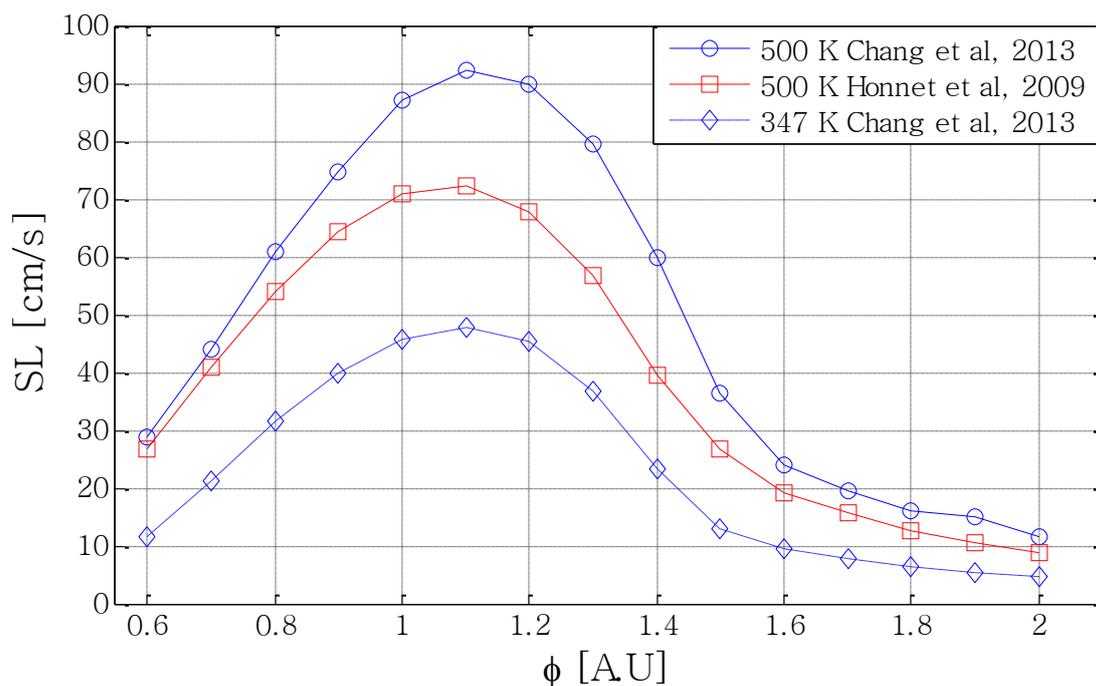


Figure V. 9 : Vitesse de flamme laminaire en fonction de la richesse

L'effet de la température est aussi étudié en considérant le mécanisme extra-réduit de Chang. La diminution de la température initiale affaiblit la valeur de la vitesse de flamme laminaire. Pour une chute en température de 153 K, on a une réduction de SL d'environ 44 cm/s. L'effet inverse est constaté par rapport à la pression, l'augmentation de la pression initiale diminue la valeur de la vitesse de flamme laminaire.

Il sera intéressant de compléter ces simulations par d'autres calculs à travers des schémas cinétiques de plusieurs écoles, pour comparer et montrer les différences existantes et surtout essayer d'expliquer la cause de certaines divergences (Délais d'allumage, Vitesse de flamme, profils d'espèces...).²

7 Influence de la vapeur d'eau à travers la cinétique chimique du n-décane

7.1 Effet sur les délais d'allumage ($T_0=1000\text{ K}$)

La Figure V. 10 montre l'effet de la vapeur d'eau sur les délais d'allumage en fonction de chaque mécanisme cinétique utilisé pour l'oxydation du n-décane.

² Le mécanisme de Dagaut est un mécanisme à haute température valable à partir de 800 K, il ne permet donc pas de faire une comparaison avec les simulations à basse température. Le mécanisme de Sarathy contient énormément d'espèces et de réactions et les simulations avec CHEMKIN-PRO ne convergent pas.

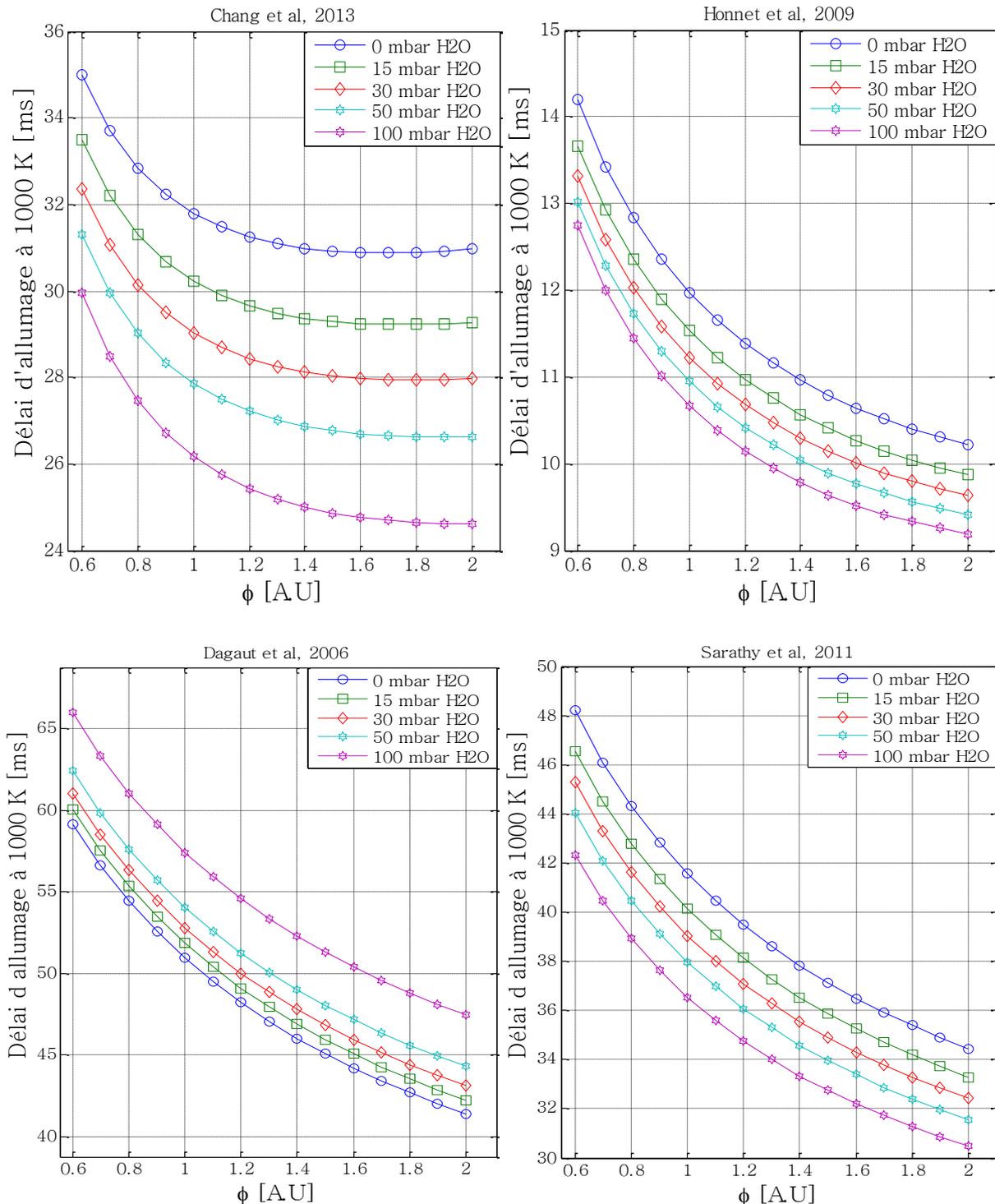


Figure V. 10 : Effet de la vapeur d'eau sur les délais d'allumage en considérant les 4 schémas cinétiques d'oxydation du n-décane.

Dans toutes les simulations avec les mécanismes considérés, on a opéré à température initiale de 1000 K et pression de un bar. La richesse est maintenue constante à 1,1 en considérant l'ajout d'additifs. Les résultats présentés précédemment montre un effet accélérateur à l'allumage, chose qui peut être physiquement expliquée par la cinétique de décomposition de la molécule d'eau à cette température pour créer de l'oxydant O₂ et différents radicaux, principalement OH*.

Il est intéressant de noter que le mécanisme de Dagaut présente un comportement inverse vis-à-vis de la vapeur d'eau comme additif si on compare aux autres cas. Celle-ci retarde les délais d'inflammation.

7.2 Effet sur la vitesse de flamme (500 K)

L'effet de la vapeur d'eau sur une autre grandeur fondamentale de combustion a été étudié, à savoir la vitesse fondamentale de flamme. Pour cela, on considère les deux mécanismes de Chang et de Honnet. La *Figure V. 11* présente l'effet de la vapeur d'eau sur la vitesse de flamme laminaire en fonction de la richesse.

Les valeurs de SL calculées avec le mécanisme extra-réduit de Chang sont largement dépendantes de la présence ou non de vapeur d'eau. Au fur et à mesure que la concentration de H₂O augmente, la vitesse de flamme laminaire diminue. Avec le mécanisme de Honnet, on remarque un effet d'augmentation sur la valeur de SL obtenue avec la configuration 15 mbar en H₂O vers la stœchiométrie. Puis, au fur et à mesure que la concentration de la vapeur d'eau augmente, on observe le même effet que celui observé avec le mécanisme de Chang.

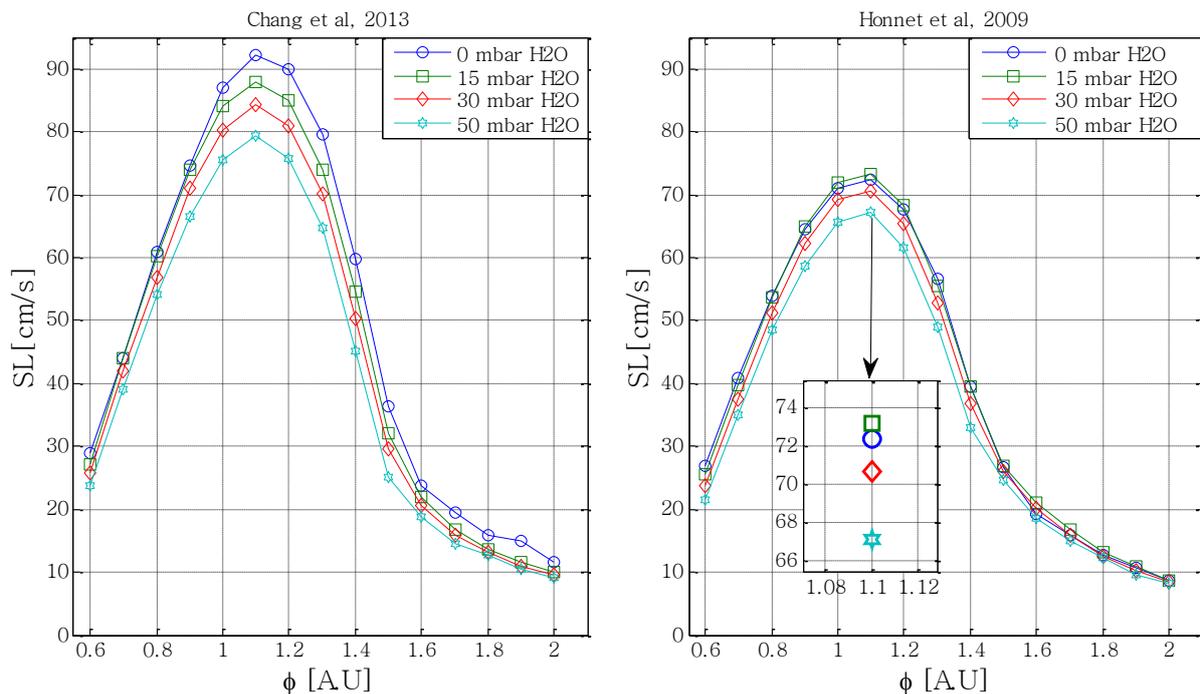


Figure V. 11 : Effet de la vapeur d'eau sur la vitesse de flamme laminaire

7.3 Effet sur la pression et la température maximale

La *Figure V. 12* montre l'influence de la vapeur d'eau sur les caractéristiques adiabatiques maximales de la flamme, (T_{max} et P_{max}) pour chaque mécanisme cinétique.

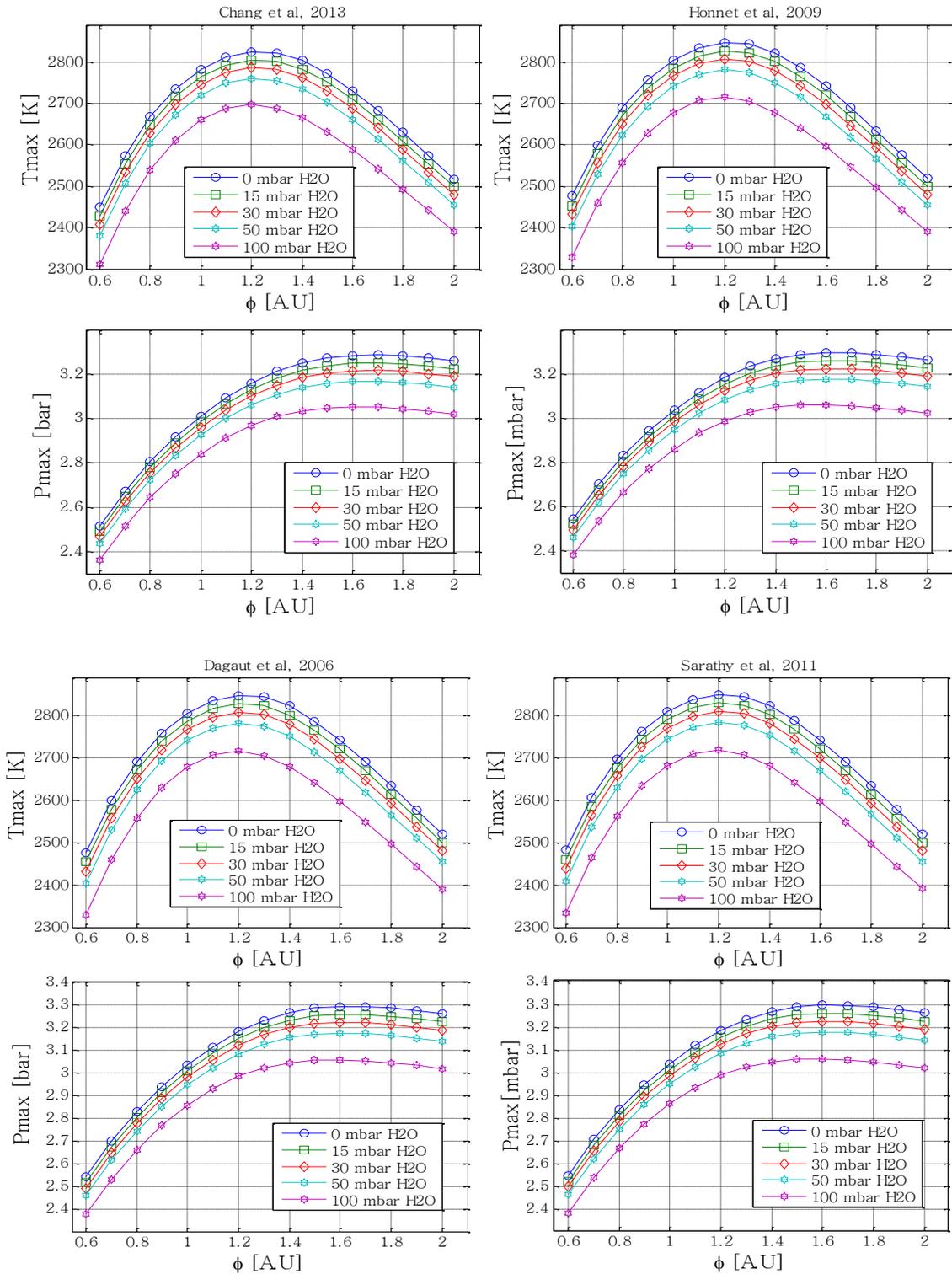


Figure V. 12 : Effet de la vapeur d'eau sur la pression maximale et la température maximale de combustion

Les résultats sont pratiquement similaires pour les 4 mécanismes cinétiques, le fait d'ajouter de la vapeur d'eau diminue la température adiabatique de la flamme ainsi que la pression.

Ce concept d'additif existe déjà dans les turbines à gaz et les réacteurs de propulsion pour diminuer la température des flammes et la formation de certains polluants, entre autre le CO et les NO_x (Jones, 1978).

8 Effet de l'argon et effet combiné avec la vapeur d'eau

On rappelle que les mécanismes présentés précédemment ne comportent pas d'argon sauf celui de Sarathy. Ce dernier mécanisme est donc utilisé ici pour montrer l'effet de l'argon combiné avec de la vapeur d'eau sur les délais d'allumage et les caractéristiques adiabatiques de combustions (T_{max} et P_{max}).

8.1 Effet sur les délais d'allumage

La Figure V. 13 présente l'effet de l'argon et de l'argon combiné à de la vapeur d'eau vis-à-vis des délais d'allumage en fonction de la richesse. Il est impératif de remarquer la présence d'un effet inverse entre la vapeur d'eau et l'argon. D'un côté l'argon retarde les délais d'allumage (chose déjà vue au chapitre VI, étude avec 0.5 et 1.5 % argon), et de l'autre la vapeur d'eau accélère la combustion.

Rappelons que ce constat est fait pour une température initiale de 1000 K.

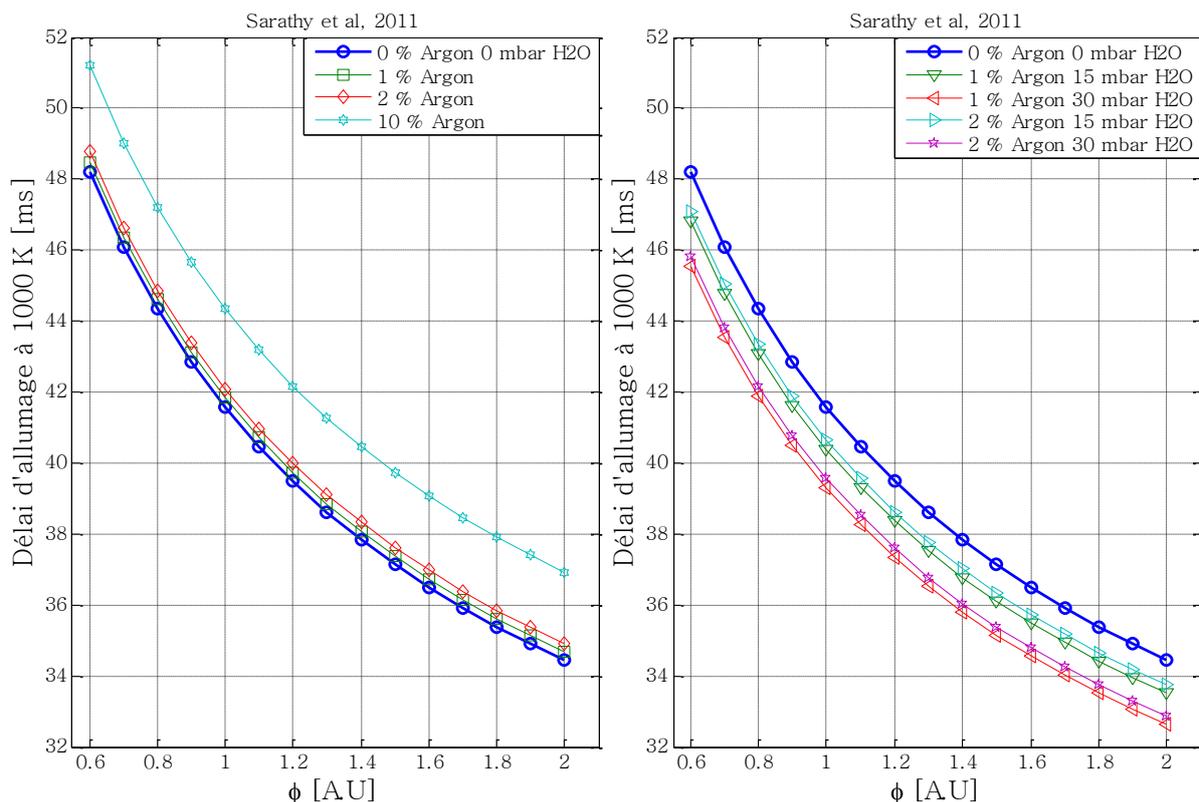


Figure V. 13 : Effet de l'argon et effet combiné avec de la vapeur d'eau

Ces deux agents peuvent servir de systèmes de contrôle de la combustion si on les combine pour pouvoir accélérer ou retarder les réactions selon les besoins. Ce procédé aura forcément une influence sur la production ou la diminution de certains produits polluants. Ce sujet peut faire l'objet d'une investigation en s'intéressant aux profils des espèces dans chaque

configuration simulée avec de l'argon et de la vapeur d'eau. Une étude expérimentale sera également nécessaire pour valider ces simulations.

8.2 Effets combinés sur la pression et la température maximale

En regardant du point de vue thermodynamique l'influence de l'argon et de la vapeur d'eau, on constate que la présence de ces additifs affaiblit la température adiabatique et la pression maximale de combustion. Cet effet est beaucoup plus flagrant pour la vapeur d'eau.

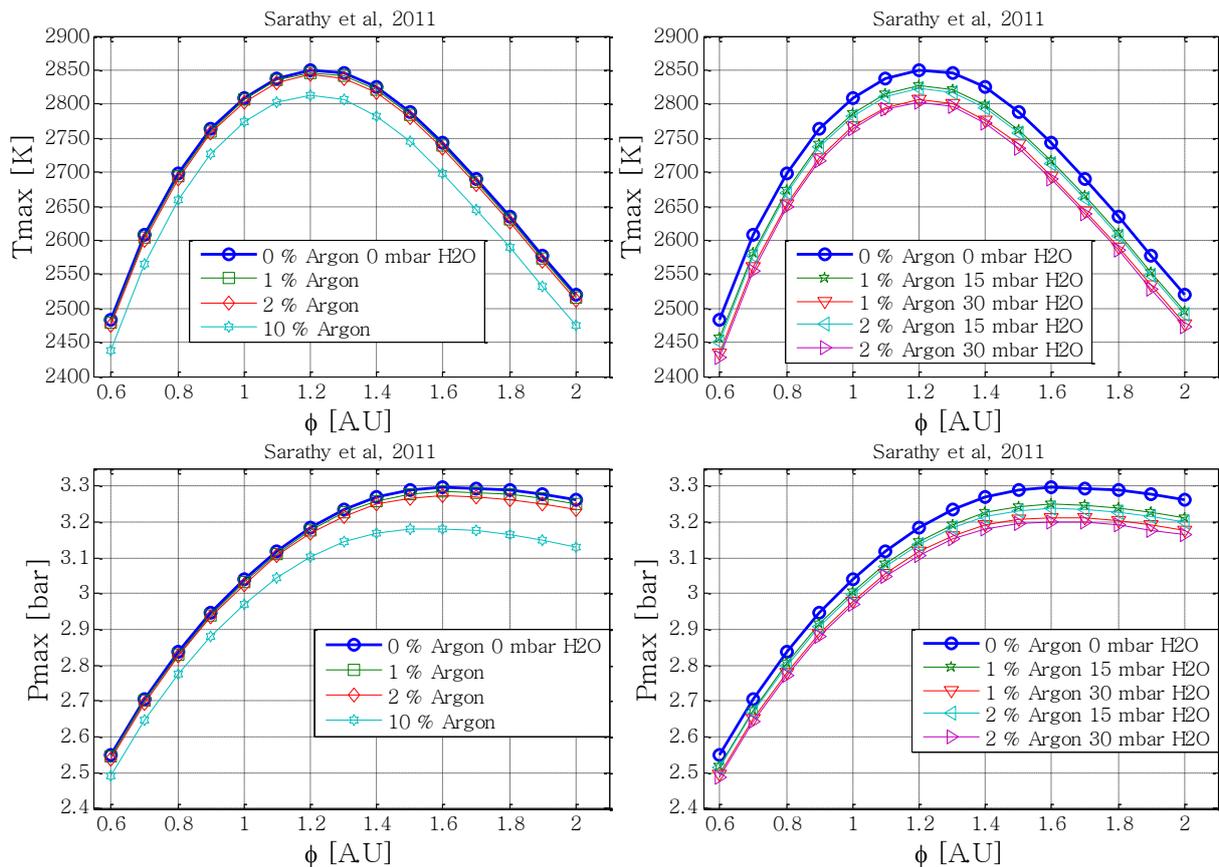


Figure V. 14 : Effet de l'argon et effet combiné avec de la vapeur d'eau sur la température maximale et la pression maximale

La Figure V. 14 nous renseigne également sur le taux d'efficacité de chaque agent. En effet, on constate que 10 % d'argon est équivalent approximativement à 5 % de vapeur d'eau. Cette comparaison est faite avec la Figure V. 12 présentant le mécanisme de Sarathy.

9 Conclusion

Ce dernier chapitre complète les travaux effectués dans le chapitre précédent (Cf : chapitre VI) en faisant apparaître les différentes influences des agents additifs, à savoir l'argon et la vapeur d'eau H_2O , seul ou combinés ensemble dans le même mélange réactif, ceci en considérant seulement la cinétique d'oxydation du combustible n-décane. Cette étude est faite en utilisant différentes cinétiques chimiques présentes dans 4 mécanismes qui viennent de différentes écoles : le mécanisme de Chang extra-réduit, le mécanisme réduit de Honnet (Aachen modifié), le mécanisme de Dagaut et celui de Sarathy.

Les simulations en utilisant le réacteur SENKIN montrent une différence entre les valeurs des délais d'allumage données pour chaque mécanisme. Un autre constat est que les délais d'allumage calculés par simulations présentent des tendances différentes (Courbe en U non visible avec Chemkin) par rapport aux délais déterminés expérimentalement (Cf : Chapitre III). Les valeurs de vitesses de flamme laminaire ont été comparées pour les deux schémas cinétiques de Chang et Honnet et une différence de 20 cm/s a été constatée vers la zone de proche stœchiométrie.

L'influence de la vapeur d'eau est examinée sur chaque schéma cinétique, le constat est que l'augmentation de la quantité de vapeur d'eau amoindrit davantage les valeurs des délais d'allumage. Ce constat n'est cependant pas valable pour le mécanisme de Dagaut où l'on observe qu'une augmentation de la pression de vapeur d'eau retarde les allumages. L'inverse est constaté avec l'argon qui fait accroître les délais d'allumage, chose constatée avec le schéma cinétique de Sarathy qui comporte l'argon.

D'un point de vue général, la vapeur d'eau affaiblit les vitesses de flamme laminaire, à part pour le cas avec le mécanisme de Honnet à 15 mbar d' H_2O où l'on trouve une surélévation modérée de la vitesse de flamme laminaire comparé à l'état de référence sans additif.

Les additifs comme l'argon et la vapeur d'eau font baisser les températures et les pressions de combustion maximales dans tous les cas considérés.

Certainement et comme souligné précédemment, ces effets auront une influence sur les profils des espèces et sur le taux de production et la nature des produits de combustion. Ce fait peut être démontré expérimentalement par des analyses de prélèvements examinées en chromatographie couplée à la spectrométrie de masse.

Bibliographie (V)

- Biet, J., Hakka, M. H., Warth, V., Glaude, P. A., & Battin-Leclerc, F. (2008). Experimental and modeling study of the low-temperature oxidation of large alkanes. *Energy and Fuels*, 22(4), 2258–2269. <http://doi.org/10.1021/ef8000746>
- Chang et al. (2013). Development of a new skeletal mechanism for n-decane oxidation under engine-relevant conditions based on a decoupling methodology. *Combustion and Flame*, 160(8), 1315–1332. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2013.02.017>
- Chemical kinetic mechanisms web page. (2016). Combustion. Retrieved from <https://combustion.llnl.gov/>
- Dagaut, P., & Cathonnet, M. (2006). The ignition, oxidation, and combustion of kerosene: A review of experimental and kinetic modeling. *Progress in Energy and Combustion Science*, 32(1), 48–92. <http://doi.org/10.1016/j.peccs.2005.10.003>
- Dagaut, P., Reuillon, M., & Cathonnet, M. (1994). High Pressure Oxidation of Liquid Fuels from Low to High Temperature. 2. Mixtures of n-Heptane and iso-Octane. *Combustion Science and Technology*, 103(1–6), 315–336. <http://doi.org/10.1080/00102209408907701>
- Design, R. Which CHEMKIN is Right for You ?, Writing (2014). [http://doi.org/Phone: 858-550-1920](http://doi.org/Phone:858-550-1920)
- Frédéric BUDA. (2006). *Mecanismes cinétiques pour l'amélioration de la sécurité des procédés d'oxydation des hydrocarbures*. INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE ECOLE DOCTORALE RP2E E.N.S.I.C. – NANCY.
- Giancarlo Sorrentino. (2012). PACKAGE FOR THE ANALYSIS OF GAS-PHASE CHEMICAL AND PLASMA KINETICS. Retrieved from g.sorrentino@unina.it
- HELENA P. RAMIREZ L. (2012). *Etude expérimentale et modélisation cinétique de l'oxydation, l'auto-inflammation et la combustion de carburants Diesel et bio-Diesel*. UNIVERSITE D'ORLEANS.
- Honnet, S., Seshadri, K., Niemann, U., & Peters, N. (2009). A surrogate fuel for kerosene. *Proceedings of the Combustion Institute*, 32 I(1), 485–492. <http://doi.org/10.1016/j.proci.2008.06.218>
- J. F. Griffiths & J. A. Barnard. (1995). *Flame and Combustion. Journal of Chemical Information and Modeling* (3rd ed., Vol. 3). <http://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.004>
- Jones, R. E. (1978). Gas turbine engine emissions-Problems, progress and future. *Progress in Energy and Combustion Science*, 4(2), 73–113. [http://doi.org/10.1016/0360-1285\(78\)90006-0](http://doi.org/10.1016/0360-1285(78)90006-0)
- Liu, Z. (2010). *Chemical Kinetics Modelling Study on Fuel Autoignition in Internal Combustion Engines*. Loughborough University. Retrieved from <http://medcontent.metapress.com/index/A65RM03P4874243N.pdf>
- Pauwels, J. . (2010). Cinétique chimique de combustion. In *Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère PC2A - UMR 8522 CNRS/Lille1*. Ecole de Combustion 2010 Université de Corte - CNRS - GFC Porticcio, Porticcio, 28 mai - 3 juin 2010. Retrieved from [http://forefire.univ-corse.fr/ecoleComb2010/01062010-0900-Cin%C3%A9tique chimique.pdf](http://forefire.univ-corse.fr/ecoleComb2010/01062010-0900-Cin%C3%A9tique%20chimique.pdf)
- R. J. Kee et al. (2000). *SURFACE CHEMKIN: A Software Package For The Analysis Of Heterogeneous Chemical Kinetics At A Solid-Surface — Gas-Phase Interface*. Chemkin Collection Release 3.6. Retrieved from CHEMKIN@ReactionDesign.com
- Sarathy, S. M., Westbrook, C. K., Mehl, M., Pitz, W. J., Togbe, C., Dagaut, P., ... Lu, T. (2011). Comprehensive chemical kinetic modeling of the oxidation of 2-methylalkanes from C7 to C20. *Combustion and Flame*, 158(12), 2338–2357. <http://doi.org/10.1016/j.combustflame.2011.05.007>
- Warnatz, J. (2000). Hydrocarbon oxidation high-temperature chemistry. *Pure and Applied Chemistry*, 72(11), 2101–2110. <http://doi.org/10.1351/pac200072112101>
- Zeng, M., Yuan, W., Wang, Y., Zhou, W., Zhang, L., Qi, F., & Li, Y. (2014). Experimental and kinetic modeling study of pyrolysis and oxidation of n-decane. *Combustion and Flame*, 161(7), 1701–

Table des figures (V)

<i>Figure V. 1: (A) Oxydation d'un alcane à basse température (A) et dans le régime intermédiaire (B). Oxydation d'un alcane à basse température et haute température.(Frédéric BUDA, 2006).</i>	256
<i>Figure V. 2 : Nombre d'espèces et de réactions d'un alcane pour une oxydation à basse température en fonction du nombre d'atomes de carbone de la chaîne moléculaire (Warnatz, 2000).</i>	257
<i>Figure V. 3: Algorithme de génération exhaustive du mécanisme cinétique primaire.(Frédéric BUDA, 2006).</i>	258
<i>Figure V. 4 : Structure du code Chemkin-Pro(R. J. Kee et al, 2000)</i>	260
<i>Figure V. 5 : Représentation du fichier d'entrée des données cinétiques (Giancarlo Sorrentino, 2012)</i>	261
<i>Figure V. 6: Représentation du fichier d'entrée des données thermodynamiques (Giancarlo Sorrentino, 2012).</i>	261
<i>Figure V. 7 : Délais d'allumage en fonction de la richesse et du type du schéma utilisé à $T_0=1000$ K.</i>	263
<i>Figure V. 8 : Valeurs des températures maximales et des pressions maximales lors de l'oxydation du n-décane en fonction du schéma cinétique.</i>	265
<i>Figure V. 9 : Vitesse de flamme laminaire en fonction de la richesse</i>	266
<i>Figure V. 10 : Effet de la vapeur d'eau sur les délais d'allumage en considérant les 4 schémas cinétiques d'oxydation du n-décane.</i>	267
<i>Figure V. 11 : Effet de la vapeur d'eau sur la vitesse de flamme laminaire</i>	268
<i>Figure V. 12 : Effet de la vapeur d'eau sur la pression maximale et la température maximale de combustion</i>	269
<i>Figure V. 13 : Effet de l'argon et effet combiné avec de la vapeur d'eau</i>	270
<i>Figure V. 14 : Effet de l'argon et effet combiné avec de la vapeur d'eau sur la température maximale et la pression maximale</i>	271

Table des tableaux (V)

<i>Tableau V. 1: Catégories de modèles de schémas cinétiques. (Zheng et al., 2004).</i>	258
<i>Tableau V. 2: Schémas d'oxydation du n-décane (HELENA P. RAMIREZ L, 2012).</i>	259

CHAPITRE VI

CONCLUSION

CONCLUSION

L'applicabilité des systèmes d'allumage par claquage laser est démontrée dans cette thèse. Cette étude nous a permis de montrer l'effet des paramètres intrinsèques au mélange (pureté, additifs, richesses...) ou extérieur (réglage du laser, longueur focale..) sur les étapes de claquage menant (ou ne menant pas) à l'apparition d'une combustion complète du mélange.

Les expériences menées dans cette thèse soulignent plusieurs constats à travers les différentes interprétations des résultats acquis. On a vu que le taux d'absorption d'énergie en provenance du laser dépend de la composition chimique du mélange et de sa pression, i.e. les seuils d'irradiance de claquage sont différents en fonction de ces deux paramètres. Ces seuils ont été déterminés pour plusieurs mélanges, on constate que le claquage est beaucoup plus facile et efficace dans les produits de combustion, ce qui peut nous orienter vers des mélanges dilués avec l'EGR pour améliorer l'allumage (probabilités d'allumage).

Les probabilités de claquage et d'allumage ont été étudiées en les paramétrant selon une fonction de distribution logarithmique (Loi de Galton) en fonction de l'énergie incidente et/ou de l'énergie absorbée, ceci pour tous les mélanges considérés durant les expériences. Ces probabilités montrent bien l'effet de la richesse, de la pression ou encore l'effet de la longueur focale sur les probabilités d'allumages. On a ainsi caractérisé la sensibilité des mélanges à l'allumage laser au travers des valeurs d'E50% (énergie incidente) et d'EA50% (énergie absorbée).

Les valeurs de la MIE ont été recherchées en utilisant deux lentilles de focales : 100 mm et 150 mm. Les résultats montrent une différence certaine sur la valeur de la MIE en fonction de la focale, celle-ci diminue nettement avec les courtes focales. L'effet des impuretés est aussi mis en évidence en comparant nos résultats avec un décane $C_{10}H_{22}$ à 99% de pureté dans l'air synthétique aux résultats de Strozzi et al. (2014) qui ont opéré avec un $C_{10}H_{22}$ à 94% de pureté dans l'air ambiant. Ces impuretés font augmenter la valeur de la MIE tout en jouant un rôle de promoteur d'allumage vers les basses richesses et inhibiteur vers les hautes richesses. Les seuils d'allumage en terme d'énergie absorbée ont été étudiés pour quatre pressions en considérant des mélanges pauvre ou proche de la stœchiométrie ceci avec une longueur focale de 100 mm. Les seuils diminuent au fur et à mesure qu'on s'approche de la stœchiométrie, les claquages seuls (allumages non réussis) n'opèrent plus à la stœchiométrie, ces derniers présentent une densité forte avec les mélanges pauvres.

Les signaux de pression pour les cas d'allumages réussis ont été considérés pour en faire sortir les différentes caractéristiques cinétiques à l'allumage (ex : délais d'allumage) et durant la combustion (ex : P_{max} et $(dP/dt)_{max}$). Les résultats ont montré des délais d'allumage faibles à la stœchiométrie, mais ces derniers augmentent au fur et à mesure que l'on se rapproche des limites d'inflammabilités. L'effet de l'énergie absorbée sur les délais d'allumage a également été mis en évidence par des méthodes optiques et physiques (pression). Ces temps diminuent en suivant une courbe exponentielle en fonction de l'énergie laser déposée dans le mélange réactif. Le même constat a été observé avec les signaux de photodiode qui présentent des valeurs plus ou moins faibles que celles enregistrées avec les signaux de pression à la stœchiométrie. Une différence de 2 ms a été remarquée.

L'ensemble des signaux de pression et de gradient de pression a été filtré et utilisé dans le modèle de Bradley pour estimer la vitesse de flamme laminaire. Les valeurs calculées pour une pression de 1 bar approchent bien les résultats des simulations numériques obtenues avec PREMIX 1D mais aussi les résultats de Kumar et al. (2007) qui ont opéré à une température proche de la nôtre. Les valeurs estimées de la vitesse de flamme laminaire diminuent avec l'augmentation de la pression, chose également observée dans plusieurs études antérieures.

Des études spectroscopiques du plasma et de la flamme ont été réalisées pour détecter et identifier les espèces excitées, les radicaux amorceurs et les espèces émettrices formant la flamme. La température électronique a été estimée en se basant sur les raies de l'azote (NI) dans le proche infrarouge. Les délais d'induction chimique ont été aussi estimés à travers les enregistrements spectroscopiques en fonction du temps pour chaque allumage, en considérant 3 radicaux OH^* , CH^* et C_2^* . On a constaté que dans le cas des mélange pauvres, le signal de OH^* devance l'apparition des autres radicaux. À la stœchiométrie, le OH^* et le C_2^* ont le même temps d'apparition, et vers les zone riches le radical C_2^* devance les autres, ce qui explique que la cinétique chimique opère différemment en considérant les mélanges pauvres, stœchiométriques et riches. Ce constat est également fait sur l'intensité d'émission de la flamme captée par la photodiode et le spectromètre en fonction de la richesse.

Les effets de la pression et de la richesse ont été aussi brièvement considérés en analysant quelques visualisations Schlieren captées par caméra rapide. La mesure de la vitesse de flamme apparente, i.e. (dR_f/dt) , a été réalisée en suivant le développement du lobe de flamme supérieure. Pour une richesse proche de un, on trouve des valeurs plus importantes en termes de vitesse apparente. Les effets de plusieurs autres paramètres ont été étudiés, l'effet de la

richesse, de la pression et de l'énergie déposée sur le volume et la forme géométrique des lobes primaires captés sur le temps 1.5 ms.

D'autres expériences ont été effectuées pour examiner l'influence de l'argon et de la vapeur d'eau en procédant à des mesures des signaux photodiode. Le constat est que l'argon retarde les délais de claquage, chose qui se répercute sur les délais d'allumage en les retardant.

La même approche stochastique a été considérée sur les deux combustibles $C_{10}H_{22}$ et C_2H_6O . On a trouvé que la combinaison des deux additifs $Ar + H_2O$, chacun en certaines proportions, entraîne une sensibilité beaucoup plus grande à l'allumage. Ce constat peut être fait dans la configuration (30 mbar $H_2O + 1\%$ Argon) qui augmente les probabilités d'allumage dans le cas des deux combustibles $C_{10}H_{22}$ et C_2H_6O . L'effet de la liaison chimique sur deux autres combustibles, à savoir le C_5H_{12} et $C_{10}H_{20}$, a été aussi examiné et comparé avec les deux combustibles n-décane et éthanol en suivant toujours la même démarche stochastique. Ceci nous a permis de mettre en évidence l'effet de la liaison chimique et l'effet de la longueur de la chaîne d'atomes de carbone. Le constat est que les combustibles de chaîne plus courtes avec des liaisons simples, i.e. (C-H), ont des meilleures probabilités d'allumage. Le fait que la même chaîne, ou même une plus petite, se dote d'une liaison hydroxyle (O-H) la rend plus difficile à allumer et au fur et à mesure que la longueur de la chaîne de carbone augmente, les probabilités d'allumage diminuent. La double liaison C=C dans le cas du décène le rend encore plus difficile à allumer si on compare ces probabilités d'allumage aux autres cas. Ces résultats ont été expliqués par l'énergie de dissociation différente d'un cas à un autre (C-H), (O-H), (C=C)...

Les mêmes additifs ont été considérés dans des simulations en 0D (SENKIN) et 1D (PREMIX) à l'aide du code Chemkin-Pro. Ce travail a été réalisé en utilisant 4 mécanismes cinétiques différents. Les simulations sans additifs en considérant juste le $C_{10}H_{22}+O_2+N_2$ offrent des caractéristiques à l'allumage différentes, i.e. les délais d'allumage sont différents d'un schéma cinétique à l'autre, tandis que les caractéristiques adiabatiques finales sont pratiquement les mêmes en termes de paramètres thermodynamiques P_{max} et T_{max} .

Une autre observation concerne les valeurs de vitesses de flamme laminaire en considérant les mécanismes de Honnet et de Chang, une différence de 20 cm/s est constatée vers la zone stoechiométrique pour les mêmes conditions initiales considérées (P_0 et T_0).

L'influence de la vapeur d'eau comme additif a été examinée dans chaque mécanisme cinétique. On a constaté que la présence de la vapeur d'eau affaiblit les valeurs des délais d'allumage dans tous les cas, à part dans le mécanisme de Dagaut où l'inverse est observé, i.e.

les délais d'allumage sont augmentés. Concernant les caractéristiques adiabatiques, la vapeur d'eau les affaiblit, ce qui permet d'abaisser la température de combustion.

On a considéré le mécanisme de Sarathy pour examiner l'influence de l'argon car celui-ci est non-présent comme espèce dans les 3 autres mécanismes. La comparaison entre mécanismes n'a donc pas pu être faite. Comme constaté précédemment, cet agent comme additif retarde les délais d'allumage. La même chose est constatée sur les caractéristiques adiabatiques finales que celle observée avec la vapeur d'eau. L'argon affaiblit les températures maximales et les pressions maximales de combustion, mais son effet est 50 % moins sensible que celui de la vapeur d'eau.

Dans ce travail de thèse, l'allumage du décane avec différents additifs a été étudié de façon assez exhaustive et nous avons ainsi pu construire une base de données expérimentales enrichie par une approche analytique nouvelle, ceci pour le cas du n-décane en combustion dans de l'air synthétique ou avec additifs.

Perspectives

En termes de perspectives nous proposons d'approfondir les points suivants :

- Orientation vers les mélanges pauvres dilués à l'EGR
- Compléter les expérimentations par l'influence de la température
- Expérimenter d'autres configurations géométriques concernant le volume focal
- Procéder à des statistiques sur les visualisations Schlieren par caméra rapide
- Consacrer une étude plus approfondie sur la spectroscopie des claquages et des flammes (mesures de températures et mesures de densités électroniques)
- Etudier plus en détail les effets d'additifs
- Faire des analyses sur les produits de combustion via des prélèvements pour montrer l'effet des additifs sur la nature et les taux de production des espèces finales de combustion
- Compléter par différentes simulations cinétiques 2D et 3D en représentant les profils des espèces concernant les radicaux et les espèces finales

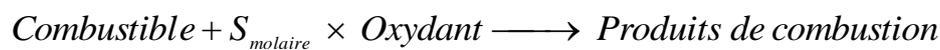
ANNEXE :

Calcul de la richesse :

Les calculs présentés ci-dessous sont destinés à calculer la quantité de carburant à vaporiser dans la chambre de combustion pour atteindre une richesse souhaitée. La réaction de combustion d'un hydrocarbure C_xH_y dans l'air s'écrit :



$$\begin{cases} Fr_{O_2}(\%) : \text{pourcentage d'oxygène de l'air} \\ Fr_{N_2}(\%) : \text{pourcentage d'azote de l'air} \end{cases}$$



$$\left\{ S_{\text{molaire}} = \left(\frac{n(\text{oxydant})}{n(\text{combustible})} \right)_{\text{stoéchiométrie}} = \left(1 + \frac{Fr_{N_2}(\%)}{Fr_{O_2}(\%)} \right) \left(x + \frac{y}{4} \right) = 77.5 \text{ si l'air est } (0.20O_2 + 80N_2) \right.$$

$$\phi = \frac{\frac{n(\text{décane})}{n(\text{air})}}{\left(\frac{n(\text{décane})}{n(\text{air})} \right)_{\text{stoéchiométrie}}} = \frac{\frac{X(\text{décane})}{X(\text{air})}}{\left(\frac{X(\text{décane})}{X(\text{air})} \right)_{\text{stoéchiométrie}}}$$

$$X(\text{décane}) = \phi \left(\frac{X(\text{décane})}{X(\text{air})} \right)_{\text{stoéchiométrie}} \times X(\text{air}) = \frac{\phi}{S_{\text{molaire}}} (1 - X(\text{décane}))$$

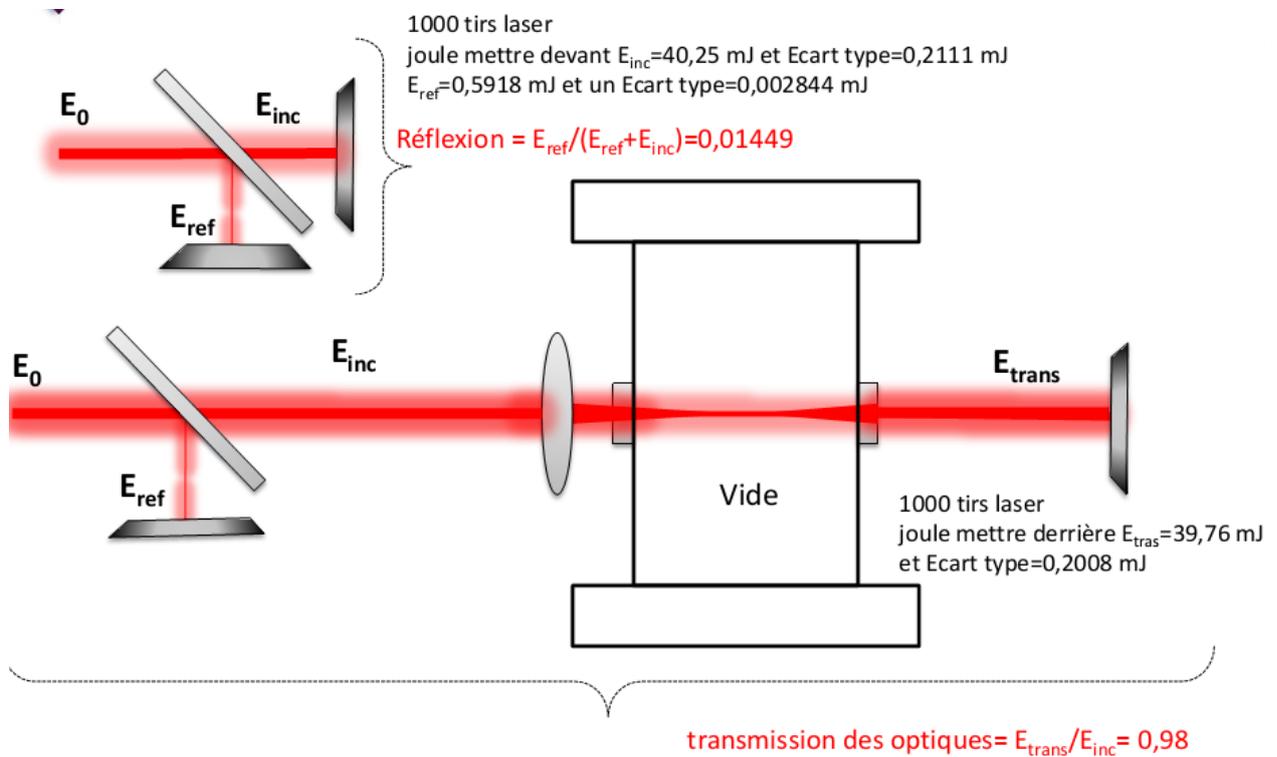
$$X(\text{décane}) = \frac{\phi}{S_{\text{molaire}} + \phi}$$

$$\text{Volume}(\text{décane injecté}) = \frac{n(\text{décane}) M(\text{décane})}{\rho(\text{décane})} = \frac{P(\text{décane}) V(\text{chambre}) M(\text{décane})}{RT(\text{chambre}) \rho(\text{décane})}$$

$$\text{Volume}(\text{décane injecté}) = \frac{\phi}{S_{\text{molaire}} + \phi} \frac{V(\text{chambre}) M(\text{décane})}{RT(\text{chambre}) \rho(\text{décane})} P(\text{totale})$$

Calibration optique du laser :

La calibration optique pour estimer la réflexion de la séparatrice et la transmission des optiques se fait à chaque changement d'énergie incidente. La méthode est de mettre sous vide le réacteur et d'envoyer 1000 tirs laser pour chaque étape décrite dans la figure ci-dessous.



Données expérimentales des capteurs :

Photodiode : temps de réponse 1 ns, fenêtre spectrale : $200 \text{ nm} < \lambda < 1100 \text{ nm}$, $\lambda_{r \text{ max}} = 730 \text{ nm}$.

Capteur de pression : fréquence propre 400 kHz, fréquence d'acquisition 6.25 kHz.

Autres informations : nbl.mokrani@gmail.com.

Nabil MOKRANI

85 a Rue Vauvert, Etage Vigny 18000

Bourges, FRANCE.

0(033)6 29 76 81 21

nbl.mokrani@gmail.com

Permis de conduire



DOCTEUR EN ENERGETIQUE COMBUSTION ET EXPLOSION

FORMATIONS

Depuis 2016	DOCTEUR en COMBUSTION et EXPLOSION. Ecole Doctorale EMSTU Université d'Orléans.
2011-2012	MASTER 2 rech <u>DYNAMIQUE DES FLUIDES ET ENERGETIQUE</u> , Université de Paris sud 11 en partenariat avec l'Université de Paris 6 UPMC.
2010-2011	MASTER 2 pro PHYSIQUE&RAYONNEMENT, Parcours : <u>INGENIERIE DE L'ENERGIE</u> IPN d'Orsay; en partenariat avec LGEP, SUPELEC, INRETS et ENS Cachan; avec mention.
2008-2010	MASTER 2 rech/pro (Equivalence Ingénieur) GENIE MECANIQUE spécialité : <u>ENERGETIQUE&TRANSFERTS THERMIQUES</u> , Université de Tizi-Ouzou UMMTO.
2007-2008	LICENCE en GENIE MECANIQUE, Université UMMTO.
2004-2005	Baccalauréat série sciences et technologie.

TRAVAUX DE RECHERCHE ET PUBLICATIONS DE THESE

Thématique	Sujet de thèse : « Effet des paramètres physiques et d'additifs sur l'allumage du n-décane par claquage laser non résonant » Application à la propulsion.
Responsable Laboratoire d'accueil	Philippe GILLARD (Directeur de thèse) Laboratoire PRISME Université d'Orléans – http : //www.univ-orleans.fr/prisme
Travaux de thèse	Prise en main et amélioration d'une plateforme expérimentale de combustion. Séries de mesures sur l'allumage du n-décane et l'éthanol en explorant l'influence des ajouts d'additifs (humidité H ₂ O et argon Ar) sur la combustion. Participation au cours dispensée par l'école doctorale dans le cadre de la formation des chercheurs. Participation à une école d'été de combustion (organisée par les laboratoires Orléanais (ICARE & PRISME)) 2au 8 juin 2014 ;
2014/2015	Evaluation de mes résultats de recherche par le comité du Labex –CAPRYSSSES 15/04/2014 à l'occasion de la première journée scientifique de la recherche. Série de mesures sur la combustion du décane pour investiguer l'influence de la pression et de la focale dans le cadre de l'allumage Laser. Rédaction d'articles et communications dans des colloques et séminaires nationaux et internationaux + Monitorat d'enseignement 64 h/an; Articles et Communications dans des Conférences internationales à comité de lecture <ol style="list-style-type: none">1. Communication orale dont le thème est « Effect of moisture and argon on laser ignition of ethanol and decane ». Conférence internationale ISHPME pour la prévention des risques d'explosions industrielles ; Bergen, Norvège, 10-14 Juin 2014 ;2. Communication orale pour la première journée scientifique de la recherche organisée par le Labex –CAPRYSSSES 15/04/2014.

- 2014/2015
3. MOKRANI et al, 2015 ; Colloque CAE XII dont le thème est « Influence de l'argon sur la durée de relaxation du plasma induit par claquage laser (application à la combustion) »
 4. MOKRANI et al, 2015; International Conference IKDERS « *Ignition delay and MIE measurement for n-decane/air mixture induced by laser-spark* » 2nd-7th August 2015 LEEDS, U.K.
- Article dans des revues scientifiques à comité de lecture
- 2015
1. Mokrani et al., 2016. Effect of Impurities Argon and Moisture Additives on Laser Ignition of *n*-Decane/Air Mixtures. *Combustion Science and Technology*, 188 (11-12), 1741-1759. <http://doi.org/10.1080/00102202.2016.1211856>
- 2016
2. MOKRANI et al, 2016 Article de la revue Combustion and Flame, « *Laser induced Breakdown in mixtures/ ignition of n-decane; Experimental and Statistical Investigation* » « *Pressure, Mixture composition, and Equivalence ratio Effects* », en soumission.

EXPERIENCES PROFESSIONNELLES

- 2013 2016 DOCTEUR en **COMBUSTION** à l'Université d'Orléans, sujet de thèse « Allumage des hydrocarbures par claquage Laser » application à la propulsion aéronautique + Monitorat de service d'**ENSEIGNEMENT** à l'IUT de Bourges.
- 2012
Durée 6 MOIS
- INGENIEUR DE RECHERCHE ET CONCEPTION au Laboratoire de recherche de Génie électrique de Paris, Ses tutelles principales sont le C.N.R.S. et SUPELEC; les Universités Pierre & Marie Curie Paris 6 et Paris Sud 11.
PROJET: AMELIORATION DU PRODUCTIBLE ELECTRIQUE DES PANNEAUX PHOTOVOLTAIQUES A L'AIDE DE LA REFLEXION PAR MIROIRS (**étude expérimentale électrique et thermique**).
- 2011
Durée 6 MOIS
- INGENIEUR DE RECHERCHE CALCULS SIMULATIONS, (Laboratoire de génie thermique de Brétigny) : poste d'ingénieur de recherche dans le cadre d'un contrat industriel avec la société TERREAL.
PROJET: CARACTERISATION, CALCUL DIMENSIONNEMENT D'UN SYSTEME DE CHAUFFAGE PAR TUILES SOLAIRES (**simulation numérique en domaine thermique**).
- 2010
durée 7 MOIS
- INGENIEUR DE RECHERCHE CALCUL **MAILLAGES** ET **SIMULATIONS CFD**, (Laboratoire de dynamique des fluides UMMTO).
PROJET: SIMULATION NUMERIQUE PAR CODE FLUENT D'UNE COUCHE LIMITE NON CONTROLÉE ET CONTROLÉE SUR UN PROFIL D'AILE NACA 0012 A INCIDENCE 18°. (Simulation Numérique en **Aérodynamique**).
- Projets divers :
- Simulation numérique d'un prototype type tours solaire (FLOWVENT).
 - Dimensionnement thermique d'une tour de calcul et cartes PCB électroniques (FLOWTHERM).
 - Simulation des couches limites décollées (ANSYS-FLUENT).
 - Simulation d'un écoulement autour d'un déflecteur de camion avec un modèle de turbulence (ANSYS-FLUENT).
 - Montage d'un banc expérimental photovoltaïque de caractérisation.
 - Bilan calorifique d'une habitation et isolation thermique.
- AUTRES PROJETS : 2008-2012

Projets :

- Maintenance industrielle :
 - Techniques expérimentales, et détection des défauts.
 - Encrassement des échangeurs et techniques de décrassement.
- Mécanique des moteurs : Etude des systèmes d'injections directes et indirectes.
- Chauffage, climatisation et ventilation : dimensionnement thermique d'une habitation en calculant ses besoins calorifiques hivernaux et estivaux.
- Science des matériaux : traitement thermique et calcul de la dureté d'un matériau traité par différentes méthodes.

COMPETENCES TECHNIQUES ET LINGUISTIQUES

Mécanique	❖ Combustion, cinétique chimique, machines thermiques, turbines, compresseurs, Calcul dimensionnement similitude sur machines tournantes, propulsion. Simulation des écoulements turbulents, Maintenance, contrôle et inspection.
Dynamique	❖ Simulation des écoulements turbulents ($k-\varepsilon$, $k-\omega$, modèle à 5 équation de Reynolds, LES, V2F), Fluides incompressibles et compressibles, calcul des contraintes sur les profils, détermination des champs de vorticit�, de pression et de vitesse, Combustion et cinétique chimique.
T-Exp�rimentale de d�tection	T-Schlieren, PIV, LDV, Ultrason, Cavitation, Fil chaud, Radiographie.
Thermique et Energie	❖ Transfert thermique (�changeurs thermique, les �vaporateurs, les condenseurs), la condensation, l'�bullition, liqu�faction des gaz (colonnes de distillations). Solaire photovolta�que, Pile � combustible et filiere hydrog�ne, Eolien, Pompe � chaleur, g�othermie, Efficacit� �nerg�tique.
Rayonnement	❖ Rayonnement des surfaces noires et grises ainsi que le rayonnement des gaz (milieux semi-transparents).
Logiciels	MATLAB, ANSYS FLUENT, FEMLAB, FLOTHERM, FLOVENT, CATIA, STARCD, LabVIEW 8.5 : (pilotage d'appareils, acquisition des donn�es sur des capteurs (Pression, Temp�rature, Vitesse...), CHEMKIN PRO.
Pilotage, contr�le et acquisition.	Cartes ARDUINO, Cam�ras rapides, Source-m�tres, 2635A, 2400, Multim�tres-Commutateurs 3700, c�blage (Appareils KEITHLEY). Caract�risation des capteurs solaires photovolta�ques sous des conditions ext�rieures diverses.
Syst�mes Bureautique	Windows XP pack (1, 2, 3); /Vista/Seven. Maintenance informatique. Microsoft Office. Excel, Statistica, Lyx.
Langues	Anglais : technique

INFORMATIONS COMPLEMENTAIRES

SST, HBO, Sport (athl tisme en comp tition 14 ans), Lecture, cin ma, voyages, musique, cuisine.

R f rences :

B.ESPAGNON : espagnon@ipno.in2p3.fr + 33(0)1 69 15 71 69 (Prof. des universit s   IPN D'ORSAY)
O.QUEMENER : O.Quemener@iut.univ-evry.fr + 33(0)1 69 47 79 31 (Directeur de Laboratoire de g nie thermique Br tigny)
Frederic MOISY: frederic.moisy@fast.u-psud.fr + 33(0)1 69 15 80 37 (Prof. des universit s fluides et turbulence)
Vincent BOURDIN: vincent.bourdin@limsi.fr + 33(0)1 69 85 80 70 (Ing. CNRS en g nie des proc d s et  nerg tique)
Philippe GILLARD : philippe.gillard@univ-orleans.fr + 33(0)2 48 23 84 72 (Prof. des universit s Combustion et Explosion)

Nabil MOKRANI

Effet des paramètres physiques et d'additifs sur l'allumage du n-décane par claquage laser non résonant

Résumé :

L'allumage par claquage laser non résonant des mélanges réactifs considérés à l'état gazeux et au repos est étudié dans ce travail, principalement avec des mélanges n-décane/air ($C_{10}H_{22}+N_2+O_2$). Ce système est considéré comme étant prometteur dans les différentes stratégies futures concernant les systèmes d'allumages équipant les moteurs à combustion interne. Le plasma d'allumage est généré en focalisant un faisceau laser de haute intensité pendant quelques nanosecondes.

Le laser Nd :YAG opère à 1064 nm, il est choisi comme source laser pour l'ensemble des expériences menées en laboratoire afin de montrer l'effet des paramètres physiques, optiques, thermodynamiques (pression) et chimiques (additifs : H_2O , Ar) sur les caractéristiques de l'allumage. Cette étude met en œuvre une approche statistique sur l'ensemble des expériences en prenant en compte l'ensemble des mesures prises lors de la combustion. Ce manuscrit offre une base de données expérimentale permettant d'appréhender la combustion et la phénoménologie de claquage laser.

Mots clés : Allumage/Claquage laser, Effets des paramètres physiques, Plasma, Influence des additifs Ar et H_2O combustion, $C_{10}H_{22}$, C_2H_6O , C_5H_{12} , $C_{10}H_{20}$, Cinétique chimique et mécanisme d'oxydation de n-décane.

Effect of the physical parameters and additives on ignition of n-decane by non resonant laser breakdown.

Summary :

Ignition by non-resonant laser breakdown of quiescent reactive mixtures was considered in this experimental study working with gaseous state. In this work, we mainly study the ignition of n-decane / air ($C_{10}H_{22} + N_2 + O_2$) mixtures. This system is considered promising in different future strategies regarding ignitions systems for internal combustion engines. The breakdown is generated by focusing a high intensity laser beam for a few nanoseconds using Nd: YAG laser operating at 1064 nm, it is chosen as the laser source for all experiments conducted here.

The experimental plan conducted allows to examine the effect of physical, optical, thermodynamic (pressure) and chemicals (additives: H_2O , Ar) on the characteristics of the laser ignition. This study implements a statistical approach on all the experimental cases taking into account all the measures during breakdown and combustion. This manuscript provides bibliographic basis for understanding combustion and laser breakdown phenomenology.

Keywords : laser Ignition / Breakdown, Effects of physical parameters, Plasma, additives Influence of Ar and H_2O combustion, $C_{10}H_{22}$, C_2H_6O , C_5H_{12} , $C_{10}H_{20}$, Chemical Kinetics and mechanisms of oxidation of n-decane.



Laboratoire PRISME
8 rue Léonard de Vinci
45072 Orléans cedex
France

