HAL
open science

Mesure par radiomètres ICOTOM et validation des flux radiométriques dans un plasma de CO2 pur simulant des conditions d'entrée de type EXOMARS

Mickael Jacquot

To cite this version:

Mickael Jacquot. Mesure par radiomètres ICOTOM et validation des flux radiométriques dans un plasma de CO2 pur simulant des conditions d'entrée de type EXOMARS. Instrumentation et méthodes pour l'astrophysique [astro-ph.IM]. Normandie Université, 2019. Français. NNT : 2019NORMR121 . tel-02509115

HAL Id: tel-02509115

https://theses.hal.science/tel-02509115

Submitted on 16 Mar 2020

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.

Normandie Université

THÈSE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité Physique

Préparée au sein de l'Université de Rouen Normandie

Mesures par radiamètres ICOTOM et validation des flux radiométriques dans un plasma de CO_2 pur simulant des conditions d'entrée de type EXOMARS

Présentée et soutenue par

Mickaël JACQUOT

Thèse soutenue publiquement le 11 Décembre 2019 devant le jury composé de		
Mme Pascale DESGROUX	Directrice de recherche CNRS, UMR 8522 PC2A	Rapportrice
Mme Viviana LAGO	Ingénieur de recherche HDR, UPR 3021 ICARE	Rapportrice
Mme Armelle CESSOU	Directrice de recherche CNRS, UMR 6614 CORIA	Examinatrice
M Arnaud BULTEL	Maître de Conférences HDR, UMR 6614 CORIA	Directeur de thèse

Thèse dirigée par Arnaud BULTEL, laboratoire UMR 6614 CORIA

UNIVERSITÉ DE ROUEN NORMANDIE

ED PSIME

CORIA UMR 6614

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer mes travaux de thèse, en commençant par Pascale Desgroux et Viviana Lago qui ont accepté d'être mes rapportrices et auront apporté des discussions intéressantes lors de leur révision du manuscrit.

Je remercie ensuite Mourad A. Boukhalfa, directeur du CORIA au début de ma thèse, de m'avoir accordé sa confiance en m'accueillant au sein du CORIA, et Armelle Cessou, directrice actuelle du CORIA, pour avoir maintenu cette confiance malgré les nombreuses difficultés qui ont été rencontrées, et pour avoir accepté ensuite de présider le jury. Nos discussions auront été d'une grande aide pour mener ce projet à son terme.

Cette thèse ne serait pas sans l'équipe qui en a constitué le projet, je tiens donc à remercier mon directeur de thèse Arnaud Bultel ainsi que mon encadrant principal Pascal Boubert pour cette opportunité. Ils ont été des interlocuteurs importants pour évoluer dans ce projet, et je remercie en particulier Pascal pour son soutien indéfectible malgré les difficultés et les tensions qui ont existé. Merci.

Cette thèse ne serait pas non plus possible sans deux acteurs importants : je remercie donc le CNES, évidemment pour leur cofinancement, et surtout pour m'avoir offert un aperçu de la diversité du monde de la recherche spatiale. Je remercie en particulier mon responsable au CNES, Julien Annaloro pour avoir permis ce projet ambitieux. Le second acteur à remercier, est évidemment l'autre organisme co-financeur, la région Normandie, qui a constitué une présence constante sur l'ensemble de mon parcours académique.

Je tiens aussi à remercier l'ensemble des personnels du CORIA avec lesquels j'ai pu échanger sur ces 4 ans et même auparavant. Je pense au personnel administratif, particulièrement Valérie Lequesne et Florence Fradet pour leur gentillesse et leur disponibilité. Je remercie le pôle Systèmes d'information, notamment Cédric Chambrelan pour sa sympathie et son aide, et Alexandre Poux pour son sourire contagieux, sa passion sans limite pour Python et son aide indispensable quand j'ai dû tenter de jouer au nécromancien avec un code CFD sorti d'outre-tombe. Je remercie également le pôle métrologie, particulièrement Gilles Godard et Carole Gobin qui m'ont énormément apporté sur la manipulation des lasers (parfois capricieux) et des caméras ainsi qu'une assistance technique précieuse. Je remercie enfin l'atelier du CORIA, Philippe Toutain, Bruno Mille, Benjamin Quévreux, Thierry Muller, Ludovic Frébourg, Romain Morin et Romain Guillot, pour leur disponibilité, leur sympathie, et leur aide précieuse sur la mise en place des expériences.

Je remercie de manière plus personnelle les doctorants du CORIA avec qui j'ai partagé quelques années d'échanges et de discussions, d'événements. Au sein de l'équipe

Plasmas, je pense déjà à Bastien Pérès, mon colocataire de bureau quand je suis arrivé et avec qui les discussions variées ont toujours été intéressantes et agréables. Mais je n'oublie pas Julien Amorosetti, dont la passion chez lui n'a d'égal que sa retenue légendaire. Je pense également aux deux autres doctorants de l'équipe Plasmas, Aurélien Favre et Morgan Lesage. Mes remerciements tout particuliers à Morgan pour notre collaboration sur la TALIF et ses efforts importants pour faire correspondre nos deux calendriers. Je remercie Florestan Guichard pour notre collaboration brève sur la simulation du Raman de CO et sur le partage d'expériences, exacerbant nos différences et nos similarités avec une même technique. Je remercie plus généralement les échanges amicaux et d'expériences diverses avec Petra, Benjamin, Fakhry, Eliot, Clément, Sylvain, Maxime, et beaucoup d'autres… et je vais passer à trois doctorants avec qui j'ai partagé beaucoup de moments : merci à Edouard et Yacine, vous êtes justes géniaux, je suis honoré d'être votre fier Dovahkiin. Et enfin Christophe, mon acolyte de parcours depuis le Master avec lequel les discussions à rallonges sur la thèse, la vie, la politique, League of Legends, les potes ont agrémenté un parcours semé d'embuches de touches de légèreté indispensables.

Cette thèse aura été un parcours du combattant, tant professionnellement que personnellement, et pour cela je tiens à remercier les docteurs Thomas Bourez et Katell Bruguera pour leur travail médical et psychologique. Mettre des mots sur le mal qui me rongeait et détruisait le reste de ma vie a été la clé, et me relever aurait été impossible sans votre suivi.

Je remercie maintenant le groupe incroyable d'amis sans qui je ne me serais probablement pas relevé de la dépression : encore une fois Christophe, mais aussi Gaëlle, Bryan, Justine, Sieur Nico, Meriame, Nico le Flamboyant, Cindy, ce bon vieux Badzou, Baptiste, Charles, l'incroyable Ficus et son histoire de pompe à sable, JP, Gabi, Laure… Merci à tous, vous avez tous apporté un soutien et une aide incroyable sans forcément tous vous en rendre compte.

Je vais terminer par le plus évident des remerciements, le plus profond, celui qui fait couler des larmes sur mes joues rien qu'à l'écrire : mes parents, et mon frère. Papa, Maman, vous avez toujours soutenu mes choix, toujours cherché à m'aider à trouver la bonne voie, celle qui me permettrait de m'épanouir. Toujours à me rassurer, me pousser sans me forcer, simplement être là. Fabien… merde, qu'est-ce que je ferais sans toi. Je suis toujours abasourdi par le fait qu'avec le temps tu deviens probablement mon meilleur ami, tellement on partage de choses en commun, de passions, de manières de penser. On a vécu nos parcours de formation bien différents en parallèle, et cette année est celle de la victoire pour tous les deux. Je vous remercie du plus profond de mon cœur, tous les trois. Cet accomplissement, c'est aussi le vôtre.

Merci à tous.

Table des matières

Remerciements i

Table des matières iv

Liste des Figures viii

Liste des tableaux xvii

Introduction 1

Chapitre I. Dispositifs expérimentaux 6

I.1. Création d'un plasma en vue de reproduire des conditions d'entrées atmosphériques 6

I.2. Plasmas hyperenthalpiques au CORIA : SOUPLIN 9

I.3. Présentation des sources laser 15

I.3.1. Laser à cristal Nd:YAG 15

I.3.2. Lasers à colorants 17

Chapitre II. ICOTOM 20

II.1. Description des radiomètres 20

II.2. Etalonnages des ICOTOM et données de vol Exomars 23

II.2.1. Calcul de l'éclairement des ICOTOM 23

II.2.2. Etalonnage des ICOTOM en courant 30

II.2.3. Signaux de sortie des ICOTOM face à un corps noir 32

II.2.4. Influence de la température du capteur sur les signaux ICOTOM 34

II.2.5. Etalonnage de l'intensité des ICOTOM en densité de flux d'énergie 39

II.2.6. Application aux données de vol EXOMARS 2016 44

II.2.7. Données complémentaires CORIA 48

II.3. Essais plasmas inductifs, influence pression et enthalpie spécifique 52

II.3.1. Installation des appareils de mesure sur SOUPLIN, présentation des campagnes de mesure 52

II.3.2. Influence de la puissance injectée et de la pression 53

II.3.3. Influence de la distance longitudinale à la sortie du jet 56

II.3.4. Influence de la distance radiale à l'axe du jet 57

II.4. Calcul numérique de spectres 60

II.4.1. Spectres d'absorption et d'émission 60
II.4.2. Modèles et bases de données 64
II.4.3. Intégration des bases de données dans PASTIS 68
Chapitre III. VENOM 74
III.1. Principe 74
III.2. Dispositif prévu et dispositif réel 74
III.3. Points de fonctionnement 79
III.4. Diffusions Rayleigh et de Mie, fluorescence induite par laser et VENOM 79
III.4.1. Diffusions Rayleigh et de Mie 79
III.4.2. Fluorescence induite par laser 80
III.4.1. VENOM 82
III.5. Modèle couplé de fluorescence 82
III.5.1. Principe de VENOM 82
III.5.2. Modèle VENOM 83
III.5.3. Effets de saturation 84
III.5.4. Évolution temporelle relative de NO(X,v=1) en fonction de la température 86
III.5.5. Influence du délai entre les deux excitations 87
III.5.6. Influence du nombre rotationnel des niveaux sondés 88
III.5.7. Conclusion 90
Chapitre IV. Diffusion Raman spontanée dans un plasma 92
IV.1. Diffusion Raman spontanée 92
IV.1.1. Principe de la diffusion Raman : diffusion inélastique 92
IV.1.2. Application aux diagnostics optiques (combustion) pour des mesures locales de températures et de densités d'espèces 93
IV.1.3. Dispositif expérimental 94
IV.2. Mesures de températures de vibration et de rotation du fondamental de CO 99
IV.2.1. Influence des populations des niveaux sondés sur la forme du spectre 99
IV.2.2. Intervention de la fonction d'appareil : mesure sur les diffusions Rayleigh et Raman à conditions ambiantes 102

IV.2.3. Reconstruction du signal : (collaboration F. Guichard) 104

IV.3. Mesures de densité du fondamental de CO 105

IV.3.1. Etalonnage : mesure du Raman de l'air à température ambiante et pression d'essai 105

IV.3.2. Densité de CO dans le plasma 107

Chapitre V. Etude de la population d'oxygène atomique dans un plasma de CO_2 pur par TALIF 109

V.1. Présentation de la TALIF 109

V.1.1. Principe de la fluorescence à deux photons 109

V.1.2. Application aux diagnostics optiques pour des mesures locales de températures et de densités d'espèces 116

V.1.3. Dispositif expérimental 117

V.2. Etalonnage : Mesure sur Xenon à température ambiante 121

V.3. Mesures de températures de translation du fondamental de O 122

V.3.1. Balayage en longueur d'onde d'excitation 122

V.3.2. Simulation des spectres théoriques et ajout de la fonction d'appareil, détermination de la température 124

V.4. Mesures de densité du fondamental de O 125

V.4.1. Mesure de la décroissance de la fluorescence 125

V.4.2. Détermination du quenching, mesure de densité 125

Chapitre VI. Résultats et discussion 127

VI.1. Spectres Raman 127

VI.1.1. Acquisition des signaux 127

VI.1.2. Thermométrie du CO 130

VI.1.3. Densité du CO, fraction molaire 133

VI.1.4. Résultats, premières remarques et discussions 133

VI.2. TALIF 135

VI.2.1. Acquisition des signaux, étalonnage Xenon 135

VI.2.2. Thermométrie de O (collaboration M. Lesage) 137

VI.2.3. Densité de O, fraction molaire 141

VI.3. Compilation des résultats et discussion 146

Conclusion 151

Annexe A. Présentation des lasers 154

Annexe B. Spectroscopie d'émission 159
Mesures préliminaires sur deux sources radiativement connues 159
Troisième campagne de mesures sur IPWT3 163
Bibliographie II
Résumé II
Abstract II

Liste des Figures

Figure I-1. Représentation d'une entrée atmosphérique, définition des couches successives au voisinage de l'engin. 7

Figure I-2. Configurations possibles d'induction magnétique. [23] 8

Figure I-3. Structure d'un plasma de CO_2 pur induit magnétiquement : à gauche, vue latérale ; à droite, la vue depuis l'amont de la zone de création permet d'apercevoir une structure annulaire. 10

Figure I-4. Schéma général de l'installation SOUPLIN. 12

Figure I-5. Plan de la zone d'injection et de création du plasma [dimensions en mm]. . 13

Figure I-6. Photographies du plasma de décharge de CO_2 pur. 13

Figure I-7. Photographie du plasma couplé de CO_2 pur. 13

Figure I-8. Etendue des points de fonctionnement de l'installation SOUPLIN correspondant aux conditions dans le domaine de décélération par aérofreinage [29] de Schiaparelli. 14

Figure I-12. Profil temporel du laser 532 nm. Largeur à mi-hauteur : 106.40 ns. 16

Figure I-13. Evolution temporelle typique du laser 532 nm. Le laser se stabilise typiquement après 20 minutes de fonctionnement. 17

Figure I-14. Histogramme typique du laser 532 nm en fonctionnement stabilisé. Moyenne : 512 mJ ; écart-type : 7.2 mJ (1.40%) : échantillon : 52 minutes, 10 Hz. 17

Figure I-15. Répartition spatiale de l'énergie du laser 532 en sortie de source : les niveaux de gris les plus bas correspondent à la plus haute énergie déposée sur le papier de test. 17

Figure II-1. Position des COMARS+ sur le bouclier arrière de Schiaparelli. 20

Figure II-2. Photographie et éclaté d'un radiomètre ICOTOM. (Crédits : Le Verre Fluoré) 21

Figure II-3. Réponses spectrales des ICOTOM et position des bandes d'émission ciblées. (ICOTOM B1 : bande à 4,3 µm, ICOTOM B2 : bande à 2,7 µm) 22

Figure II-4. Vue en coupe de l'extrémité de la canne supportant les ICOTOM (première campagne sur corps noir et campagne plasma). 22

Figure II-5. Dispositif d'étalonnage des radiomètres ICOTOM sur le four corps noir, dont le schéma en coupe est présenté à gauche. 24

Figure II-6. Rayonnement à travers une surface dS. [38] 25

Figure II-7. Transfert radiatif à travers une couche d'épaisseur dx. [38] 25

Figure II-8. Luminance du corps noir selon la loi de Planck. 27

Figure II-9. Etalonnage tension-courant des ICOTOM de vol et de secours avec l'électronique des modules COMARS+. Etalonnage réalisée par le DLR pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).....31

Figure II-10. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par le DLR pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).....32

Figure II-11. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par LVF pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).....33

Figure II-12. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par LVF pour les ICOTOM 09FMB1-NBA1 (haut gauche), 11FMB1-NBA2 (haut droite), 08FMB1-NBA3 (bas gauche) et 04FMB1-NBA4 (bas droite).....34

Figure II-13. Etalonnages du courant de sortie des ICOTOM 04QMB1 (gauche) et 07QMB2 (droite) réalisés au DLR et par LVF en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.....35

Figure II-14. Etalonnages du courant de sortie des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et 05QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR et 06QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.....35

Figure II-15. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et 05QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR et 06QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.....36

Figure II-16. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.....36

Figure II-17. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM de type B1 par LVF (gauche) et de type B2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour une température du corps noir d'environ 500°C.....37

Figure II-18. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.....38

Figure II-19. Caractéristique V=f(TICOTOM), 05QMB1, TCN=500°C.....39

Figure II-20. Caractéristique V=f(TCN), 04QMB1, TICOTOM=20°C.....40

Figure II-21. Courbes calculées de l'ICOTOM 07-FM-B2 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C. Par souci de clarté, des lignes pleines ont été préférées à des

points pour figurer les valeurs réelles, permettant ainsi de voir la concordance du modèle LVF.....41

Figure II-22. Courbes calculées de l'ICOTOM 04-FM-B1 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C. 42

Figure II-23. Courbes calculées de l'ICOTOM 04-FM-B1 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C en incluant la correction de l'Eq. (II-5) ; K=7,6.10-6 K-2.42

Figure II-24. Comparaison de signaux ICOTOM pour TICOTOM = 20°C, normalisés par le signal maximal observé pour observer la dynamique commune.....49

Figure II-25. Comparaison des étalonnages ICOTOM en température de corps noir, en prenant en compte les trois étalonnages (LVF, DLR et CORIA), ainsi la campagne commune DLR/CORIA.....50

Figure II-26. Comparaison des signaux ICOTOM en fonction de leur propre température, en prenant en compte les trois étalonnages (LVF, DLR et CORIA), ainsi la campagne commune DLR/CORIA.....50

Figure II-27. Modèles U=f(M) pour TICOTOM = 20°C.....51

Figure II-28. Photographie de la canne refroidie et des radiomètres ICOTOM durant le fonctionnement de la soufflerie au CO2. (Les ICOTOM sont désignés par les flèches jaunes).....52

Figure II-29. Spectromètre MAYA 2000 Pro.....53

Figure II-30. Influence de l'enthalpie spécifique sur les signaux ICOTOM dans un plasma de CO2.....55

Figure II-31. Influence de la pression sur les signaux ICOTOM dans un plasma de CO2. 56

Figure II-32. Influence de la distance longitudinale sur le rapport R des signaux des ICOTOM. Chaque courbe représente un point de fonctionnement du plasma.....57

Figure II-33. Influence de la distance radiale sur le rapport R des signaux des ICOTOM. Chaque courbe représente un point de fonctionnement du plasma.....58

Figure II-34. Représentation des modes de vibration du CO2.....61

Figure II-35. Isosurface du potentiel de vibration axiale de CO2, en fonction des longueurs des liaisons C=O. [42].....62

Figure II-36. Allure générale des potentiels V de CO2 pour les vibrations symétrique v1 (a) et antisymétrique v3 (b). [42].....62

Figure II-37. Allure des changements dus à une résonance de Fermi. A gauche, niveaux non perturbés ; à droite, ce qui est réellement observé. [43].....63

Figure II-38. Schéma des paramètres essentiels contenus dans HITRAN. [48].....67

Figure II-39. Organigramme présentant la structure globale de PASTIS, ainsi que les ajouts effectués en rouge pour intégrer les bases de données au code.....69

Figure II-40 Principe de calcul des raies à partir de CDSD.....71

Figure II-41. Comparaison des spectres d'absorption simulés (à gauche) avec la littérature (à droite) [55]. De haut en bas : CO, bande B1 ; CO2, bande B1 ; CO2, bande B2.....72

Figure III-1. Dispositif VENOM prévu, partie excitation laser. (vue de dessus).....75

Figure III-2. Modèle simplifié des transitions ciblées par VENOM.....75

Figure III-3. Différentes solutions pour la production du peigne laser.....76

Figure III-4. Système initial de collection de la fluorescence. (Vue de côté).....77

Figure III-5. Système d'excitation réel. (Vue de dessus).....78

Figure III-6. Visualisation des faisceaux lasers à pression atmosphérique. La mise au point se fait sur les poussières qui traversent le laser.....80

Figure III-7. Images indépendantes de fluorescence dans le plasma.....81

Figure III-8. Spectres de fluorescence calculés, et un spectre expérimental de NO dans un plasma d'air.....82

Figure III-9. Évolutions temporelles des populations pour E=2 mJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).....85

Figure III-10. Évolutions temporelles des populations pour E=0,2 mJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).....85

Figure III-11. Évolutions temporelles des populations pour E=2 µJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).....86

Figure III-12. Évolution du ratio NO(X,v=1)(t) sur NO(X,v=1)(t=0) pour E=0,2 mJ, T=300 K, T=600 K et T=3000 K.....87

Figure III-13. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 285 ns, T=300 K (à gauche) et T=3000 K (à droite).....88

Figure III-14. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 785 ns, T=300 K (à gauche) et T=3000 K (à droite).....88

Figure III-15. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 785 ns, pour T=3000 K, J=30.5 (à gauche) et J=60.5 (à droite).....89

Figure III-16. Évolution du ratio NO(X,v=1)(t) sur NO(X,v=1)(t=0) pour E=0.2 mJ, T=300 K (à gauche) and T=3000 K (à droite) pour divers délais et nombres rotationnels. 89

Figure III-17. Évolution temporelle de l'intensité de la seconde fluorescence (second signal VENOM) en fonction du nombre rotationnel pour E=0.2 mJ, T=3000 K et un délai de 785 ns.....90

Figure IV-1. Diagramme en niveaux d'énergie illustrant la diffusion des photons par un atome ou une molécule.....93

Figure IV-2. Rappel de l'orientation des champs électromagnétiques pour une onde TM. 95

Figure IV-3. Transmission totale de l'onde TM lorsque l'incidence est à angle de Brewster. [source : wiki/Angle_de_Brewster] 95

Figure IV-4. Intensificateurs de génération III (Credits : Princeton Instruments).....96

Figure IV-5. Etages d'intensification de la PI-MAX 4 emICCD (Credits : Princeton Instruments).....96

Figure IV-6. Illustration de l'intérêt des lentilles de diamètre 50mm. 97

Figure IV-7. Problèmes issus du choix de lentilles trop larges.....97

Figure IV-8. Illustration de l'apport de doublets achromatiques sur les aberrations chromatiques. 98

Figure IV-9. Réflectance du revêtement antireflet (400–1000 nm). 98

Figure IV-10. Variation de la focale avec la longueur d'onde sur la lentille Ø50 * f150. 98

Figure IV-11. Zoom sur la région propre aux diffusions Rayleigh et Raman pertinentes. 98

Figure IV-12. Montage de collection, vu de dessus. Les points verts illustrent les 4 positions du laser étudiées, distants de 2 cm les uns des autres (excepté le point amont, distant du point central de 1,5 cm).....99

Figure IV-13. Modélisation par une Trapèze-Lorentzienne. Signal : Rayleigh dans l'air, T=295 K, p = 6200 Pa.....103

Figure IV-14. Comparaison de la Trapèze-Lorentzienne avec une Gaussienne et une Lorentzienne, sur une moitié du signal Rayleigh.....103

Figure IV-15. Exemple de spectre Raman Stokes de CO dans un plasma de CO_2 pur, et comparaison avec un spectre théorique.....105

Figure V-1. Diagramme de Jabłoński illustrant les processus intervenant lors de et suite à l'absorption d'un photon par un atome.....109

Figure V-2. Spectres d'excitation et de fluorescence : sulfate de quinine et chlorophylle a. (Sources : omlc.org/spectra/PhotochemCAD) 111

Figure V-3. Modèle à deux niveaux pour la fluorescence.....112

Figure V-4. Diagrammes d'énergie pour la LIF à deux photons de l'oxygène et du xénon. 113

Figure V-5. Profils spectraux types du laser et de l'absorption de l'oxygène à T=3000 K. 116

Figure V-6. Laser de pompe YG980 Nd:YAG 532nm (gauche) et laser Q-Scan à colorant (droite). La trajectoire verte est celle du faisceau de pompe. 117

Figure V-7. Vue de dessus du montage d'excitation de la TALIF. Le marquage en pointillé vert figure le trajet du laser d'excitation Raman, à titre de comparaison..... 118

Figure V-8. Profil spatial du laser Q-Scan pour un faisceau à 565nm (Source : Quantel). 119

Figure V-9. Histogramme d'énergie type du laser Q-Scan pour un faisceau à 226 sur 8000 tirs..... 119

Figure V-10. Mesure de l'énergie laser à 226 nm..... 119

Figure V-11. Influence de l'angle d'incidence sur la transmission de la lame séparatrice. 120

Figure V-12. Détermination du domaine de « faible excitation » : $E^2 < 0{,}25$ mJ². 120

Figure V-13. Image brute de fluorescence et profils extraits (crédit figure : M.Lesage). 123

Figure V-14. Signal brut, filtré et simulé type des transitions partant de $^3P_0$. [69]..... 124

Figure V-15. Evolution de la température de translation de O avec la hauteur. [69].. 124

Figure V-16. Signal simulé type des transitions partant de $^3P_0$. 125

Figure V-17. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée. Ici $Q = 6{,}5.10^7$ s^{-1}..... 126

Figure VI-1. Comparaison de spectres Raman bruts (en couleur) avec le signal de fond (en noir) pour p = 6000 Pa. 128

Figure VI-2. Signaux débarrassés du fond pour p = 6000 Pa..... 129

Figure VI-3. Comparaison du nettoyage par un signal de fond brut avec celui par un signal moyenné pour p = 6000 Pa. 129

Figure VI-4. Influence du nombre rotationnel de coupure J_{max} pour un spectre Raman à l'équilibre T = 3000K..... 130

Figure VI-5. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit convenable (8,5)..... 131

Figure VI-6. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit de 4. 131

Figure VI-7. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit très faible de 1,5. 132

Figure VI-8. Evaluation de l'erreur d'évaluation de température en fonction du rapport signal sur bruit du spectre Raman (SNR)..... 132

Figure VI-9. Comparaison de spectres à froid pour N2 et O2. 133

Figure VI-10. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée pour la position centrale avec p = 6,4 kPa et H = 7 MJ/kg. 136

Figure VI-11. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée pour la position centrale avec p = 9 kPa et H = 4 MJ/kg. 136

Figure VI-12. Spectres d'excitations intégrés sur la zone de mesure, en position centrale, pour H = 7 MJ/kg et p = 6000 Pa. 139

Figure VI-13. Evolution des températures de O [$2p^3P_J$] avec la hauteur relative à l'axe du plasma pour les 3 points de fonctionnement en enthalpie et p = 6 kPa en position centrale. [69] 140

Figure VI-14. Evolution des températures de O [$2p^3P_J$] avec la hauteur relative à l'axe du plasma pour les 4 points de fonctionnement en enthalpie et p = 9 kPa en position centrale. [69] 141

Figure VI-15. Exemple de spectre émis par le xénon (intégré sur la hauteur du capteur) lors des acquisitions à p = 6 kPa. [69] 142

Figure VI-16. Evolution des densités le long du trajet du laser d'excitation de O($2p^3P_J$) pour p = 6 kPa et H = 5 MJ/kg. 143

Figure VI-17. Calcul 0D à l'équilibre des densités au sein d'un plasma de CO_2 à p = 6 kPa [28] effectué avec le code CEA. [39] 145

Figure VI-18. Evolution des densités des niveaux fondamentaux de CO et O avec l'enthalpie spécifique en position centrale ; p = 6 & 9 kPa ; comparaison avec les signaux ICOTOM dans les mêmes conditions sur la partie basse. 146

Figure VI-19. Evolution des températures de CO et O avec l'enthalpie spécifique en position centrale ; p = 6 & 9 kPa. 148

Figure VI-20. Influence de la dilution du CO_2 par une fraction de N_2 et/ou d'Ar sur un spectre d'excitation TALIF pour p = 9 kPa et h = 9 MJ/kg. 149

Figure A-1. Principe d'une cavité laser. [76] 154

Figure A-2. Schéma du modèle à deux niveaux, à gauche ; Illustration séquentielle du principe de l'émission stimulée dans un modèle à deux niveaux, à droite. 155

Figure A-3. Premier laser à rubis de Maiman (1960). [77] 156

Figure B-1. Dispositif type de mesures d'étalonnage du spectromètre MAYA 159

Figure B-2. Spectres du tungstène acquis par MAYA, et retravaillés 160

Figure B-3. Réponses non calibrées du spectromètre, avant fusion. Zoom effectué sur la zone de chevauchement [300-400 nm] 161

Figure B-4. Ajustement de la réponse au deutérium. La zone grisée correspond à la zone sélectionnée pour la fusion. 162

Figure B-5. Réponse spectrale fusionnée du spectromètre, normalisée 162

Figure B-6. Positionnement de la lampe crayon pour le réglage du montage spectroscopique 163

Figure B-7. Montage spectroscopique utilisé lors de la seconde campagne de mesures. 164

Figure B-8. Identification des bandes et raies d'émission sur un spectre corrigé grâce à la réponse spectrale établie plus haut. 165

Figure B-9. Spectres corrigés (P=26kW). 166

Figure B-10. Spectres corrigés (P=35kW). 166

Figure B-11. Spectres corrigés (P=45kW). 167

Figure B-12. Spectres corrigés (P=55kW). Notons la forte présence de raies du silicium dans l'intervalle 250-300nm. 167

Figure B-13. Spectres corrigés (P=62kW). Notons la présence de raies du silicium dans l'intervalle 250-300nm..... 168

Liste des tableaux

Tableau I-2. Présentation des lasers à colorants utilisés dans ce travail de thèse. 19

Tableau II-5. Différentes gammes utilisées pour les calculs d'éclairement correspondants aux filtres de type B1 et B2 29

Tableau II-6. Calculs d'éclairement réalisés pour ce rapport : $E = \pi sin2\alpha L°(\lambda 1, \lambda 2)$ ... 30

Tableau II-7. Application aux données d'étalonnage DLR de la conversion basée sur l'étalonnage LVF. 44

Tableau II-8. Densités de flux (W/m2) dans tout l'hémisphère face à chaque ICOTOM (LVF) 46

Tableau II-9. Densités de flux (W/m2) dans le cône d'ouverture de chaque ICOTOM (LVF) 46

Tableau II-10. Températures (K) de corps noir équivalentes (LVF). 47

Tableau II-11. Densités de flux (W/m2) dans tout l'hémisphère face à chaque ICOTOM (DLR). 47

Tableau II-12. Températures (K) de corps noir équivalentes (DLR). 48

Tableau II-13. Décomposition de l'énergie d'une molécule, approximations à l'ordre 2.60

Tableau II-14. Paramètres de la base de données HITRAN qui sont utilisés dans le code de calcul. 67

Tableau V-15. Présentation des processus d'importance dans le diagramme de Jabłoński. 110

Tableau V-16. Influence de la longueur d'onde sur l'énergie. 120

Tableau VI-17. Résumé des résultats de spectroscopie Raman pour P = 6000 Pa. 134

Tableau VI-18. Résumé des résultats de spectroscopie Raman pour P = 9000 Pa. 135

Tableau VI-19. Sections efficaces relatives des transitions TALIF pour O. [70] 138

Tableau VI-20. Résumé des densités de O au centre du capteur et pour tous les points de fonctionnement centraux 143

Tableau VI-21. Résumé du modèle d'estimation des densités complémentaires à CO et O et illustration de résultats pour p = 6400 Pa et H = 7MJ/kg 145

Tableau VI-22. Estimation des densités complémentaires à CO et O 147

Tableau VI-23. Estimation des densités complémentaires à CO et O en forçant $[O_2]$ à 0. 147

Tableau VI-19. Sections efficaces relatives des transitions TALIF pour O. [70] 149

Tableau A-1. Présentation de quelques sources lasers pionnières ou d'importance. 157

Introduction

Lorsqu'il est question de permettre à un engin d'approcher la surface d'une planète, il faut prévoir un moyen de le faire ralentir d'une vitesse d'entrée importante, jusqu'à une vitesse suffisamment faible pour pouvoir entamer les manœuvres d'atterrissage. La vitesse d'entrée typique pour une entrée martienne est de 6 km/s, tandis que la vitesse d'approche est de l'ordre de 10m/s.

La vitesse de l'engin étant de 6 km/s au début de l'entrée atmosphérique, et la célérité du son étant de l'ordre de 225m/s (la vitesse du son peut varier légèrement avec l'altitude en raison de la variation de température), l'entrée se fait donc à vitesse hypersonique avec un nombre de Mach proche de 30. Les parachutes actuels ne fonctionnant qu'à des vitesses inférieures ou proches de Mach 2 (soit 450 m/s sur Mars), cette solution ne peut assurer seule ce ralentissement. Un premier moyen utilisé peut être alors l'utilisation de rétrofusées, mais la quantité de carburant nécessaire pour générer la poussée suffisante ainsi que la masse propre du système réduiront grandement la masse utile embarquée dans l'engin spatial. Lorsque la planète possède une atmosphère suffisamment dense, il est alors possible d'utiliser la technique de l'aérofreinage, qui consiste à exploiter l'interaction avec l'atmosphère pour freiner l'engin.

On adopte alors une forme d'engin générant suffisamment de traînée, en augmentant la surface exposée au fluide : les navettes spatiales étaient pourvues de larges ailes Delta, tandis que plus généralement les capsules (Soyouz, Apollo pour les plus connus) ainsi que les véhicules non habités ont généralement une coque inférieure en forme de large cône au sommet arrondi.

L'aérofreinage fait entrer en jeu les forces de traînée pour convertir l'énergie cinétique de l'engin en énergie thermique. Dans le cas d'un objet se déplaçant à vitesse hypersonique, c'est-à-dire bien plus vite que la vitesse à laquelle les ondes de pression peuvent se propager, le gaz de l'atmosphère situé sous l'engin (donc en amont) est comprimé de façon très brutale, et une onde de choc détachée se forme, engendrant alors un plasma fortement hors équilibre entre le front de choc et l'objet. L'écoulement après l'onde de choc est subsonique, et la densité a fortement augmenté, permettant au plasma fortement déséquilibré (les processus chimiques et thermiques élémentaires ne sont pas tous compensés par un processus inverse) de se relaxer partiellement dans la couche de choc avant d'être à nouveau déséquilibré au voisinage de l'objet dans la couche limite. Les transferts d'énergie entre le plasma et l'objet, par convection ou rayonnement, vont alors échauffer ce dernier au point de l'endommager voire de le détruire. C'est la raison pour laquelle les petits météores qui pénètrent l'atmosphère terrestre (que l'on appelle « étoiles filantes ») finissent par « s'évanouir » avant de pouvoir tomber : ils ont été intégralement dégradés par ces interactions. Si un météore est suffisamment gros, il ne sera pas complètement détruit et percutera le sol, laissant alors un débris appelé météorite. De plus, selon la matière de l'objet, la dégradation sera plus ou moins rapide.

De la même manière, beaucoup d'engins spatiaux en fin de vie comme les satellites sont précipités de manière contrôlée vers l'atmosphère terrestre afin d'être détruits par ces interactions : ainsi l'étude des débris spatiaux est importante, d'abord en amont pour la conception des engins, jusqu'à la fin avec l'étude de leur destruction (laboratoire PROMES, thèse CNES Lucile Barka [1]), et de leur répartition dans l'espace aérien et terrestre pour éviter tous dégâts matériels et humains (code DEBRISK du CNES Par exemple [2]), ainsi que le développement de cadres légaux autour de ces problématiques (thèse CNES [3]).

Pour éviter de voir un engin spatial détruit par ces phénomènes lorsque cela n'est pas désiré, il faut donc protéger sa partie amont avec un revêtement. On peut agir sur plusieurs facteurs pour avoir une bonne protection : les matériaux choisis en fonction de leurs caractéristiques, ainsi que la géométrie utilisée, comme par exemple l'épaisseur de la couche de protection. Il y a à l'heure actuelle deux stratégies principales de protection reposant sur le type de matériau.

La première consiste à utiliser des matériaux qui ont une forte capacité thermique, c'est-à-dire que la quantité d'énergie à apporter pour faire monter ce matériau en température est plus importante que sur d'autres matériaux. De plus, ils doivent disposer d'une forte émissivité à haute température, de sorte à évacuer une grande partie de l'énergie accumulée par rayonnement. Enfin, leur température de fusion et leur enthalpie de changement de phase doivent être élevées, afin d'éviter d'être dégradés au cours de l'utilisation. Le but est d'alors permettre que le bouclier thermique encaisse et rediffuse une grande partie de l'énergie vers l'extérieur sans être dégradé. Ces matériaux sont généralement des céramiques dotées d'un revêtement à haute émissivité, et sont la solution privilégiée pour les objets utilisés plusieurs fois (par exemple les navettes).

La seconde solution nécessite plutôt des matières qui, elles, seront dégradées de manières contrôlées, grâce à une enthalpie de changement de phase élevée et un caractère isolant important. Cette solution est privilégiée sur des engins à usage unique comme les sondes interplanétaires. Si l'on connaît l'énergie totale à évacuer, on prévoit alors une épaisseur de couche suffisante pour permettre au bouclier de se dégrader progressivement le long de la descente tout en protégeant la charge utile. Les matériaux privilégiés sont actuellement des composés de liège phénolé ou de céramique de carbone à résine phénolée (PICA). Le matériau est d'abord décomposé en surface en réagissant avec les espèces présentes dans la couche limite. Ces réactions sont généralement exothermiques (excepté par exemple la sublimation du carbone) et leurs produits sous forme gazeuse sont diffusés préférentiellement vers l'extérieur. Les réactifs venant de la couche limite, principalement de l'oxygène, pénètrent aussi dans le matériau par diffusion : c'est alors la vitesse de consommation de ces réactifs qui limitent l'épaisseur de la couche réactive. Lorsque l'oxygène n'est plus disponible, seule la résine est dégradée en gaz par pyrolyse. Cette réaction est endothermique, et la diffusion des gaz pyrolytiques vers l'extérieur contribue à ralentir la diffusion des réactifs gazeux : on nomme ce phénomène le *blocage*.

Si de nombreuses études et mesures *in situ* ont permis de bien appréhender la protection nécessaire dans les différentes missions planétaires, le cas de Mars est particulier à cause de la présence majoritaire de CO_2 (95%). Lors de la descente d'une sonde planétaire, cette molécule se décompose premièrement dans le plasma en amont, puis se recombine dans les zones latérales et arrière lorsque le plasma se refroidit et rencontre la zone de recirculation. Mais les réactions de recombinaison engendrent du CO_2 sur un état excité, qui se désexcite alors en émettant du rayonnement de chimiluminescence qui peut s'étaler de l'UV à l'infrarouge. Dans le cas d'une entrée martienne, la réaction $CO + O \rightleftharpoons CO_2$ produit CO et CO_2 avec un fort déséquilibre vibrationnel entraînant des désexcitations avec émission de photons dans l'infrarouge [4]. La molécule étant triatomique, nombreux sont les niveaux excités possibles à l'issue des réactions de recombinaison; de plus les hypothèses simplificatrices pour calculer ces niveaux via la mécanique quantique ne permettent que d'approximer les états d'énergie concernés de la molécule, ce qui rend difficile toute prévision des quantités d'énergie en jeu.

C'est un réel problème car ces quantités sont suffisamment importantes pour nécessiter une protection thermique *à l'arrière* en supplément du bouclier usuel à l'avant. Comme les marges d'erreur des prévisions sur les flux radiatifs sont importantes, les coefficients de sécurité le sont aussi lors de la conception des sondes, engendrant une épaisseur plus que nécessaire de revêtement. Cela sacrifie autant de masse d'équipement scientifique qu'il y a de protection en trop, et génère un surcoût dû à l'augmentation de carburant nécessaire pour transporter la sonde.

Dans une optique de mesurer ces flux radiatifs en conditions réelles, le CNES développa avec Le Verre Fluoré une gamme de radiomètres infrarouges de taille réduite, nommée ICOTOM, qui a été implémentée dans le module COMARS+ du DLR (Deutsches Zentrum für Luft- and Raumfahrt). Ce dispositif cherchait à enregistrer l'ensemble des flux thermiques sur la partie arrière de la sonde Schiaparelli, qui a fait partie du volet 2016 du programme ExoMars de l'ESA. Schiaparelli était un démonstrateur qui devait permettre de valider les capacités de l'agence européenne à poser un rover sur la planète rouge et de récupérer un maximum de données de vol, ainsi qu'un peu de données au sol pendant 9 à 15 jours. Il est parti avec le satellite TGO le 14 Mars 2016, et a entamé sa procédure de descente et d'atterrissage sur Mars le 19 Octobre 2016, durant laquelle une erreur de saturation de capteur angulaire a entraîné une erreur de mesure d'inclinaison et d'altitude. Cela a poussé le logiciel de gestion de la phase de descente à ordonner une séparation prématurée des parachutes, et à ne déclencher les rétrofusées de la phase finale de freinage que durant trois secondes. Après cela une chute libre de 34 secondes a mené le module à un impact avec le sol martien à une vitesse d'environ 150m/s, détruisant tout le matériel embarqué.

Heureusement, certaines données ont été transmises en « direct » (avec 20 minutes de temps de trajet jusqu'à la Terre) pendant la phase de descente : 600 Mo de données

de vol ont ainsi été récupérées, notamment une partie des données des systèmes COMARS+ et des ICOTOM. Un phénomène habituel d'écrantage électrique dû au plasma autour de la sonde a eu lieu pendant environ 80 secondes, au plus fort des phénomènes physiques à mesurer, et a empêché ainsi la transmission des données pendant cet intervalle, mais le reste des données a tout de même été exploité [5] [6]. Ainsi l'analyse des données des ICOTOM a permis de fournir une information intéressante sur l'émission infrarouge majoritaire du plasma.

Cependant, la conception et l'utilisation des ICOTOM s'inscrit dans un projet plus général pour le CNES, dont le but premier est la mise en place d'une simulation complète des phénomènes physico-chimiques dans les conditions réelles d'entrées atmosphériques martiennes pour le futur développement d'engins spatiaux. Pour cela, le CNES a alors formé un consortium avec des laboratoires, pour la plupart français (CORIA, EM2C, ICARE, Institut Pascal, IPM, IUSTI, R.Tech) pour mener à bien ce projet.

Dans ce cadre, il est nécessaire d'améliorer les modèles physico-chimiques de recombinaison du plasma afin de prédire les quantités de CO et CO_2, ainsi que le rayonnement infrarouge émis par ces molécules. C'est aussi pour cela que les mesures des ICOTOM fournissent d'importantes données.

Le projet comporte deux axes de travail. Le premier consiste à qualifier précisément le comportement des ICOTOM lorsqu'ils sont soumis à un plasma de CO_2. Pour cela, il est nécessaire de relever les signaux des radiomètres dans des plasmas de laboratoire aux conditions physico-chimiques connues et vérifier la concordance des résultats avec des mesures *in situ*.

Le second axe consiste à élaborer une simulation complète de l'écoulement du plasma, afin de reproduire précisément les phénomènes physico-chimiques et radiatifs observés en laboratoire, et reconstruire le signal observé par les ICOTOM.

C'est cette simulation, étalonnée grâce aux mesures expérimentales en laboratoire, qui permettra ensuite de reconstituer des écoulements de vol martien. La reconstruction du signal des ICOTOM avec ces simulations, et leur comparaison avec des données enregistrées en vol permet alors de déterminer l'état de l'écoulement réel et en déduire des informations quantitatives sur le plasma et les processus qui y sont à l'œuvre.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du premier axe de travail : la qualification d'un plasma « étalon » et le signal produit par les ICOTOM dans des conditions.

L'objectif est alors de caractériser l'état physico-chimique d'un plasma inductif de CO_2 pur lors de sa phase de recombinaison en jet libre, notamment par la mesure de températures et densités de populations des espèces d'intérêt. L'étude d'un gaz de CO_2 pur, même s'il ne représente pas tout à fait l'atmosphère martienne (en volume : 95.32% CO_2, 2.7% N_2, 1.6% Ar, 0.13% O_2 [7]), permet d'éviter de considérer la présence de nombreuses espèces supplémentaires et simplifie la chimie du milieu. Sachant que l'intérêt dans ce travail est de mesurer les proportions CO/CO_2, nous nous affranchissons au

départ de l'azote et l'argon ; nous testerons tout de même l'impact de leur présence pour vérifier que les résultats au CO_2 pur sont comparables avec un mélange martien.

Dans ces conditions expérimentales, les techniques de diagnostiques optiques sont une bonne solution pour mesurer des informations de populations et de températures pour différentes espèces d'intérêt telles que CO ou O. En effet, leur caractère non-invasif permet de ne pas perturber l'état du plasma : il n'y a pas d'insertion d'un moyen de mesure matériel qui peut modifier la chimie du plasma, voire le polluer, mais aussi perturber l'aérodynamique. Dans cette étude, nous nous pencherons notamment sur l'application d'une technique de suivi de traceurs (NO) par fluorescences successives (VENOM), de la spectroscopie de diffusion Raman spontanée du monoxyde de carbone ainsi que de fluorescence à deux photons induite par laser (TALIF) sur l'oxygène atomique.

Chapitre I. Dispositifs expérimentaux

La recherche spatiale porte un grand intérêt aux problématiques des entrées atmosphériques hypersoniques, notamment la compréhension de la physico-chimie des milieux qui entourent et interagissent avec l'objet qui pénètre l'atmosphère. Pour cela différents moyens ont été développés pour recréer des conditions similaires, avec chacun un domaine de prédilection.

I.1. Création d'un plasma en vue de reproduire des conditions d'entrées atmosphériques

Lorsqu'un objet rentre dans une atmosphère à vitesse hypersonique (Mars : M=25 environ), une onde de choc se forme à cause de la compression brutale des couches de gaz en-dessous de l'objet. En aval du front de l'onde se situe une zone de plasma de très fort déséquilibre physico-chimique ainsi que de très forts gradients, typiquement sur quelques millimètres. S'en suit une zone de relaxation du gaz dans lequel le nombre de Mach est inférieur à 1, de l'ordre de 10 cm d'épaisseur ; ces deux zones forment ce qu'il est courant d'appeler la couche de choc. A cette couche de choc succède une fine couche limite, à nouveau hors équilibre et très réactive, et qui se forme près de l'objet. Les interactions chimiques avec l'objet, notamment des réactions de surface (oxydation, recombinaison à la paroi), peuvent ajouter des effets supplémentaires à l'apport usuel d'énergie thermodynamique et dégrader la paroi de l'objet : d'où l'intérêt de protéger un engin spatial avec un bouclier thermique (en anglais Thermal Protection System, ou TPS). Dans le cas de Schiaparelli, ce matériau est un matériau ablatif à base de liège phénolé. En arrière-corps de l'engin la relaxation du gaz et la recombinaison des atomes, en particulier dans des zones de recirculation, génère une importante quantité de rayonnement dans l'infrarouge qui échauffe le bouclier arrière et peut engendrer des dégâts importants. Etudier cette phase de relaxation prend alors toute son importance pour pouvoir quantifier l'importance de chaque mécanisme réactionnel de recombinaison, et prédire la quantité de rayonnement qui en découle.

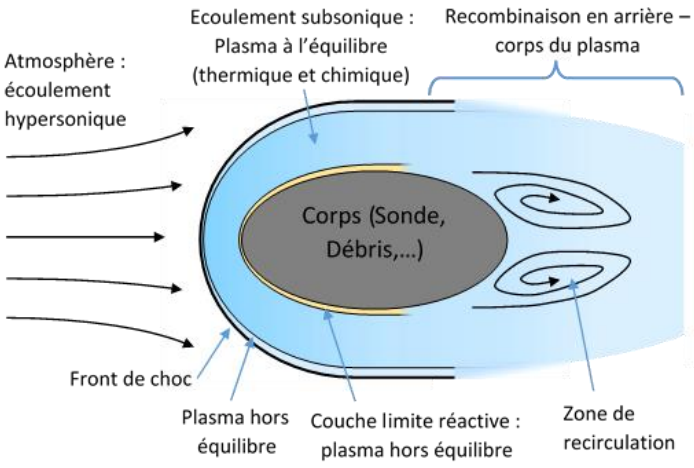


Figure I-1. Représentation d'une entrée atmosphérique, définition des couches successives au voisinage de l'engin.

L'étude des mécanismes au voisinage d'un front de choc ainsi que de certains processus chimiques élémentaires (cinétique chimique, énergie de dissociation, temps de relaxation…) se fait habituellement en reproduisant les conditions nécessaires dans un tube à choc. Un tube est divisé en plusieurs sections : l'une contient un gaz inerte à haute pression, la seconde contient le gaz étudié à basse pression au bout de laquelle se situe la section d'étude. Ces sections sont séparées par une fine membrane appelée diaphragme qui est détruite par la compression brutale du gaz dans la première section (combustion ou détonation, compression brutale par un piston dans une section précédente…) induisant un choc lors de la libération du gaz de la première section. Les conditions d'entrée et la méthode de déclenchement sont étudiées pour produire l'onde de choc désirée et reproduire ainsi des conditions de température et de pression nécessaires pour l'étude de ces processus. Il est également possible d'obtenir des jets hypersoniques en aval de la seconde section en produisant une détente dans une chambre (qui sera alors la zone de mesure) munie d'une tuyère. Les expériences peuvent se faire à très basse pression (typiquement quelques millibars) avec des vitesses de plusieurs km/s et des enthalpies de quelques MJ/kg, pouvant atteindre 25 MJ/kg pour certaines installations. Elles sont cependant limitées par un temps d'expérience de quelques centaines de microsecondes, tout au plus quelques millisecondes. En termes d'installations (tubes à choc et les souffleries qui peuvent y être attachées) nous pouvons citer Longshot – VKI [8], HEG – DLR [9], ESTHER – IST Lisbonne [10], HDT et T6 – Oxford Thermofluids Institute [11] [12], HIEST – JAXA [13], MIPT – IPT Moscou, EAST – NASA, X2 – Université du Queensland [14], T80 – IUSTI [15]).

Pour produire un écoulement supersonique voire hypersonique, il est possible de créer un plasma en générant un arc électrique important au sein du gaz d'étude en amont d'une tuyère. L'avantage de cette méthode de production du plasma est la durée d'étude plus importante qu'avec un tube à choc (quelques dixièmes de secondes à dizaines de

minutes) ainsi que l'importante enthalpie (typiquement 20 à 28 MJ/kg) permettant de reproduire les conditions typiques d'entrée atmosphériques et d'étudier l'interaction plasma / matériau d'un échantillon placé dans cet écoulement. Quelques installations à noter sont implantées aux États-Unis (NASA Ames Research Center : IHF, AHF, PTF, TFD [16]), en Russie (TsAGI [17]), en Italie (CIRA : SCIROCCO [18]), en Allemagne (IRS : PWK1, 2, 4, 5 [19]; DLR : LBK [20]) ou en France (ONERA : F4 [21]; ICARE : PHEDRA [22] ; EADS : SIMOUN). Néanmoins, un inconvénient majeur réside dans la capacité des électrodes à polluer le plasma, ce qui particulièrement vrai pour un plasma de CO_2 à cause des nombreuses espèces oxydantes (CO, O, O_2) qui sont produites dans le plasma.

C'est un problème que ne possèdent pas les torches inductives à plasma (ou ICP, Inductively Coupled Plasma), car la génération du plasma se produit grâce à l'induction d'un champ électromagnétique dans le gaz à l'aide d'un solénoïde, ce qui permet d'éliminer les électrodes polluantes. Il existe trois principales géométries illustrées dans la Figure I-2, la plus courante étant la structure cylindrique. Pour un solénoïde cylindrique tel qu'utilisé au CORIA, le gaz est injecté en amont du solénoïde, le plasma se forme en son cœur et la géométrie de l'installation choisie influe sur la détente du plasma en aval.

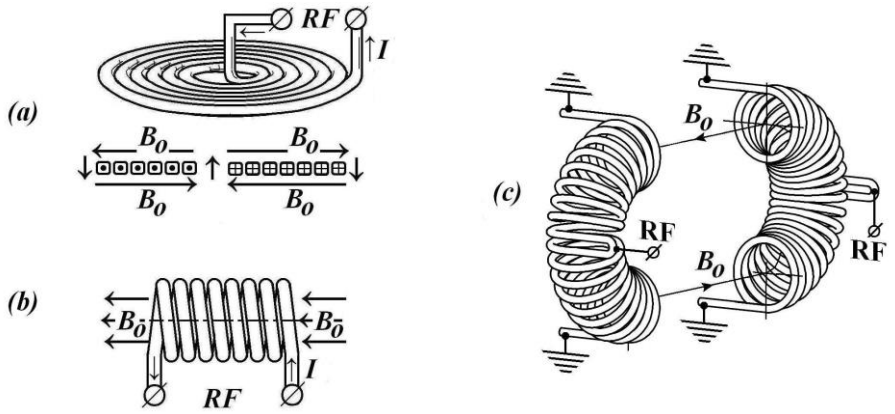


Figure I-2. Configurations possibles d'induction magnétique. [23]

En plus de la conservation de la pureté du plasma, ces torches sont très stables sur des durées importantes (plusieurs heures, voire dizaines d'heures). En montant une tuyère, il est également possible d'obtenir des jets supersoniques. Cependant la création du plasma est moins efficace (50% de l'énergie électrique est effectivement fournie au gaz à étudier) et la génération du plasma par accélération des électrons ne reflète pas la réalité d'un gaz en relaxation d'un choc, pouvant entraîner une répartition des modes d'excitation des lourds différente. Des installations sont présentes aux États-Unis, en Russie (IPM : IPG-3, 4 [24]), en Allemagne (IRS : PWK3) ou en France (Institut Pascal, CORIA : SOUPLIN (ex-IPWT4)).

I.2. Plasmas hyperenthalpiques au CORIA : SOUPLIN

Pour rappel, un plasma est un fluide dont une partie des atomes ou molécules qui le constituent ont été ionisés. Il peut être constitué de neutres, qui comme leur nom l'indique sont les atomes ou les molécules électriquement neutres, mais également d'ions moléculaires ou atomiques, qui peuvent être une ou plusieurs fois ionisés, et enfin d'électrons libres, majoritairement issus de l'ionisation du plasma. L'ensemble reste globalement neutre (lorsque la taille du plasma excède la longueur de Debye, longueur caractéristique d'effet des forces électrostatiques).La charge électrique des particules non neutres rend le milieu très conducteur électriquement, mais aussi très sensible aux champs magnétiques et électriques, y compris ceux générés par son propre mouvement. Le mouvement d'un plasma n'est donc pas aussi libre que celui d'un gaz neutre, et les complexes interactions entre ces mouvements et les champs magnétiques environnants forment la discipline d'étude nommée la magnétohydrodynamique, qui elle-même peut être en interaction avec l'aérodynamique et les transferts thermiques et radiatifs. Le CORIA possède deux thématiques majeures sur les plasmas :

- L'étude de l'expansion d'une bulle de plasma formée par la focalisation extrêmement intense et courte d'un faisceau laser sur un solide métallique [25] [26]. C'est un plasma typiquement créé dans le cadre d'analyses de la composition d'un matériau par spectroscopie d'un plasma induit par laser. Actuellement A. Favre y a repris le flambeau.

- L'étude de plasmas d'entrée atmosphériques, pour l'étude de la chimie des plasmas en jet libre, ou bien l'étude échantillon / plasma [27] [28]. Cette thèse que vous allez aborder est le prolongement de la thématique des plasmas d'entrée martienne lancée avec la thèse de N. Brémare. Par la suite, M. Lesage centrera son travail de thèse sur les plasmas d'air.

Un moyen utilisé au CORIA pour générer un plasma d'entrée atmosphérique consiste à induire de forts champs électromagnétiques dans un gaz, à l'aide d'une torche inductive ou torche ICP. Ce champ mettra en mouvement les quelques électrons libres qui peuvent y être présents (appelés électrons germes) avec une telle intensité que leurs collisions avec les lourds entraînent l'ionisation de ceux-ci. Les électrons libres alors formés sont à leur tour soumis au champ environnant, sont accélérés et ionisent ensuite d'autres lourds, formant une cascade qui conduit à deux types de plasma :

- Un plasma de décharge, lorsque le taux de recombinaison est plus important que le taux d'ionisation. Le plasma va se former puis très vite redevenir un gaz neutre par recombinaison des électrons avec les lourds.
- Un plasma induit, lorsque le couplage entre le champ et les particules chargées est suffisamment important pour maintenir l'état de plasma sur les longueurs importantes.

Dans le cas de la soufflerie du CORIA, le champ magnétique est produit dans les radiofréquences : 1,76 MHz. L'inertie des lourds est telle que seuls les électrons sont excités par ce champ. Mathématiquement, lorsque la fréquence du champ est plus élevée que la fréquence de coupure des particules mises en jeu, les particules sont insensibles à ce champ (autrement dit l'onde électromagnétique traverse invariablement le milieu). La fréquence de coupure est définie par l'équation (I-1) :

$$f_c = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{n\,e^2}{\varepsilon_0\,m}} \qquad \text{(I-1)}$$

où e est la charge élémentaire en C, n la densité de particules considérées en m^{-3}, ε_0 la permittivité du vide (cf Constantes) et m la masse du type de particule considérée en kg.

L'ion le plus léger, à savoir l'hydrogène (I) ou proton H^+, étant 1800 fois plus lourd que l'électron, sa fréquence de coupure est donc 43 fois plus faible que celle de l'électron (si les deux densités sont identiques). Pour CO_2^+, on passe à une fréquence 283 fois plus faible ! En l'occurrence, à une pression de 150 Pa et une température ambiante de 300 K, les fréquences de coupure de l'électron et du CO_2^+ sont respectivement de 171 GHz et 603MHz. La fréquence du générateur étant bien inférieure à des fréquences (1,76 MHz), l'onde est alors absorbée par le milieu : c'est un effet de peau collisionnel. Cette longueur caractéristique d'absorption est appelée *épaisseur de peau* et sera ici notée δ_p. Dans le cas d'un plasma inductif, l'épaisseur de peau est appelée épaisseur de peau collisionnelle ou résistive et une expression nous en est donnée par l'équation (I-2) :

$$\delta_p = \sqrt{\frac{1}{\pi\,\mu\,\sigma\,f}} \qquad \text{(I-2)}$$

Avec μ la perméabilité magnétique, σ la conductivité éléctrique du gaz et f la fréquence d'excitation, ici 1.8 MHz. L'épaisseur de peau est estimée inférieure à 8 mm [28] dans notre configuration. Le plasma n'est donc pas homogène et a alors l'apparence d'une coquille comme illustré dans la Figure I-3.

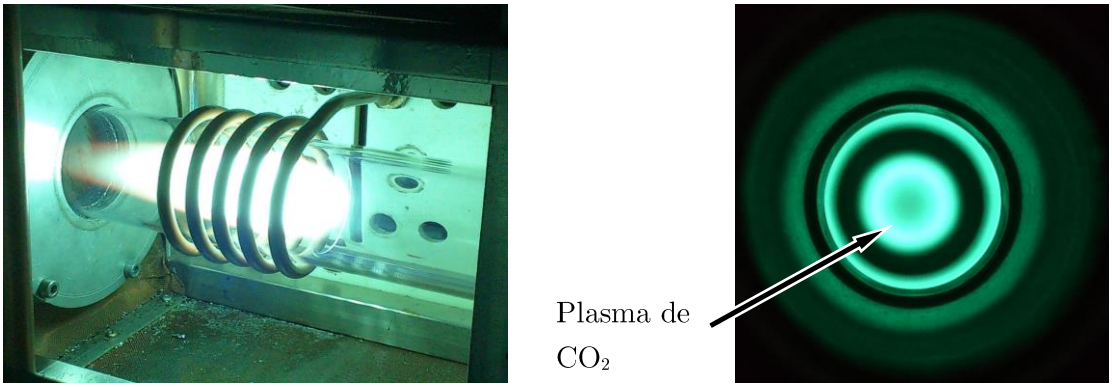


Figure I-3. Structure d'un plasma de CO_2 pur induit magnétiquement : à gauche, vue latérale ; à droite, la vue depuis l'amont de la zone de création permet d'apercevoir une structure annulaire.

Dans un tel plasma, les électrons sont excités par le champ magnétique, et transmettent une partir de leur énergie par collision aux lourds, qui montent à leur tour en énergie. Ces lourds alors excités en périphérie transmettent leur surplus d'énergie à leurs voisins par collision et via le rayonnement qu'ils émettent ; c'est ainsi que le reste du gaz, qui n'est initialement pas sensible à l'induction de la source (notamment la zone centrale), est amenée à température. La coquille devient alors rapidement une zone de plasma plus homogène en aval de la zone de création, en forme de dard. Les mesures sur les deux images de la zone lumineuse visible montrent que celle-ci mesure environ 5 cm de diamètre.

Le CORIA dispose d'une installation permettant d'injecter un courant d'une dizaine d'ampères dans une bobine cylindrique constituée de 5 spires. Le générateur délivre une tension réglable de plusieurs milliers de volts à une fréquence de 1,76 MHz. La zone de création est confinée dans un tube en quartz de 71 mm de diamètre interne et 79 mm de diamètre externe, et le plasma se détend ensuite dans une veine dont la pression est contrôlée et possédant des accès optiques déplaçables. La basse pression est créée et maintenue par un système de trois pompes. Le tout est présenté dans la Figure I-4.

L'injection de gaz en amont est illustrée en Figure I-5. Elle s'effectue via deux systèmes indépendants actionnés par des vannes asservies à des débitmètres massiques et contrôlées par ordinateur. Dans le cas d'un plasma de CO_2, l'injection centrale représente 15% du débit total de gaz injecté (0.35 $g.s^{-1}$) et permet de contrôler la position de la zone de création du plasma et éviter la destruction du système d'injection. L'injection périphérique se fait de manière tourbillonnante (CO_2 : 2.4 $g.s^{-1}$) possède plusieurs intérêts :

- Une majorité de gaz sera envoyée là où l'énergie électromagnétique est la plus importante, à savoir en proche paroi, assurant un bon couplage;
- L'injection tangentielle permet non seulement de stabiliser l'écoulement, mais aussi d'assurer un temps de passage suffisant au gaz frais très proche de la paroi pour assurer un refroidissement conséquent du tube en quartz et éviter des fontes/casses.

L'injection tangentielle est maintenue telle quelle grâce à un second tube de diamètre inférieur (64 mm interne) au tube externe principal (71 mm interne), et placé coaxialement afin de s'assurer que le plasma est bien symétrique. C'est aussi important pour l'exploitabilité des mesures que pour le comportement thermique des tubes de quartz : si le plasma se rapproche trop près d'un des tubes, celui-ci va indéniablement fondre ou casser, brisant le confinement et causant un arrêt automatique de la torche (détection de surintensité à l'anode du générateur). Le réglage du placement des tubes en quartz se doit donc d'être précis ; il s'effectue premièrement plasma éteint, en

regardant le placement des tubes dans l'axe, puis lorsque le plasma est allumé à faible puissance, un réglage plus précis est accompli en observant l'homogénéité du plasma produit et de sa détente dans le caisson.

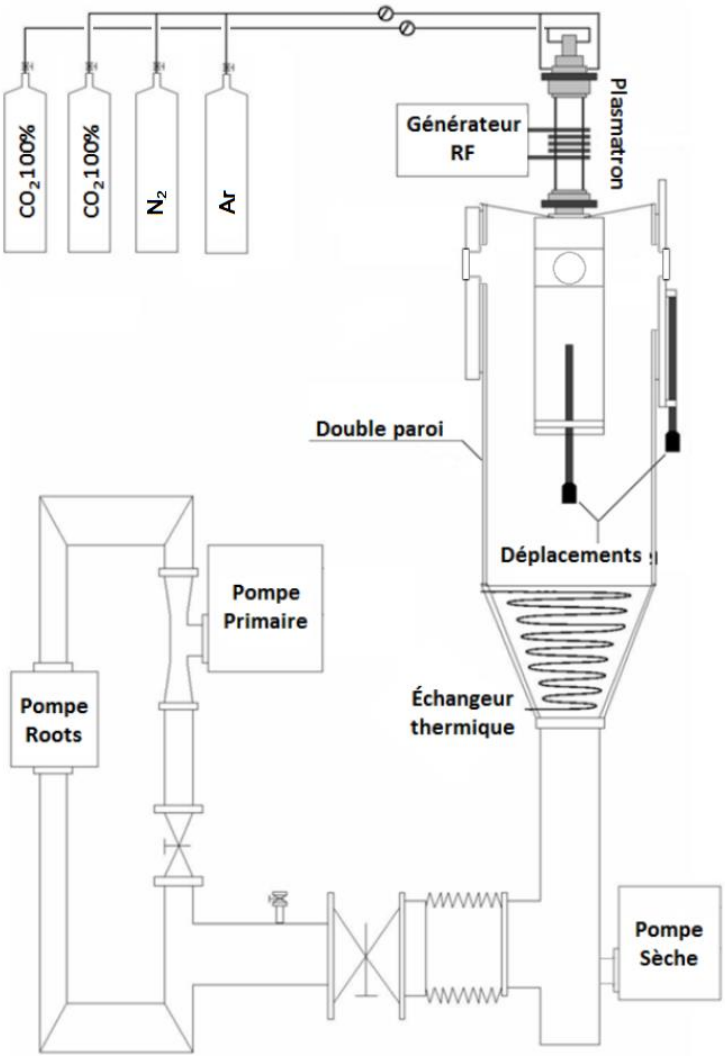


Figure I-4. Schéma général de l'installation SOUPLIN.

En ce qui concerne l'alimentation en CO_2, il est nécessaire de s'assurer de son état gazeux pour prévenir des dégâts sur les débitmètres. Pour cela un réchauffeur électrique est placé en sortie du détendeur du cadre de gaz.

L'allumage du plasma s'effectue en deux étapes :

- Après avoir injecté une petite quantité de gaz en périphérie (5% MFCA = 0,28 g/s), un faible champ magnétique est créé pour allumer un plasma de décharge.
- En augmentant la tension au générateur (jusqu'à 6,5 kV), le courant dans l'anode va progressivement monter jusqu'à subir un saut brusque : il faut alors simultanément régler le débit de gaz à sa valeur nominale pour éviter une surintensité et permettre l'allumage du plasma couplé.

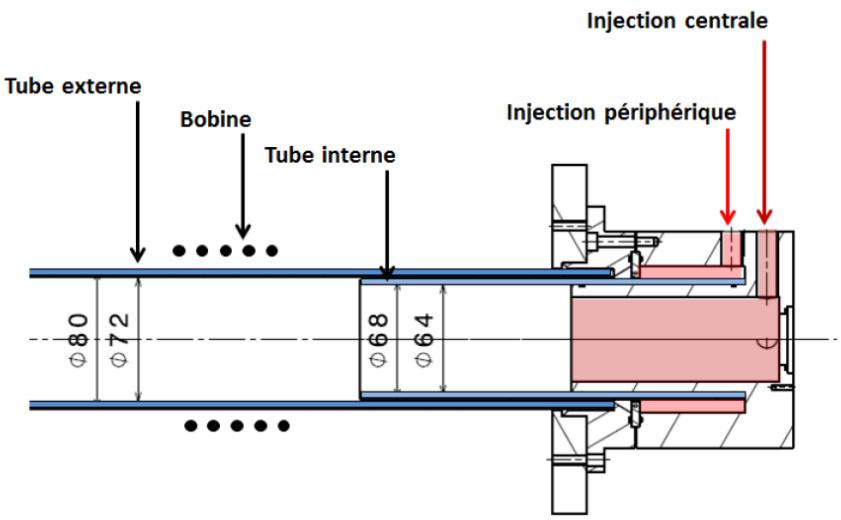


Figure I-5. Plan de la zone d'injection et de création du plasma [dimensions en mm].

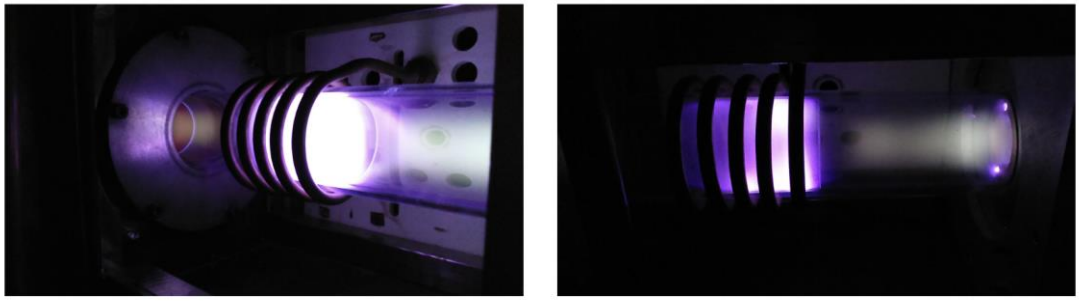


Figure I-6. Photographies du plasma de décharge de CO_2 pur.

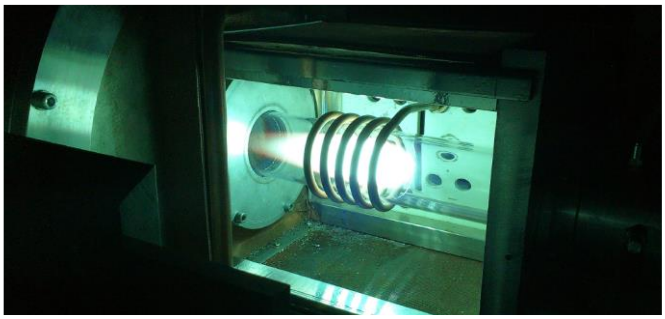


Figure I-7. Photographie du plasma couplé de CO_2 pur.

La veine d'essai dans laquelle le plasma vient se détendre est un cylindre de 80cm de diamètre intérieur et de 3m de long doté d'une double paroi en acier. Entre ces deux parois circule de l'eau nécessaire pour son refroidissement. Un échangeur thermique en aval permet de forcer le refroidissement du gaz avant l'arrivée dans les groupes de pompage. Le générateur RF est refroidi par un circuit d'eau déminéralisée et un

échangeur eau/eau. Afin de maintenir la veine d'essai à la faible pression d'étude désirée, trois pompes sont présentes. La pompe primaire (refroidie par huile et système secondaire d'eau) permet de descendre la pression à 100-150 Pa. La pompe Roots fonctionnant en ajout de la pompe primaire, permet encore de descendre afin d'atteindre quelques dizaines de Pascals de pression tout en maintenant un débit important. Une fois le plasma allumé, la Roots n'est plus nécessaire, et la pompe primaire permet alors d'atteindre une pression de fonctionnement de 1200 à 1500 Pa. Lorsque l'on veut atteindre des pressions plus élevées, comme c'est le cas pour les études récentes au laboratoire, il est nécessaire de passer à un autre groupe de pompage à refroidissement sec. La pression est ensuite ajustée an générant une perte de charge entre la veine et la pompe via une vanne quart de tour.

A une pression d'étude de 60 mbar, un débit massique de CO_2 de 2.4 $g.s^{-1}$ et une puissance électrique délivrée par le générateur de 45 kW, l'équation (I-3) nous permet d'estimer l'enthalpie spécifique du plasma à 9 $MJ.kg^{-1}$. L'approximation tient dans l'estimation des rendements introduits dans l'équation : η_{alim} est le rendement propre de l'alimentation (triode et bobine) et est estimé à 60%, tandis que η_{plasma} rend compte du couplage du plasma ainsi que des pertes par rayonnement (~20%) dans la zone de création. Les températures dans la zone de création sont de l'ordre de 1000K à la paroi de 8000K au centre de la zone [28].

$$h = \frac{P_{alim}\eta_{alim}\eta_{plasma}}{\dot{m}_{gaz}} \tag{I-3}$$

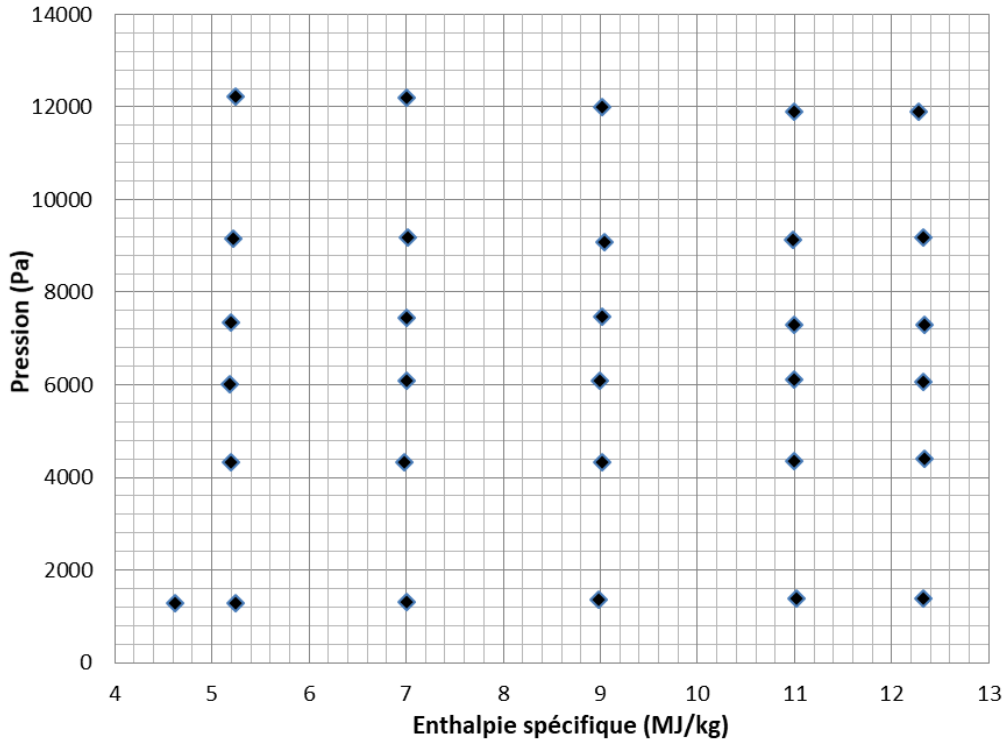


Figure I-8. Etendue des points de fonctionnement de l'installation SOUPLIN correspondant aux conditions dans le domaine de décélération par aérofreinage [29] de Schiaparelli.

En guise de résumé, la Figure I-1 illustre la plage de fonctionnement utilisée dans SOUPLIN, définie par la pression mesurée dans la veine et l'enthalpie spécifique dans le plasma dans la zone d'injection. Le débit de gaz total est quant à lui conservé constant à 2.4g.s^{-1}, tout comme les proportions injectées au centre et en périphérie.

La veine est dotée de 6 accès optiques circulaires de 80mm de diamètre : deux groupes de deux fenêtres sont placées de chaque côté de la veine. L'un des deux groupes est déplaçable en translation parallèle à l'axe du plasma grâce à son placement sur une paroi en queue-d'aronde, tandis que l'autre est fixe. La fenêtre du haut est également déplaçable de la même manière, tandis que l'ouverture du bas est fixe.

I.3. Présentation des sources laser

Les lasers forment un instrument important du travail de diagnostic optique, ainsi nous présentons en Annexe A. quelques principes de bases du laser, et nous détaillons ici les deux types de sources qui ont été utilisées dans notre étude.

I.3.1. Laser à cristal Nd:YAG

Les lasers solides sont un des types les plus connus en raison de la forte puissance atteignable. Le milieu amplificateur est alors un solide dont la matrice est un cristal ou un verre, et dans lequel un dopage en ions (Titane, Chrome, terres rares…) a été effectué pour pouvoir obtenir l'effet laser. Le laser Rubis est le premier exemple d'entre eux, avec les ions Chrome Cr^{3+} jouant le rôle de dopant. L'année suivante, des verres dopés aux terres rares ont été mis au point (Nd:Glass [30]) puis des grenats dopés avec ces mêmes terres rares. En 1964, le premier laser Nd:YAG apparaît : il se révèle rapidement adapté à des opérations de chirurgie telles que des chirurgies oculaires ou l'ablation de certains cancers (peau, nodules thyroïdiens, foie), mais aussi dans l'industrie métallurgique, la recherche avec le développement de techniques d'imagerie ou celui des pinces optiques pour la biologie.

Le cristal de Grenat d'Yttrium et d'Aluminium (donnant l'acronyme anglais YAG) qui forme la matrice du milieu amplificateur, est un cristal synthétique de structure cubique et de formule $Y_3Al_5O_{12}$. Pur, il ne peut pas donner lieu à une amplification optique ; cependant doper le cristal, en remplaçant quelques pourcents des ions Yttrium par des terres rares ou d'autres éléments, permet alors d'obtenir les propriétés désirées. Ainsi, le Nd:YAG, ou Néodyme-YAG, est un cristal YAG dopé avec moins de 3% molaires de Néodyme Nd_{3+}. Il est généralement pompé optiquement dans sa bande d'absorption la plus favorable autour de 808 nm, par exemple avec des lampes flash (au Krypton) ou des diodes laser, et émet alors un faisceau laser à 1064 nm. Il est utilisable en mode continu ou impulsionnel (*pulsé*) selon sa conception pour l'utilisation souhaitée. Les lasers pulsés sont déclenchés usuellement par commutation-Q (« Q-switching »)

lorsque l'inversion de population est idéale, ce qui permet d'obtenir des impulsions d'une grande puissance (de l'ordre de mégawatt ou la dizaine de mégawatt). Cependant il est possible de produire des impulsions par blocage de mode (« mode-locking ») dans le but d'obtenir de très courtes impulsions de l'ordre de la dizaine ou centaine de picosecondes [31] [32] [33]. Ils peuvent être utilisés dans leur longueur d'onde native infrarouge, mais ils sont aussi couramment doublés ou triplés pour obtenir respectivement un faisceau vert à 532 nm et ultraviolet à 355nm. Il existe également la possibilité de générer les quatrièmes et cinquièmes harmoniques [34] pour obtenir des faisceaux dans l'UV profond (respectivement 266 et 213 nm).

Dans le cas des études de diffusion Raman présentes dans ce mémoire, un laser Continuum Long Pulse White Cell est utilisé dans sa seconde harmonique à 532 nm. Il a été conçu pour produire une impulsion de 100 ns, avec une énergie de 750 mJ à 532nm, et un taux de répétition de 10 Hz. Le profil temporel de l'impulsion a été mesuré sur la captation des diffusions Rayleigh et Raman dans l'air à pression atmosphérique, et est illustré en Figure I-9. Il concorde avec les mesures du profil effectuées par de précédents utilisateurs de cette source [35] (courbe en rouge sur la figure), avec une enveloppe gaussienne perturbée par des hautes fréquences dues au pompage par des lampes flash.

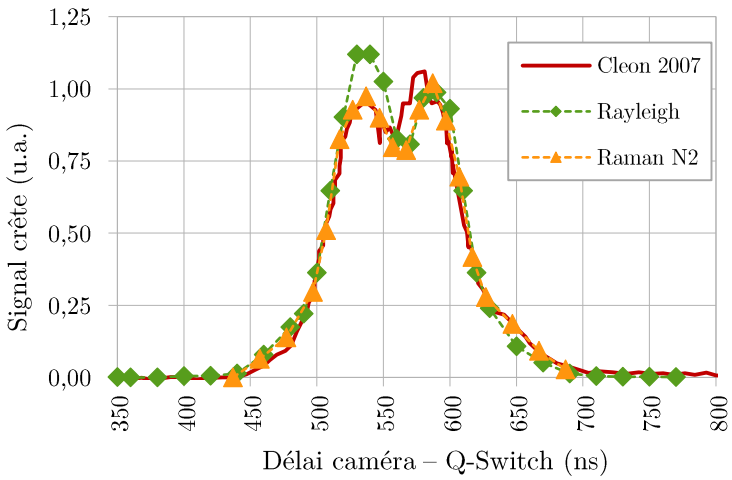


Figure I-9. Profil temporel du laser 532 nm. Largeur à mi-hauteur : 106.40 ns.

La Figure I-10 et la Figure I-11 nous renseignent sur la régularité tir-à-tir du laser en termes d'énergie par impulsion. Une première information, la durée minimale à respecter avant d'utiliser le laser est d'environ 20 minutes. Passé ce délai, la Figure I-11 nous donne une répartition gaussienne des énergies de tir autour d'une valeur moyenne de 512 mJ et un écart-type faible de 1.41%. Cet écart est issu d'une population d'échantillons pris entre 20 et 72 minutes après le début du démarrage du fonctionnement laser en mode *Q-switch* ; hors, sur ce temps, la moyenne subit une déviation de 504 à 516.5 mJ. Il est possible de modéliser le signal moyen par la somme d'une sinusoïde d'une période de 30 minutes et d'une droite de faible pente. Suite à cette modélisation de la moyenne, nous obtenons un écart-type plus faible de 1.20% (6.0mJ). Enfin, sur un temps

typique d'acquisition Raman, l'écart-type est autour de 1.27%. Dans tous les cas, tous ces écart-types sont inférieurs à la valeur du constructeur de 1.8%.

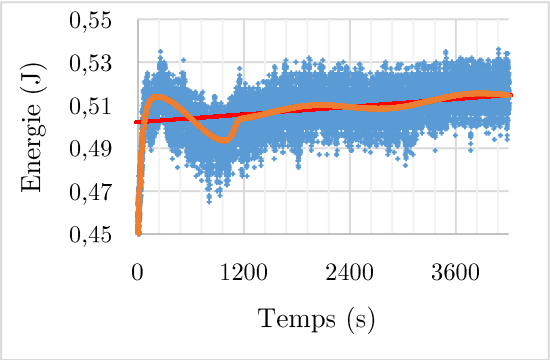


Figure I-10. Evolution temporelle typique du laser 532 nm. Le laser se stabilise typiquement après 20 minutes de fonctionnement.

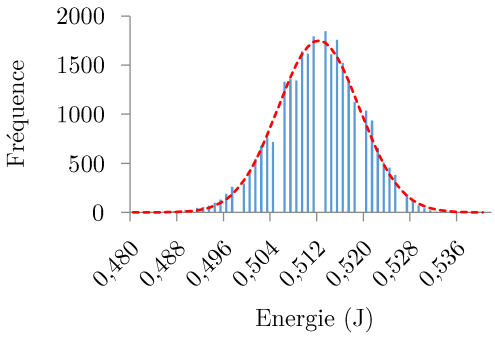


Figure I-11. Histogramme typique du laser 532 nm en fonctionnement stabilisé. Moyenne : 512 mJ ; écart-type : 7.2 mJ (1.40%) : échantillon : 52 minutes, 10 Hz.

La stabilité directionnelle tir-à-tir du laser a été vérifiée initialement par le constructeur avant la livraison du laser (2004). Lors de la visualisation récente du faisceau focalisé *in situ*, il n'a pas été repéré de déplacement du faisceau sur l'image.

Enfin, la répartition d'énergie du laser en sortie de source a été vérifiée en observant le motif provoqué par une impulsion sur un papier réactif. Plus le papier est noirci en un point, plus la densité d'énergie en ce point est importante. La Figure I-12 permet de valider l'hypothèse de répartition homogène de l'énergie sur l'ensemble de la section radiale. Il est possible d'utiliser un analyseur de faisceau pour obtenir des mesures quantitatives.

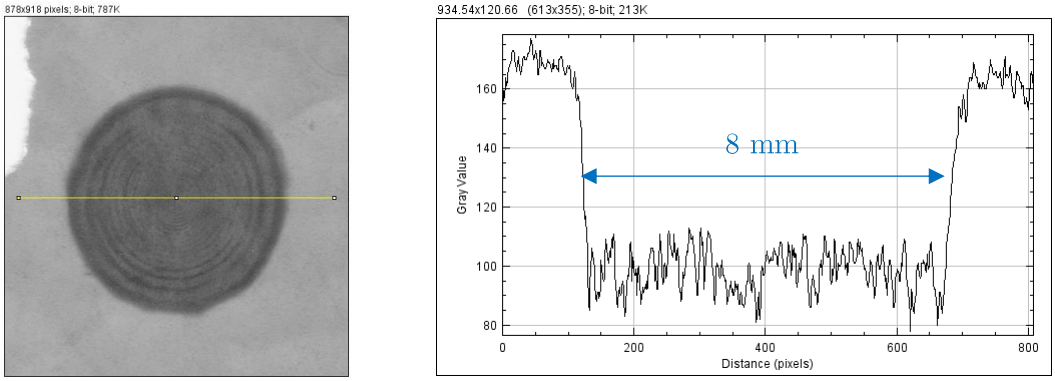


Figure I-12. Répartition spatiale de l'énergie du laser 532 en sortie de source : les niveaux de gris les plus bas correspondent à la plus haute énergie déposée sur le papier de test.

I.3.2. Lasers à colorants

Les lasers à colorant sont une catégorie de lasers dont le milieu amplificateur est une solution liquide composée d'un ou plusieurs colorants organiques et d'un solvant compatible. Le premier laser du genre a été présenté par Sorokin en 1966 [36]. Ces

colorants ont généralement une large plage d'émission, ce qui permet avec un dispositif adapté de régler finement la longueur d'onde qui sera amplifiée dans la cavité. L'avantage immédiat de cette technologie saute alors aux yeux : il est possible d'obtenir virtuellement n'importe quelle longueur d'onde tant qu'un colorant couvre la plage d'émission nécessaire. Un autre avantage apparaît si l'on peut régler la longueur d'onde sans modifier la direction du laser : celui de pouvoir balayer une plage de longueur d'onde avec le même montage optique. Le premier laser ajustable a été présenté la même année par Spaeth [37] avec différentes plages de fonctionnement entre 745 et 795 nm pour deux colorants. Aujourd'hui certains des colorants les plus connus sont :

- des rhodamines : rhodamine B (aussi appelée rhodamine 610, avec une plage de 585-610 nm pour une efficacité de conversion >5%), rhodamine 6G (ou rhodamine 590, avec une plage de 550-590 nm pour une efficacité de conversion >5%)
- des coumarines : coumarine 450 avec une plage d'émission autour de 450 nm
- des dérivés de la fluorescéine : par exemple avec une plage à 540-570 nm
- du DCM : plage à 620-690 nm ou 590-670 nm selon le solvant…

Il est alors observé des décalages ou des modifications importantes de ces courbes d'efficacité en fonction du solvant, de la concentration du colorant voire même des mélanges de colorants. Afin de régler la longueur d'onde du laser, il est fréquent d'utiliser des prismes, voire des réseaux diffractants qui permettent uniquement à la longueur d'onde sélectionnée de parcourir la cavité. Il est possible de pomper ce genre de lasers avec une lampe à arc, une lampe flash ou un autre laser ; il est fréquent d'utiliser la forte puissance d'un laser Nd:YAG à 355 nm ou à 532 nm lorsque le colorant absorbe fortement dans ces régions.

Nous présenterons plus en détail les trois lasers à colorants utilisés dans ce travail de thèse dans les chapitres où ils seront pertinents. Un résumé de la formation de la longueur d'onde approximative désirée pour chaque dispositif est présenté en Tableau I-1. Les chiffres noirs représentent les longueurs d'ondes intermédiaires dans chaque laser, et les chiffres rouges la longueur d'onde approximative finale.

Quantel TDL 90		Colorant : 80% R590 + 20% R610		
Nd:YAG	Doublé (faisceau de pompage)	ω	2ω	Mixage 2ω+1064
1064	532	575	287,5	226,34

Sirah PrecisionScan		Colorant : Coumarine	
Nd:YAG	Triplé (faisceau de pompage)	ω	2ω
1064	355	448	224,00

Quantel Q-Scan		Colorant : xx% LDS 698 + xx% DCM		
Nd:YAG	Doublé (faisceau de pompage)	ω	2ω	3ω (Mixage 2ω+ω)
1064	532	678	339	226,00

Tableau I-1. Présentation des lasers à colorants utilisés dans ce travail de thèse.

Chapitre II. ICOTOM

Cette seconde partie va détailler les développements effectués concernant les radiomètres ICOTOM embarqués lors de la mission ExoMars 2016.

II.1. Description des radiomètres

ICOTOM (Infrared CO-TwO Measurements) désigne un ensemble de radiomètres à bande étroite destinés à la mesure de signal radiatif dans des bandes caractéristiques d'émission du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone dans l'infrarouge. 12 radiomètres ont été conçus par Le Verre Fluoré pour le compte du CNES : six dotés de filtres de type B1 correspondant à la bande [4–5,2 µm], six autres dotés de filtres de type B2 correspondant à la bande [2,5–3,4 µm]. Dans le cadre de la mission Exomars 2016, six de ces radiomètres ont été intégrés dans trois modules de capteurs COMARS+ conçus par le DLR, à raison d'un radiomètre de chaque type par module. Ces COMARS+ ont été positionnés sur une ligne de sorte à déboucher en surface de l'arrière-corps de Schiaparelli, dans le but de quantifier l'importance du rayonnement infrarouge parvenant sur les boucliers arrière.

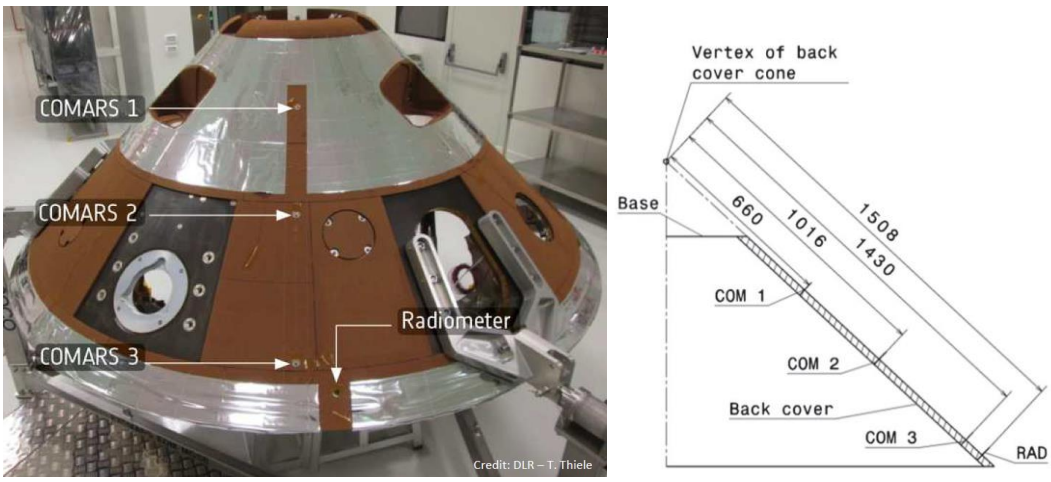


Figure II-1. Position des COMARS+ sur le bouclier arrière de Schiaparelli.

Chaque ICOTOM est composé d'un corps en titane cylindrique dans lequel est logée une fibre optique infrarouge haute température qui a pour but de collecter la lumière venant de l'environnement du bouclier thermique. La lumière collectée est alors amenée vers une lentille sphérique accolée à un détecteur photovoltaïque : le courant que celui-ci émet est alors proportionnel au flux de lumière reçu. Afin d'être sensible à une gamme de lumière pertinente pour la mesure, un filtre passe-bande est sélectionné puis logé entre

la fibre et la lentille. Les réponses spectrales du capteur complet fournies par le CNES sont illustrées en Figure II-3, accompagnées par les coefficients d'émission du CO et de CO_2 d'intérêt auxquels seront sensibles les radiomètres. Le capteur est également composé d'un thermocouple de type K dans le but de contrôler la température du capteur lors de la mesure.

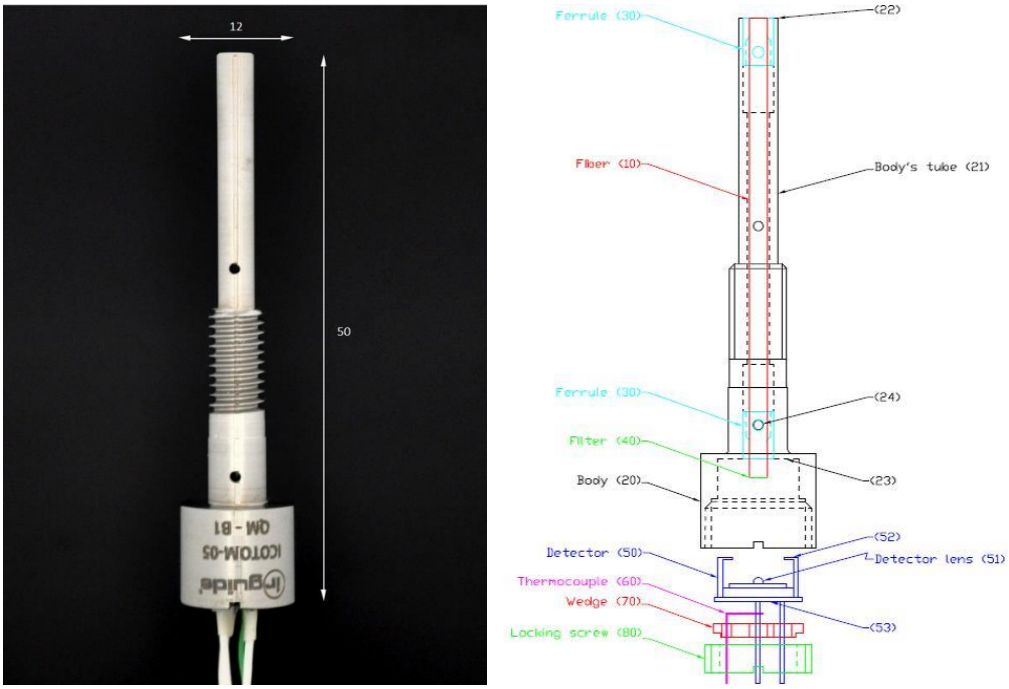


Figure II-2. Photographie et éclaté d'un radiomètre ICOTOM. (Crédits : Le Verre Fluoré)

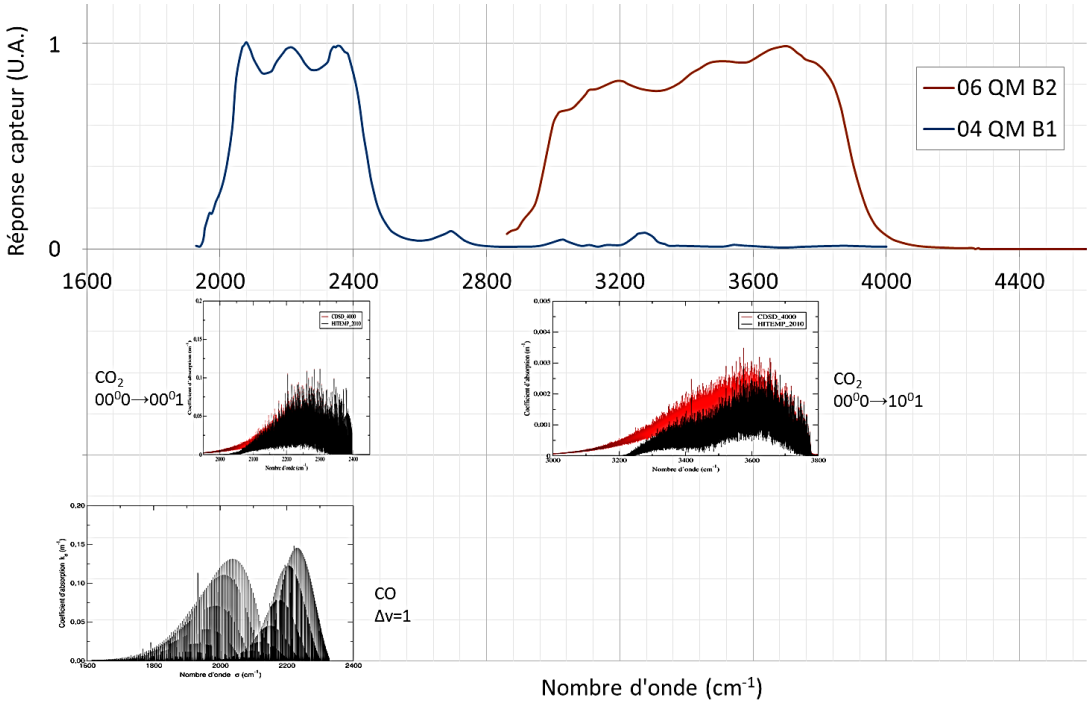


Figure II-3. Réponses spectrales des ICOTOM et position des bandes d'émission ciblées. (ICOTOM B1 : bande à 4,3 µm, ICOTOM B2 : bande à 2,7 µm)

Afin de permettre d'implanter les ICOTOM sur la soufflerie du CORIA, un dispositif de support a été conçu avec l'atelier du laboratoire ; ce dispositif doit remplir plusieurs missions : il doit pouvoir permettre un fonctionnement des capteurs à une température inférieure à 70°C, permettre le déplacement radial des radiomètres afin de varier la distance au jet, préserver l'étanchéité de la veine d'essai, et garantir l'accès aux fils de mesure.

Ce dispositif prend la forme d'une canne en acier inoxydable constituée d'un support taraudé destiné à l'accueil symétrique des deux radiomètres ICOTOM et de trois tubes concentriques permettant la circulation de l'eau de refroidissement. Un agrandissement de la partie avant recevant les radiomètres ICOTOM est présenté sur la Figure II-4, où le circuit d'eau est coloré en bleu et les emplacements des ICOTOM en gris. Sur cette figure, on note la présence sur la droite (en hachures denses) d'un masque amovible servant à réduire l'angle de collection de la lumière. Par la suite d'autres supports ont été créés pour les mesures sur un four de type corps noir, dont un refroidi par effet Peltier.

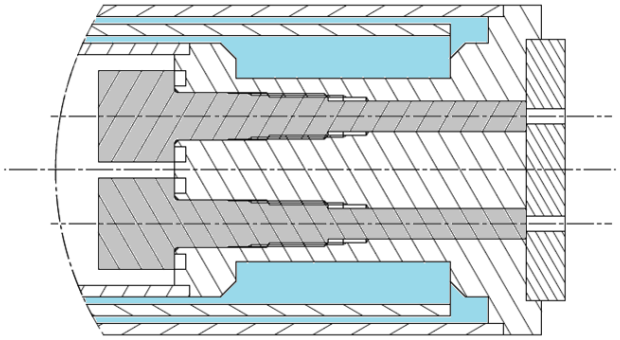


Figure II-4. Vue en coupe de l'extrémité de la canne supportant les ICOTOM (première campagne sur corps noir et campagne plasma).

L'entraxe des deux radiomètres ICOTOM est de 14 mm ; le montage garantit la conservation de la symétrie de la mesure par rapport au jet de plasma tant que les orifices de sortie des ICOTOM sont alignés verticalement. Une pièce supplémentaire, percée en regard des deux radiomètres ICOTOM, peut être vissée sur la face avant de la canne afin de limiter l'angle de collection de ceux-ci. L'étanchéité entre l'intérieur et l'extérieur de la veine d'essai est assurée au niveau des ICOTOM par deux joints en caoutchouc nitrile NBR. Des joints de même nature permettent de maintenir l'étanchéité lors du déplacement radial de la canne par rapport à la veine. La longueur totale de la canne étant de 430 mm, les fils de mesure de radiomètres ICOTOM ont été rallongés,

conformément aux instructions du CNES, de 300 mm afin de ne pas causer de problème d'impédance trop importante de ces fils.

Les ICOTOM sont reliés à un montage d'amplification du signal pour les tests en laboratoire, dont la sortie est reliée à une centrale d'acquisition MESUREX GL8X afin d'enregistrer les informations quantitatives de signal lumineux et de températures de capteur simultanément et en continu. En vol, ces informations sont récupérées par un module d'acquisition commun à l'ensemble des COMARS+ ainsi que le radiomètre « large bande » du DLR. Plus de détails sur ces systèmes embarqués en vol sont consultables dans cet article [5].

Il existe deux types d'ICOTOM différents caractérisés par leurs différentes bandes de sensibilité. Le type B1 possède une bande de sensibilité comprise entre 4,17 et 5,0 µm et cherche à observer le rayonnement provenant à la fois des bandes [Δv=1] de CO ainsi que les bandes [001→000] de CO_2. Le type B2 sera sensible à du rayonnement compris entre 2,6 et 3,36 µm, provenant des bandes [101→000] de CO_2.

En assemblant des couples d'ICOTOM composés chacun d'un radiomètre de type B1 et d'un autre de type B2, l'objectif est alors de quantifier quelle part de rayonnement provient de chacune des deux molécules, et dans les bonnes conditions et hypothèses, remonter à leurs populations dans l'écoulement, donnant ainsi un taux de dissociation CO/CO_2 qui s'avère intéressant au vu du peu de données sur les réactions de recombinaison de CO_2 et leurs conséquences sur le rayonnement infrarouge dans le milieu.

II.2. Etalonnages des ICOTOM et données de vol Exomars

II.2.1. Calcul de l'éclairement des ICOTOM

Afin de pouvoir relier les quantités de rayonnement reçu par un radiomètre et le signal produit en réponse, un étalonnage a été effectué à partir d'une source radiative de type corps noir. Il a pour cela été entrepris des mesures sur un four cylindrique thermostaté contenant un bloc d'acier : la petite ouverture disponible pour effectuer les mesures permet en effet au four d'être radiativement très proche d'un corps noir. La canne refroidie, qui maintient les radiomètres ICOTOM en place et à température convenable (<15°C), est placée de telle sorte que :

- L'angle de collection des capteurs pointe exclusivement vers l'intérieur du four.
- L'axe de symétrie de la canne corresponde à celui du four, et ce pour s'assurer que chaque radiomètre ICOTOM mesure le rayonnement venant de la même quantité de surface, et de surfaces de caractéristiques identiques.

Une vue générale du dispositif est présentée dans la Figure II-5.

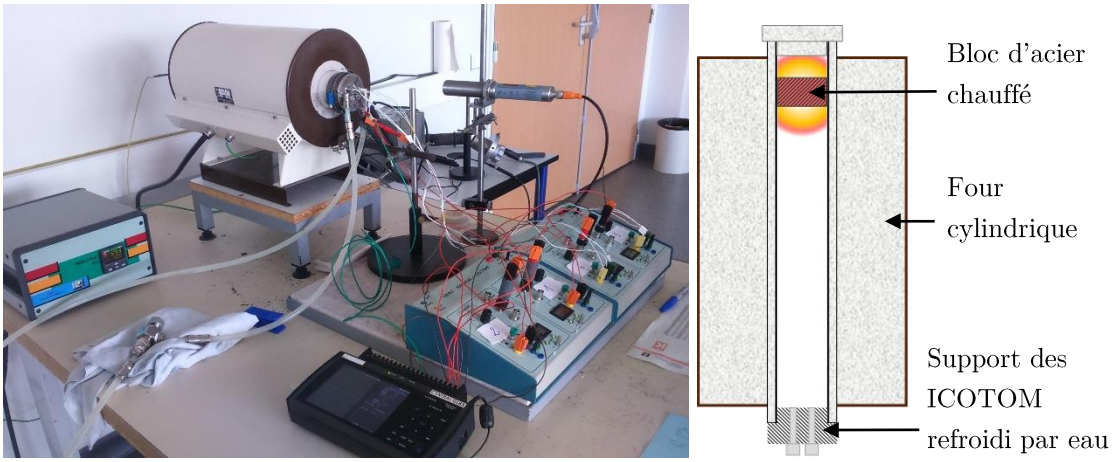


Figure II-5. Dispositif d'étalonnage des radiomètres ICOTOM sur le four corps noir, dont le schéma en coupe est présenté à gauche.

a) *Passage de température de corps noir à une densité de flux reçue par l'ICOTOM*

Nous cherchons à relier la densité de flux radiatif arrivant sur la face d'entrée d'un ICOTOM à son signal électrique mesuré. Grâce aux calibrations précédentes, la température du corps noir à laquelle est exposé l'ICOTOM est reliée au signal mesuré. Il faut donc établir le lien entre la température du corps noir émetteur, et la densité de flux radiatif qui tombe sur la face d'entrée des ICOTOM.

<u>NOTE :</u> Par la suite, toute grandeur physique X utilisée dans le cas d'un corps noir est annotée avec un petit zéro : X^0.

Le flux radiatif traversant une surface infinitésimale dS centrée autour du point M, venant d'un cône d'angle solide d Ω centré sur la direction $\overrightarrow{\Omega}$, dont la longueur d'onde est comprise entre λ et λ+dλ, est donné par :

$$d\Phi = \left(L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right)\ \overrightarrow{\Omega}\right) . (dS\,\vec{n})\ d\Omega\ d\lambda$$

$$d\Phi = \ L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right)\cos(\theta) dS\ \ d\Omega\ d\lambda$$

Ici, θ représente l'angle entre la direction $\overrightarrow{\Omega}$ et la normale $\vec{n}$ à la surface dS. $L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right)$ est par définition la luminance spectrique de la surface dS au point M et dans la direction $\vec{\Omega}$.

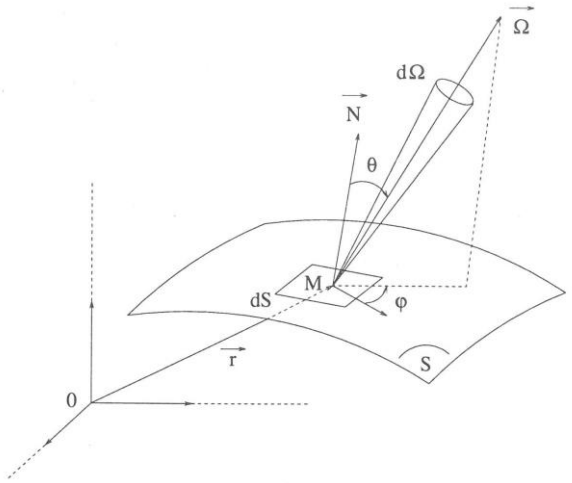


Figure II-6. Rayonnement à travers une surface dS. [38]

Ainsi, pour obtenir le flux qui traverse la face d'entrée S_f de la fibre des ICOTOM, il faut intégrer la relation précédente sur l'ensemble des directions angulaires, sur l'ensemble des points M de la surface d'entrée de la fibre, mais aussi sur l'intervalle de longueur d'onde étudié :

$$\Phi = \iint_{\substack{surface \\ S_f}} \iint_{\substack{angle \\ solide}} \int_{\substack{bande \\ spectrale}} L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right) \cos(\theta)\, d^2\Omega\, d\lambda\, d^2S \qquad \text{(II-1)}$$

Pour connaître $L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right)$, il faut donc relier la luminance traversant la surface de la fibre au point M à celle qui a traversé la surface émettrice $L_\lambda\left(N \in S_e, \overrightarrow{\Omega}\right)$. Pour cela l'équation de transfert radiatif permet de déterminer l'évolution de la luminance le long du chemin optique sur un déplacement infinitésimal dx dans un milieu donné :

$$L_\lambda(x + dx) - L_\lambda(x) = -k_\lambda(x)L_\lambda(x)dx + \varepsilon_\lambda(x)L_\lambda^0(x)dx$$

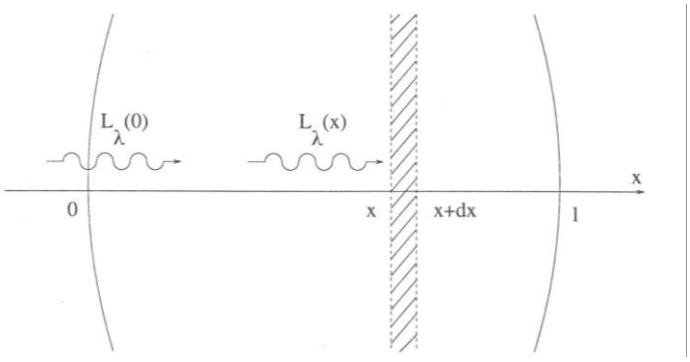


Figure II-7. Transfert radiatif à travers une couche d'épaisseur dx. [38]

Le premier terme du membre de droite représente la luminance absorbée, le deuxième celle émise par le milieu.

Dans notre cas, l'air étant considéré comme homogène ($k_\lambda(x) = constante$), non absorbant dans nos gammes de longueurs d'onde ($k_\lambda = 0$) et à l'équilibre thermique ($k_\lambda = \varepsilon_\lambda$), l'équation devient très simple : il n'a y aucune variation lors de la traversée de l'air ambiant. Autrement dit la luminance traversant la surface d'entrée de la fibre est la même que celle issue de la surface du corps émetteur :

$$L_\lambda\left(N \in S_e, \overrightarrow{\Omega}\right) = L_\lambda\left(M \in S_f, \overrightarrow{\Omega}\right)$$

Dans notre cas $L_\lambda\left(N \in S_e, \overrightarrow{\Omega}\right)$ est la luminance $L_\lambda^0(T)$ d'un corps noir à la température T et à la longueur d'onde λ; ce rayonnement possède deux propriétés : il est isotrope, et ne dépend pas du point émetteur.

Ainsi, on peut simplifier l'équation (II-1) :

$$\Phi = \iint_{S_f} \iint_{\Omega} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T) \cos(\theta)\, d^2\Omega\, d\lambda\, d^2S$$

$$\Phi = \iint_{S_f} d^2S \iint_{\Omega} \cos(\theta)\, d^2\Omega \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda$$

Or $d\Omega = \sin(\theta)\, d\theta\, d\varphi$; en considérant pour angle solide un cône de demi-angle α, on obtient :

$$\Phi = S_f \int_{\theta=0}^{\alpha} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \cos(\theta)\sin(\theta)\, d\theta\, d\varphi \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda$$

$$\Phi = S_f \quad \pi\, sin^2(\alpha) \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda$$

La loi de Planck, dont certaines isothermes sont illustrées en Figure II-8, permet d'exprimer la luminance spectrique d'un corps noir à la température T et à la longueur d'onde λ en $W.m^{-2}.sr^{-1}.m^{-1}$:

$$L_\lambda^0(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/\lambda kT} - 1} \qquad \text{(II-2)}$$

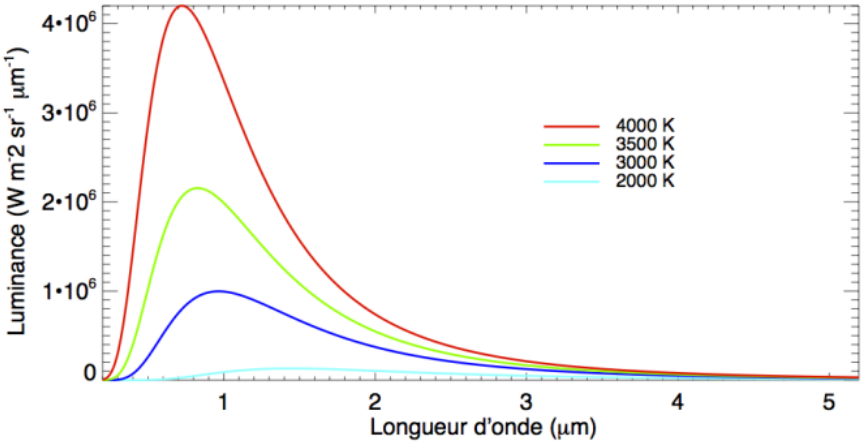


Figure II-8. Luminance du corps noir selon la loi de Planck.

Le corps noir et l'air sont des milieux homogènes, donc les rayonnements tombant sur deux points différents de la surface d'entrée sont identiques. Ainsi pour obtenir la densité de flux I_ϕ arrivant sur la surface d'entrée des ICOTOM, il suffit donc de diviser le flux Φ par la surface d'entrée S_f :

$$I_\phi = \frac{\Phi}{S_f} = \pi\, sin^2(\alpha) \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda$$

Ainsi, en combinant l'étalonnage fait précédemment et l'équation (II-2), on peut relier le signal mesuré à la densité de flux radiative dans un cône de demi-angle α.

b) *Astuce de calcul pour le programme de conversion*

Plutôt que d'utiliser la loi de Planck et intégrer la luminance sur la bande spectrale voulue pour obtenir ce que l'on cherche, on peut utiliser deux propriétés intéressantes du corps noir : l'isotropie de son rayonnement et la loi de Stefan.

Introduisons premièrement la notion d'exitance spectrique M_λ, qui est la somme sur l'ensemble des directions de la luminance :

$$M_\lambda(M) = \int_{hémisphère} L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right) \cos(\theta)\, d\Omega$$

$$M_\lambda(M) = \int_{\theta=0}^{\pi/2} \int_{\varphi=0}^{2\pi} L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right) \cos(\theta) \sin(\theta)\, d\theta\, d\varphi$$

Le caractère homogène et isotrope du rayonnement du corps noir permet de simplifier l'expression de l'intégrale comme suit :

$$M_\lambda^0(\lambda, T) = \pi\, L_\lambda^0(\lambda, T) \qquad \text{(II-3)}$$

La notion d'exitance totale désigne quant à elle la somme sur l'ensemble du spectre de l'exitance spectrique :

$$M(M) = \int_{0}^{+\infty} M_\lambda(M) d\lambda$$

$$M(M) = \int_{\lambda=0}^{+\infty} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \int_{\varphi=0}^{2\pi} L_\lambda\left(M, \overrightarrow{\Omega}\right) \cos(\theta) \sin(\theta)\, d\theta\, d\varphi\, d\lambda$$

La loi de Stefan est issue de l'intégration de la loi de Planck sur l'ensemble du spectre dans le cas particulier du corps noir et donne un résultat très simple à exploiter :

$$M^0(\mathrm{T}) = \sigma T^4$$

Selon le *Committee on Data for Science and Technology* (CODATA), la constante de Stefan-Boltzmann σ a pour valeur $5{,}670367.10^{-8}$ µm.K.

Introduisons maintenant la fonction clé sui va nous servir dans le programme de calcul : la fraction d'exitance F. Celle-ci désigne, comme son nom l'indique, le rapport de la contribution à l'exitance totale entre zéro et une longueur d'onde donnée ramenée sur l'exitance totale :

$$F\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_{max}}\right) = \frac{\int_0^{\lambda_1} M_\lambda^0(\lambda, T) d\lambda}{\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda, T) d\lambda}$$

Elle est exprimée en fonction d'une variable réduite $\frac{\lambda_1}{\lambda_{max}}$, où λ_{max} désigne la longueur d'onde correspondant au maximum de la luminance du corps noir à une température donnée (maxima des courbes illustrées en Figure II-8). Propriété notable du corps noir, cette longueur d'onde λ_{max} est elle aussi aisément calculable grâce à la loi du déplacement de Wien qui stipule que :

$$\lambda_{max} T = b$$

Toujours selon le CODATA, cette constante b a pour valeur 2897,7729 µm.K. L'intérêt d'utiliser cette variable réduite tient dans le fait que cette fonction devient tabulable.

Ainsi :

$$\text{(II-3)} \Rightarrow \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda = \frac{1}{\pi} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} M_\lambda^0(T)\, d\lambda$$

$$= \frac{1}{\pi} \left(\int_{0}^{\lambda_2} M_\lambda^0(T)\, d\lambda - \int_{0}^{\lambda_1} M_\lambda^0(T)\, d\lambda \right)$$

$$= \frac{1}{\pi}\left(\frac{\int_0^{\lambda_2} M_\lambda^0(T)\, d\lambda - \int_0^{\lambda_1} M_\lambda^0(T)\, d\lambda}{\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda}\right)\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda$$

$$= \frac{1}{\pi}\left(\frac{\int_0^{\lambda_2} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda}{\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda} - \frac{\int_0^{\lambda_1} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda}{\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda}\right)\int_0^{+\infty} M_\lambda^0(\lambda,T) d\lambda$$

$$\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L_\lambda^0(T)\, d\lambda = \frac{1}{\pi}\left(F\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_{max}}\right) - F\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_{max}}\right) \right) \sigma T^4$$

Notre densité de flux recherchée est donc donnée par :

$$I_\phi = sin^2(\alpha)\left(F\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_{max}}\right) - F\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_{max}}\right)\right)\sigma T^4$$

Tant que les ICOTOM reçoivent un rayonnement de corps noir provenant d'une surface de température uniforme, la forme de cette surface n'influe pas sur l'éclairement des ICOTOM. Les ICOTOM ayant un cône d'acceptance de demi-angle α=17,5°, cet éclairement E s'écrit sous la forme suivante.

$$E = I_\phi = \pi \sin^2 \alpha \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} L°_\lambda\, d\lambda = \pi \sin^2 \alpha \int_{\sigma_1}^{\sigma_2} L°_\sigma\, d\sigma \qquad \text{(II-4)}$$

$L°_\lambda$ et $L°_\sigma$ représentent les luminances spectriques du corps noir respectivement par unités de longueur d'onde et de nombre d'onde. [λ_1, λ_2] et [σ_1, σ_2] représentent les plages d'intégration correspondant aux bornes des filtres des ICOTOM respectivement en unités de longueur d'onde et de nombre d'onde.

LVF n'a fourni qu'un étalonnage des ICOTOM en température de corps noir mais des calculs ont été effectués par le DLR et au CNES. En 2017 et pour unifier les calculs, J.Annaloro propose la définition suivante des bornes de longueur d'onde pour les filtres des ICOTOM : [4,17–5 µm] pour le type B1 et [2,6–3,36 µm] pour le type B2. Le Tableau II-2 regroupe les différentes gammes avec leurs valeurs en micromètres et en centimètres inverses.

B1			**B2**		
Source	**λ_1- λ_2**	**σ_1- σ_2**	**Source**	**λ_1- λ_2**	**σ**
CNES	4,2-5 µm	2000-2380 cm^{-1}	CNES	2,6-3,33 µm	3000-3850 cm^{-1}
DLR	4,1-5,1 µm	1961-2439 cm^{-1}	DLR	2,5-3,3 µm	3030-4000 cm^{-1}
Nouvelle définition CNES (J. Annaloro)	4,17-5 µm	2000-2398 cm^{-1}	Nouvelle définition CNES (J. Annaloro)	2,6-3,36 µm	2976-3846 cm^{-1}

Tableau II-2. Différentes gammes utilisées pour les calculs d'éclairement correspondants aux filtres de type B1 et B2.

En utilisant la gamme dernièrement définie pour l'intégration de la luminance spectrale ([4,17–5 µm] pour le type B1 et [2,6–3,36 µm] pour le type B2) et la relation (II-4), les valeurs d'éclairement calculées et retenues sont celles présentées dans le Tableau II-3.

T (K)	B1 (kW/m2)	B2 (kW/m2)
300	0,000405	1,42E-05
400	0,00541	0,000679
500	0,0259	0,00715
600	0,0741	0,0349
700	0,158	0,109
800	0,279	0,259
900	0,438	0,508

Tableau II-3. Calculs d'éclairement réalisés pour ce rapport : $E = \pi \sin^2 \alpha \, L°(\lambda_1, \lambda_2)$

Nous pouvons ainsi conclure plusieurs choses. Les valeurs de l'éclairement $E = \pi \sin^2 \alpha \, L°(\lambda_1, \lambda_2)$ dépendent des bornes en longueur d'onde des filtres définies dans les différents rapports. Les calculs de luminance, validés par l'Institut Pascal, ne reproduisaient pas les calculs CNES et DLR. Suite aux échanges CORIA-CNES, les bornes officielles ont été redéfinies pour donner les valeurs suivantes : B1 : [4,17 ; 5 µm] et B2 : [2,6 ; 3,36 µm]. Pour la plus haute température de corps noir (environ 900 K), les rapports sont, pour le CNES de 0,94 pour B1 et 1,6 pour B2, pour le DLR de 1,03 pour B1 et de 1,07 pour B2.

II.2.2. Etalonnage des ICOTOM en courant

a) *DLR – Montage COMARS+*

Les ICOTOM ont été étalonnés en tension et en courant une fois montés sur les modules COMARS+ avec les circuits électroniques d'amplification associés. Les signaux ICOTOM sont donnés en pourcentage du maximum de la tension de sortie (5 V). Les caractéristiques tension-courant sont des droites comme le montre la Figure II-9. Sur ces figures, la tension, donnée en volts incluent un offset de l'ordre de 0,65V.

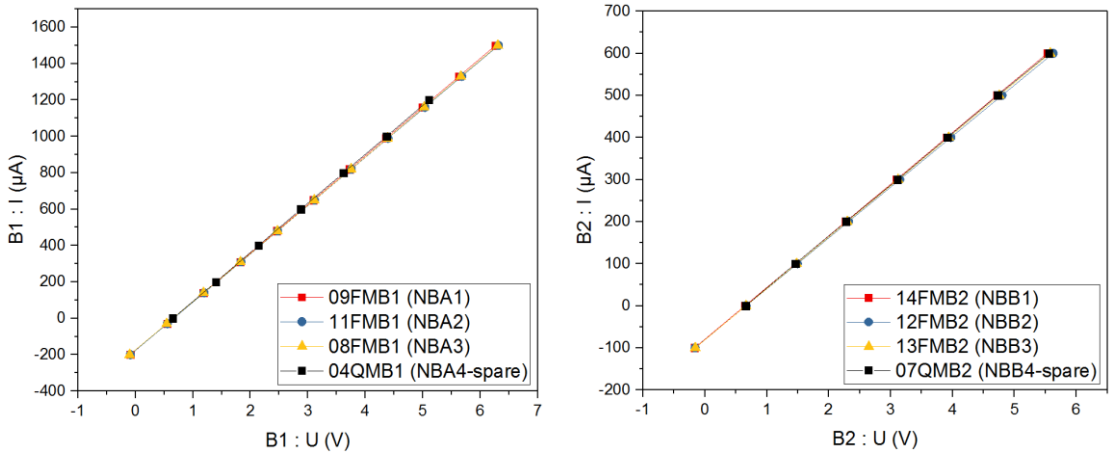


Figure II-9. Etalonnage tension-courant des ICOTOM de vol et de secours avec l'électronique des modules COMARS+. Etalonnage réalisée par le DLR pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).

Pour une application de calcul et de conversion, il est possible de produire une équation affine pour chaque ICOTOM étalonné par le DLR :

09FMB1 : I(µA) = 267,59*U(V) - 177,25 14FMB2 : I(µA) = 122,86* U(V) - 79,487

11FMB1 : I(µA) = 265,32* U(V) - 176,94 12FMB2 : I(µA) = 120,96* U(V) - 80,708

08FMB1 : I(µA) = 265,4* U(V) - 174,64 13FMB2 : I(µA) = 122,14* U(V) - 81,143

04QMB1 : I(µA) = 269,23* U(V) - 175,77 07QMB2 : I(µA) = 122,38* U(V) - 79,714

b) LVF – Montage avec amplificateur CNES

Lors des étalonnages réalisés par LVF, le courant délivré par les ICOTOM était converti en tension par l'intermédiaire des amplificateurs fournis par le CNES. Pour remonter au courant délivré par les ICOTOM afin d'effectuer des comparaisons avec l'étalonnage du DLR, il faut prendre en compte la résistance interne des ICOTOM et la résistance de charge de l'ampli. Le rapport du CNES donne les valeurs des résistances internes des ICOTOM : R_i=580 Ω pour les ICOTOM de type B1 et R_i=28k Ω pour les ICOTOM de type B2. Lors de l'étalonnage par LVF les résistances de charge étaient R_{load}=150 Ω pour l'amplificateur des ICOTOM de type B1 et R_{load}=27,4 Ω pour l'amplificateur des ICOTOM de type B2. Ces résistances ont été modifiées par le CNES après l'étalonnage (respectivement 8,25 Ω et 18,2 Ω), en accord avec le DLR qui a appliqué les mêmes modifications ; c'est un détail d'importance pour la comparaison.

Le courant s'exprime simplement par la loi d'Ohm en utilisant la résistance équivalente ; la tension doit être divisée par le gain d'amplification qui est réglable :

$$I(\mu A) = 1000 * \frac{U(mV)}{Gain}\left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_{load}}\right)$$

Ce qui donne pour un gain 100 utilisé lors de l'étalonnage par LVF:

$I(\mu A) = 0{,}0839 * U(mV)$ pour les ICOTOM de type B1 ;

$I(\mu A) = 0{,}3707 * U(mV)$ pour les ICOTOM de type B2.

Ainsi, la conversion en courant de sortie des ICOTOM permet la comparaison des données d'acquisition DLR / LVF.

II.2.3. Signaux de sortie des ICOTOM face à un corps noir

Une fois les signaux d'étalonnage de LVF et le DLR convertis en courant de sortie des ICOTOM, ces courants peuvent être directement comparés pour des conditions expérimentales similaires. Pour mémoire, le DLR utilise une plaque de cuivre chauffée d'émissivité égale à 1 (corps noir étendu) pour ses étalonnages entre 300 et 600°C environ, sachant que la température des capteurs des radiomètres ICOTOM est supposée égale à 20°C. LVF utilise un corps noir étendu pour ses étalonnages à basses températures (inférieures à 300°C) et un corps noir géométrique (à cavité) équipé d'une canne optique pour ses étalonnages entre 300 et 1000°C. Ce sont ces mesures valeurs qui sont reproduites ici. LVF a fait varier la température des capteurs des radiomètres ICOTOM entre 15 et 45°C. Ce sont les mesures pour une température de capteur de 20°C qui sont reproduites et comparées avec celles du DLR.

a) *Etalonnage DLR*

La Figure II-10 montre les étalonnages du courant de sortie des différents ICOTOM en fonction de la température du corps noir à laquelle ils sont exposés les uns par rapport aux autres. On notera que chaque ICOTOM a un étalonnage qui lui est particulier, que les ICOTOM 08FMB1 et 09FMB1 et 08FMB1 ont des comportements très proches et que la dispersion est beaucoup plus faible pour les ICOTOM de type B2.

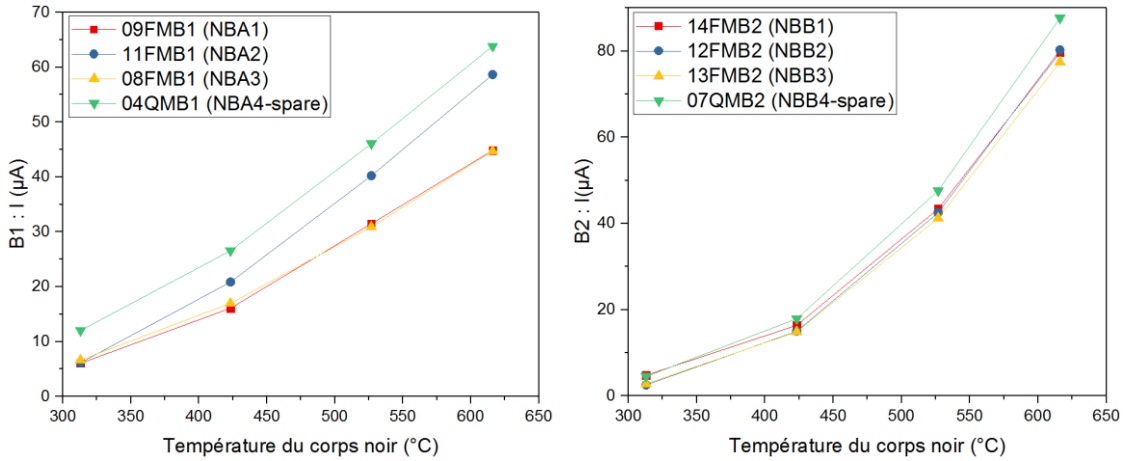


Figure II-10. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par le DLR pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).

b) Etalonnage LVF

La Figure II-11, représentant les étalonnages de LVF, confirment qualitativement les observations effectuées sur les étalonnages du DLR.

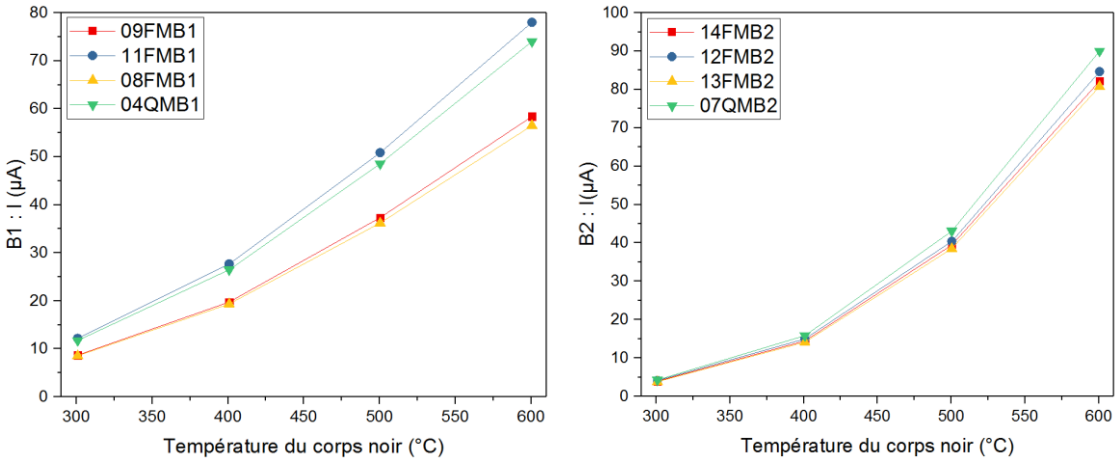
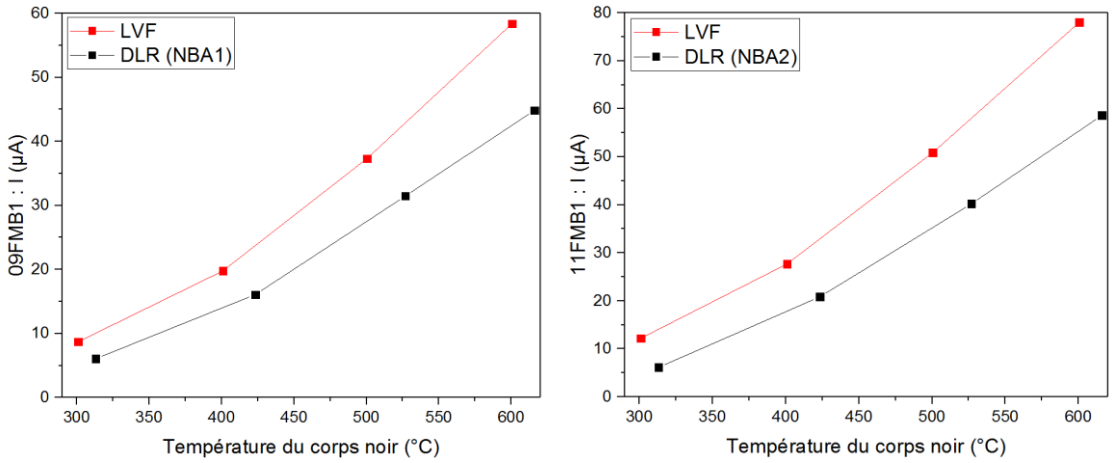


Figure II-11. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par LVF pour les ICOTOM de type B1 (gauche) et B2 (droite).

c) Comparaison LVF/DLR pour chaque ICOTOM (modèles flight et spare)

La comparaison quantitative des deux étalonnages peut se faire visuellement grâce à la Figure II-12 pour les ICOTOM de type B1 et la Figure II-13 pour les ICOTM de type B2. Les écarts entre les deux étalonnages croissent en valeurs absolues avec la température de corps noir. Ces écarts sont nettement plus importants pour les ICOTOM de type B1 (écart maximum : 30%) que pour les ICOTOM de type B2 (écart maximum : 15%). Il convient de garder à l'esprit que les études de LVF ont montré qu'autour de 20°C, une variation de 5°C de la température du capteur entraîne une variation de 5% du signal de sortie.



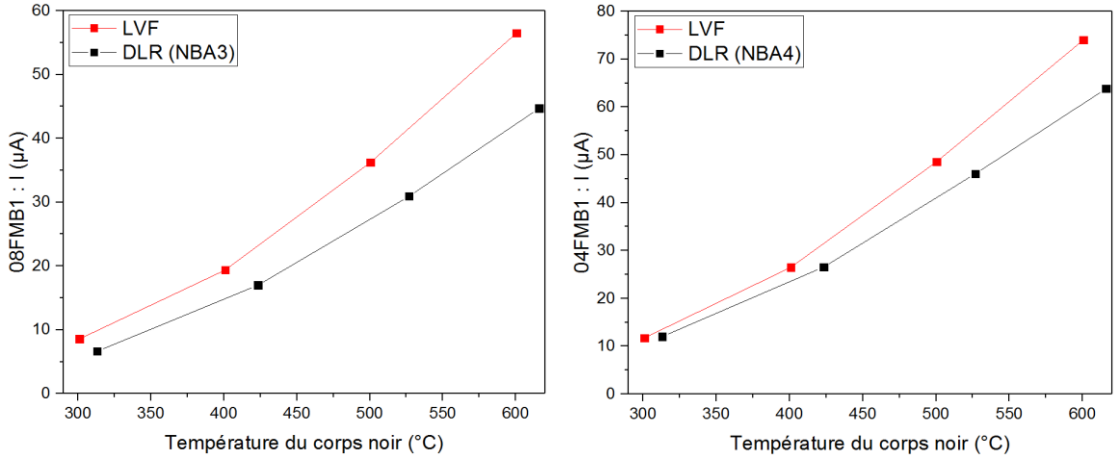


Figure II-12. Etalonnage du courant de sortie des ICOTOM en fonction de la température du corps noir auquel ils sont exposés. Etalonnage réalisée par LVF pour les ICOTOM 09FMB1-NBA1 (haut gauche), 11FMB1-NBA2 (haut droite), 08FMB1-NBA3 (bas gauche) et 04FMB1-NBA4 (bas droite).

II.2.4. Influence de la température du capteur sur les signaux ICOTOM

Les données de vol montrent que la température des capteurs pendant la phase où des mesures ont pu être récupérées était de -27°C. Ce cas a été peu étudié avant la mission Exomars. Seul un jeu d'ICOTOM QM non spare (05QMB1 et 06QMB2) avait été testé par LVF entre -60 et +60°C face à un corps noir de température 500°C. Les modèles de vol et de secours avaient été testés pour des températures positives entre 15 et 45°C. Après la mission, le DLR a réalisé une série de mesures, sur le jeu d'ICOTOM de secours QM spare (04QMB1 et 07QMB2) entre -30 et +45°C pour trois valeurs de températures de corps noir (300, 400 et 500°C).

Les résultats de ces étalonnages sont compilés dans les figures Figure II-13 et Figure II-14 de manière absolue et dans les figures Figure II-15 et Figure II-16 de manière normalisée. Dans ces figures, les résultats pour les ICOTOM de type B1 seront à gauche et ceux pour les ICOTOM de type B2 seront à droite.

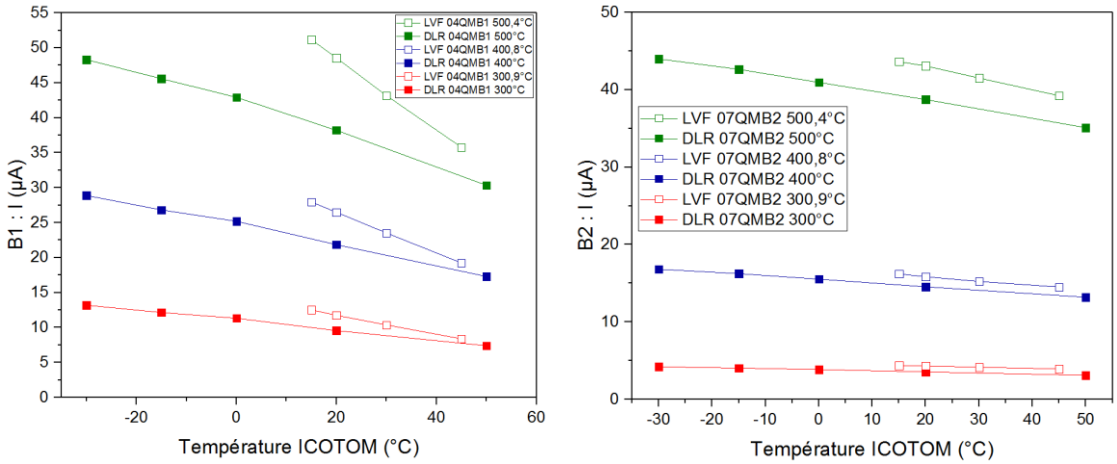


Figure II-13. Etalonnages du courant de sortie des ICOTOM 04QMB1 (gauche) et 07QMB2 (droite) réalisés au DLR et par LVF en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.

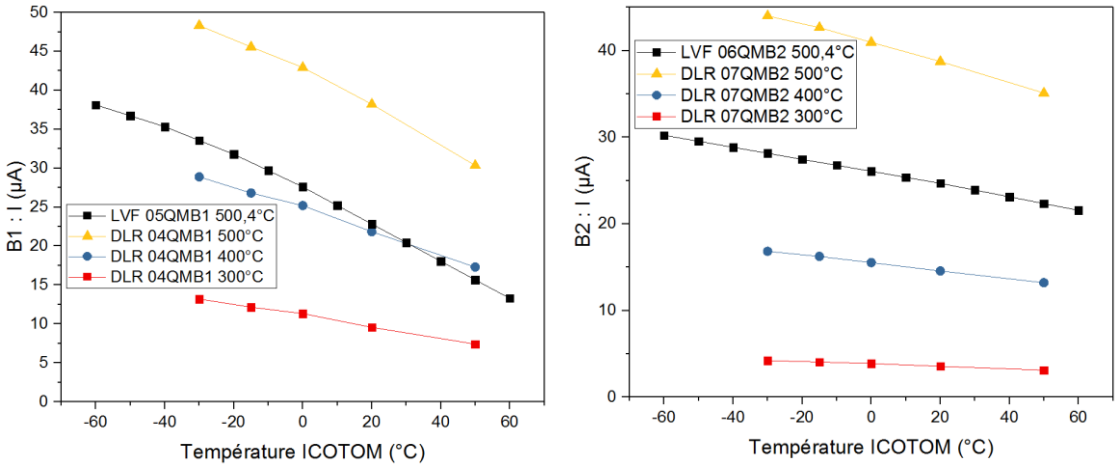


Figure II-14. Etalonnages du courant de sortie des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et 05QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR et 06QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.

La Figure II-13 compare les étalonnages des ICOTOM de secours (04QMB1 et 07QMB2) par LVF et le DLR pour des températures de capteurs positives. Il avait déjà été remarqué que les étalonnages pouvaient être différents entre LVF et le DLR notamment pour les ICOTOM de type B1. Cette figure le confirme en particulier pour les basses températures de capteur puisque l'écart est d'autant plus fort que la température du capteur est faible pour les ICOTOM de type B1. Cette tendance ne se retrouve pas pour les ICOTOM de type B2 où les écarts, d'ailleurs plus faibles, restent constants quelle que soit la température du capteur. Dans les deux cas, le signal de sortie des ICOTOM diminue avec la température du capteur.

Seuls les ICOTOM 05QMB1 et 06QMB2 ont été testés par le LVF pour des températures de capteur négatives. La Figure II-14 reproduit de nouveau les mesures faites par le DLR sur les ICOTOM de secours 04QMB1 et 07QMB2 avec ces tests de LVF réalisés pour une température de corps noir d'environ 500°C. Les deux jeux de signaux ne pas directement comparables, même pour la même température de corps noir, puisque chaque ICOTOM a son propre étalonnage.

Les mêmes données mais normalisées par une valeur de référence à 20°C (température de capteur) permet à la fois de comparer le comportement des ICOTOM entre eux pour un même étalonnage et de comparer les deux étalonnages du DLR et de LVF. C'est l'objet de la Figure II-15.

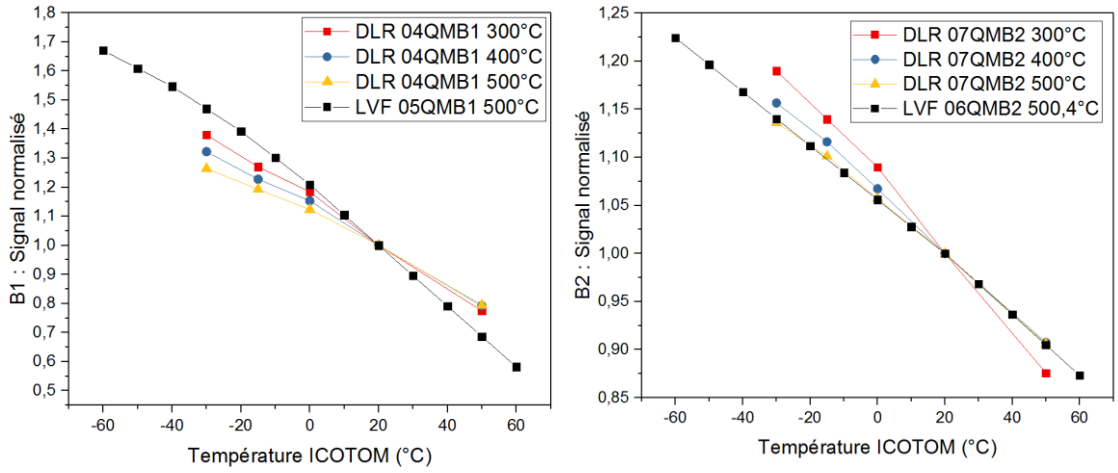


Figure II-15. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et 05QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR et 06QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.

Les mesures du DLR montrent que la dépendance du courant de sortie à la température du capteur est également fonction de son éclairement (donc dans les étalonnages de la température du corps noir). La normalisation des signaux permet de clairement visualiser ce phénomène. Il est possible de modéliser cette dépendance en faisant intervenir l'écart entre la température du corps noir et une température de référence.

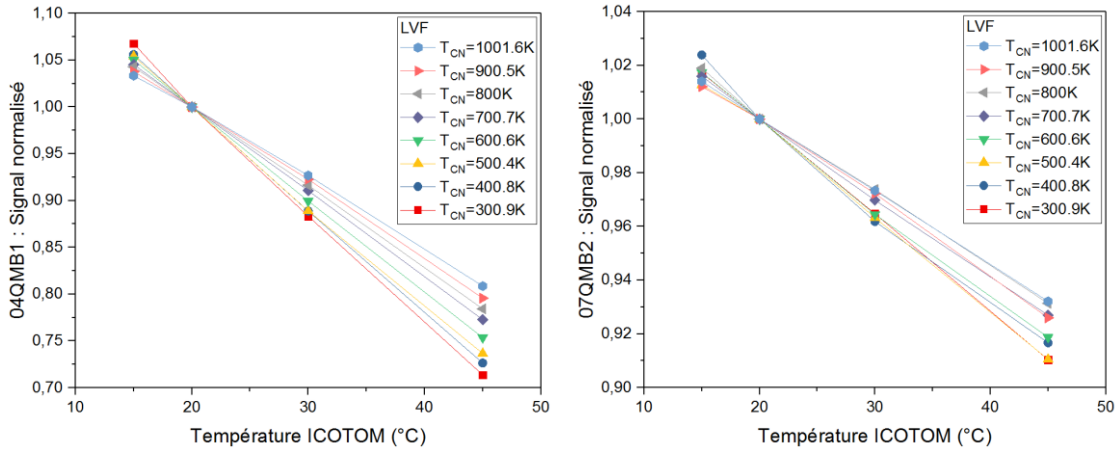


Figure II-16. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par LVF (gauche) et 07QMB2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.

Cet effet se retrouve sur une gamme de températures de corps noir plus étendue sur les mesures effectués par LVF pour des températures de capteur positives en utilisant les ICOTOM de secours 04QMB1 et 07QMB2 (Figure II-16). Des courbes similaires peuvent être obtenues pour les modèles de vol. L'évolution du signal de sortie normalisé

est très régulier avec la température de capteur et l'éclairement pour l'ICOTOM 04QMB1 ce qui est cependant moins vrai avec l'ICOTOM 07QMB2.

Le deuxième enseignement à tirer découle de la comparaison des expériences faites au DLR et par LVF sur une large plage de températures de capteur (Figure II-15). L'évolution avec la température du capteur semble dépendre également du numéro de série du capteur. Pour une même température de corps noir, les courbes d'évolution du signal de sortie normalisé avec la température du capteur sont en effet différentes pour l'ICOTOM 04QMB1 (mesures du DLR) et pour l'ICOTOM 05QMB1 (mesures de LVF). De plus le signal de sortie des ICOTOM de type B2 est moins sensible à la température du capteur que dans le cas des ICOTOM de type B1. Qui plus est, les évolutions concernant les ICOTOM 07QMB2 (mesures du DLR) et 06QMB2 (mesures de LVF) sont pratiquement confondues laissant penser que tous les ICOTOM de type B2 réagissent identiquement en fonction de la température de leur capteur. Il semble néanmoins qu'il s'agisse d'une coïncidence. Il est en effet possible de comparer les signaux normalisés des ICOTOM de même type à partir des étalonnages réalisé par LVF sur les ICOTOM de vol et de secours pour des températures positives. Ces évolutions sont présentées sur la Figure II-17 où le paramètre est maintenant le numéro de l'ICOTOM, la température de corps noir choisie étant 500,4°C.

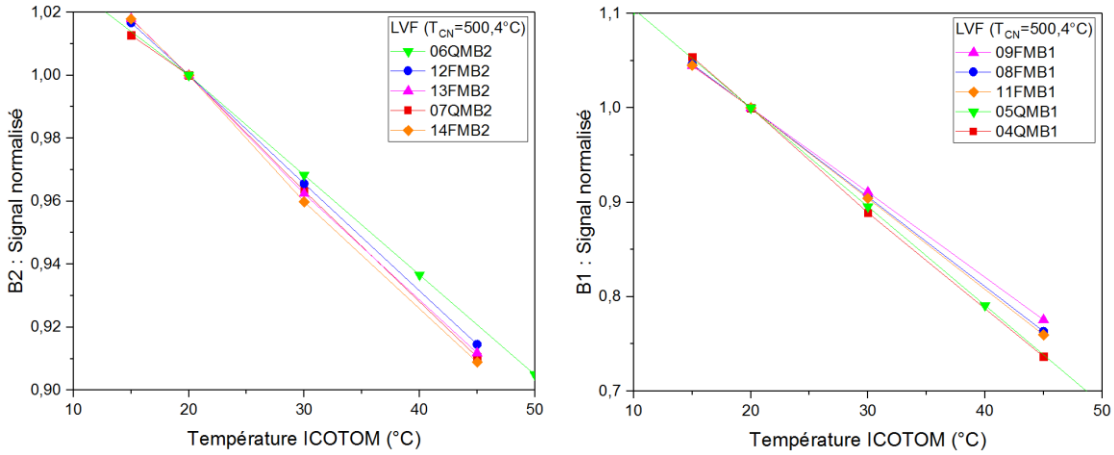


Figure II-17. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM de type B1 par LVF (gauche) et de type B2 par LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour une température du corps noir d'environ 500°C.

Le graphique gauche de la Figure II-17 indique que l'écart entre les différents modèles d'ICOTOM atteint 5% en valeur relative par rapport à la mesure à 20°C dans la gamme explorée par LVF soit [15-45°C]. Les signaux de sortie des ICOTOM de type B1 ont donc des évolutions différentes par rapport à la température du capteur. Il est raisonnable de penser que cette différence de comportement sera également très sensible pour des valeurs de température de capteur négatives. Le courant de sortie des ICOTOM de type B2 étant moins sensibles à la température de leur capteur, les différences de comportement sont moins nettes (graphique droit de la Figure II-17) et atteignent au

maximum 1% en valeur relative. Ces faibles différences confirment les résultats tirés des données DLR. Même si la proximité de comportement des ICOTOM 07QMB2 et 06QMB2 est fortuite, les variations de comportement entre les ICOTOM de type B2 sont faibles.

En revanche, les variations de comportement entre les ICOTOM de type B1 invalide l'hypothèse faite implicitement par LVF à savoir qu'il suffit de connaître l'évolution du signal de sortie d'un ICOTOM avec la température du capteur pour en déduire l'évolution du signal de sortie d'un autre ICOTOM du type à partie de l'étalonnage à température ambiante. Si ce peut être accepté pour les ICOTOM de type B2, ça ne saurait être le cas pour les ICOTOM de type B1.

Il reste à savoir si les évolutions obtenues à partir des mesures du DLR et de LVF sont cohérentes entres elles. Cette comparaison ne peut se faire que pour la gamme de températures où des mesures sont disponibles pour les mêmes ICOTOM pour les mêmes températures de corps noir. Ce n'est donc possible que pour les températures positives. La Figure II-18 n'apporte pas de nouvelles données mais représente ensemble celles déjà présentées dans les graphiques gauches des Figure II-15 et Figure II-16 pour les ICOTOM de type B1 d'une part, et dans les graphiques droits des Figure II-15 et Figure II-16 pour les ICOTOM de type B1 d'autre part.

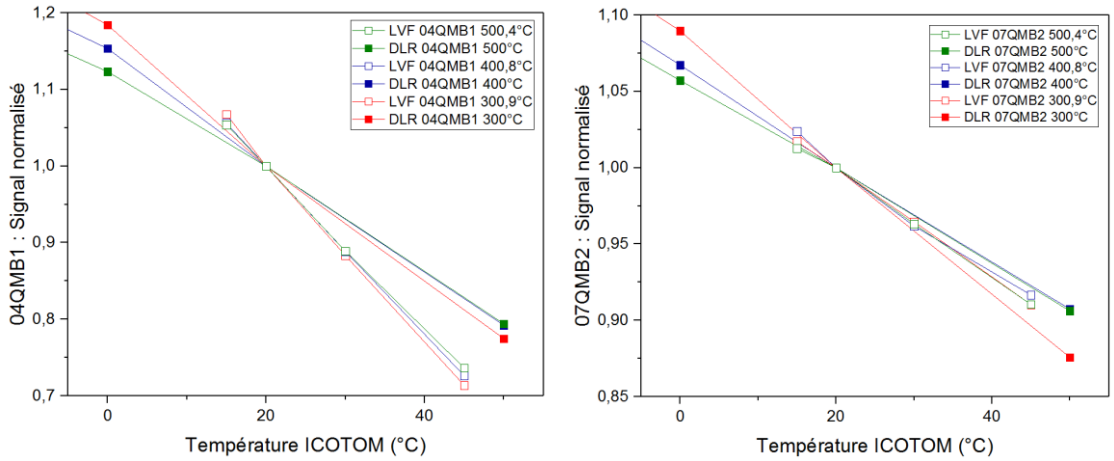


Figure II-18. Signaux de sortie normalisés par les valeurs à 20°C des ICOTOM 04QMB1 par le DLR et LVF (gauche) et 07QMB2 par le DLR LVF (droite) en fonction de la température du capteur pour différentes valeurs de température du corps noir auquel ils sont exposés.

Là encore, les résultats de la comparaison diffèrent suivant le type d'ICOTOM qui est examiné. Il faut ici rappeler que toutes les interprétations proposées dans ce mémoire ne prennent pas en compte les incertitudes et qu'il a été montré dans la section précédente que les mesures absolues effectuées par le DRF et pas LVF n'étaient pas identiques (30% d'écart maximum pour le radiomètre 04QMB1 et 15% d'écart maximum pour le radiomètre 07QMB2 pour une température de corps noir de 500°C). Il n'est pas inutile non plus de faire remarquer, comme le montre à l'évidence toutes les courbes présentées,

que sur une petit gamme de températures de capteur, l'évolution du courant de sortie des ICOTOM peut se modéliser correctement par une relation linéaire.

Ces remarques liminaires permettent d'affirmer que, en ce qui concerne l'ICOTOM 07QMB2, l'évolution déduite des mesures du DLR est cohérente avec celle déduite des mesures de LVF (Figure II-18, à droite). En revanche, le courant de sortie de l'ICOTOM 04QMB1 décroît plus vite avec la température du capteur dans les mesures de LVF que dans les mesures du DLR (Figure II-18, à gauche). Il est difficile d'imputer cette différence aux incertitudes car chaque lot de données est compatible avec une évolution linéaire sur la plage où ces mesures ont été faites. Cette différence est confirmée par la Figure II-15 (à gauche) qui montre une différence similaire entre l'évolution issue des mesures du DLR sur l'ICOTOM 04QMB1 et l'évolution issue des mesures de LVF sur l'ICOTOM 05QMB1.

En résumé, nous pouvons noter que l'évolution du courant avec la température du capteur dépend de l'éclairement et du numéro du capteur. L'évolution du courant des ICOTOM B2 avec la température du capteur est globalement plus faible que pour les ICOTOM B1. Enfin, les évolutions du courant avec la température du capteur suivant le DLR et LVF sont différentes pour les ICOTOM B1, tandis qu'elles sont cohérentes pour les ICOTOM B2.

II.2.5. Etalonnage de l'intensité des ICOTOM en densité de flux d'énergie

Les constations précédentes montrent que les données fournies par le DLR et LVF sont difficilement compatibles, en particulier pour les ICOTOM de type B1, pour produire une méthode d'étalonnage unique prenant en compte les expériences réalisées de part et d'autre.

a) Etalonnage LVF et correction du modèle

Pour rappel, l'étalonnage LVF a été effectué en température de capteur et corps noir et est basé sur les mesures suivantes :

- 1 mesure par **type** d'ICOTOM (B1 ou B2) de type $V_{ICOTOM} = f(T_{ICOTOM})$ pour $T_{CN} = 500°C$.
  - ICOTOM B1 calibré : 05-QM-B1 ;
  - ICOTOM B1 calibré : 06-QM-B2 ;

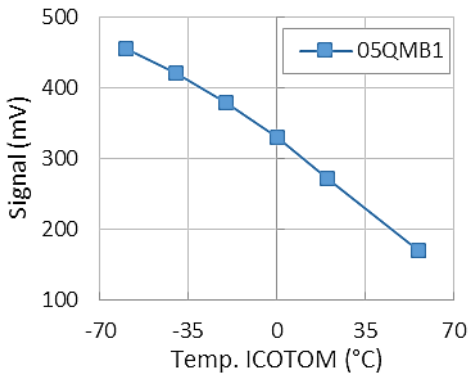


Figure II-19. Caractéristique V=f(TICOTOM), 05QMB1, TCN=500°C.

- 4 mesures par **modèle** d'ICOTOM de type
  $$V_{ICOTOM} = f(T_{CN})$$
  pour $T_{ICOTOM} = 15, 20, 30, 45°C$.
  - ICOTOM B1 calibrés : 04-QM-B1, 08-FM-B1, 09-FM-B1 et 11-FM-B1 ;
  - ICOTOM B2 calibrés : 07-QM-B2, 12-FM-B2, 13-FM-B2 et 14-FM-B2.

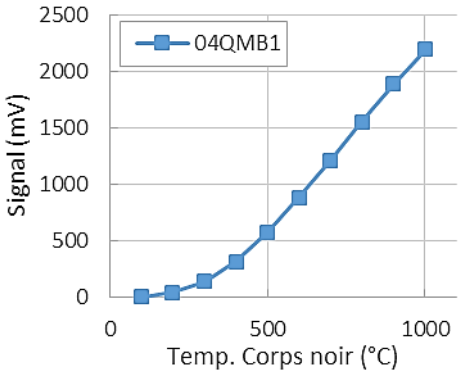


Figure II-20. Caractéristique V=f(TCN), 04QMB1, TICOTOM=20°C.

Ici, V correspond au signal de tension mesuré en mV, T_{ICOTOM} est la température du capteur en °C, T_{CN} est la température mesurée du corps noir également en °C.

Le modèle pour l'étalonnage contient deux hypothèses :

- <u>Hypothèse 1 :</u> tous les modèles d'un même type d'ICOTOM ont la même réponse en fonction de leur propre température
  - Modèle appliqué : la réponse d'un ICOTOM avec sa température ne dépendant que de sa structure interne, le rapport des signaux des ICOTOM à deux températures de capteur différentes est constant pour un même type d'ICOTOM :
    $$\frac{V_{XX-B1}(T)}{V_{XX-B1}(T_{ref})} = \frac{V_{05-B1}(T)}{V_{05-B1}(T_{ref})} \quad \text{et} \quad \frac{V_{XX-B2}(T)}{V_{XX-B2}(T_{ref})} = \frac{V_{06-B2}(T)}{V_{06-B2}(T_{ref})}$$
- <u>Hypothèse 2 :</u> ce comportement est valable quelle que soit la température de corps noir (c'est-à-dire quelle que soit l'intensité du flux incident).

Ainsi, pour un capteur de type B1 à la température T, en connaissant l'évolution $V_{XX-B1}(T_{ref} = 20°C)$ avec la température du corps noir T_{CN} (Figure II-20), et en calculant le rapport $\frac{V_{05-B1}(T)}{V_{05-B1}(T_{ref=20°C})}$ d'après la caractéristique en Figure II-19, on peut reconstruire le signal $V_{XX-B1}(T)$ en fonction de la température du corps noir. Ce même raisonnement est appliqué dans les cas des capteurs ICOTOM B2 en se basant sur leurs caractéristiques propres. Quelques résultats de ce modèle sont illustrés en Figures Figure II-21 et Figure II-22.

Même si le modèle est convaincant pour les ICOTOM de type B2, appliquer ce modèle sur les ICOTOM de type B1 donne un écart entre les caractéristiques V=f(T_{CN}) calculées et celles mesurées pour T_{ICOTOM} =15, 30, 45°C.

Considérons les températures de capteur et de corps noir de référence des caractéristiques en Figures Figure II-20 et Figure II-19, et notons les respectivement $T_{ICOTOM,ref}$ = 20 °C et $T_{CN,ref}$ = 500 °C. En notant que l'écart est lié aux éloignements des

températures de calcul avec leurs températures de références respectives, nous pouvons appliquer une méthode de correction permettant de retrouver les valeurs de l'étalonnage à partir des régressions linéaires proposées par LVF :

$$V_{corrigée} = V_{calculée}.[1 + K(20 - T_{ICOTOM}).(500 - T_{CN})] \quad \text{(II-5)}$$

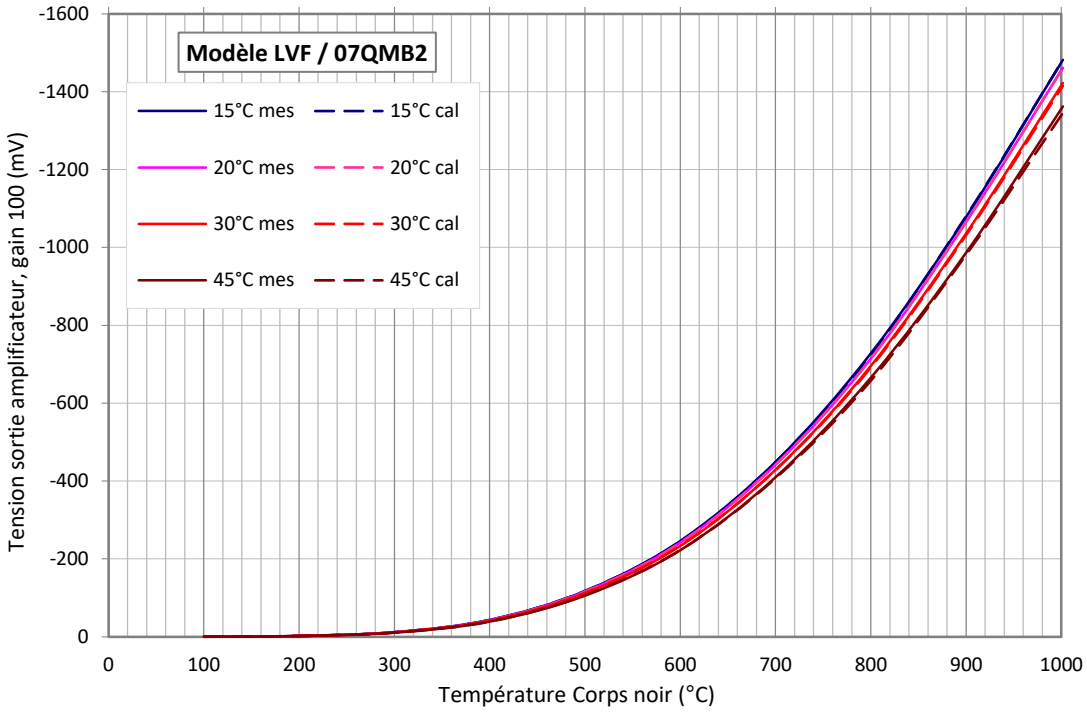


Figure II-21. Courbes calculées de l'ICOTOM 07-FM-B2 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C. Par souci de clarté, des lignes pleines ont été préférées à des points pour figurer les valeurs réelles, permettant ainsi de voir la concordance du modèle LVF.

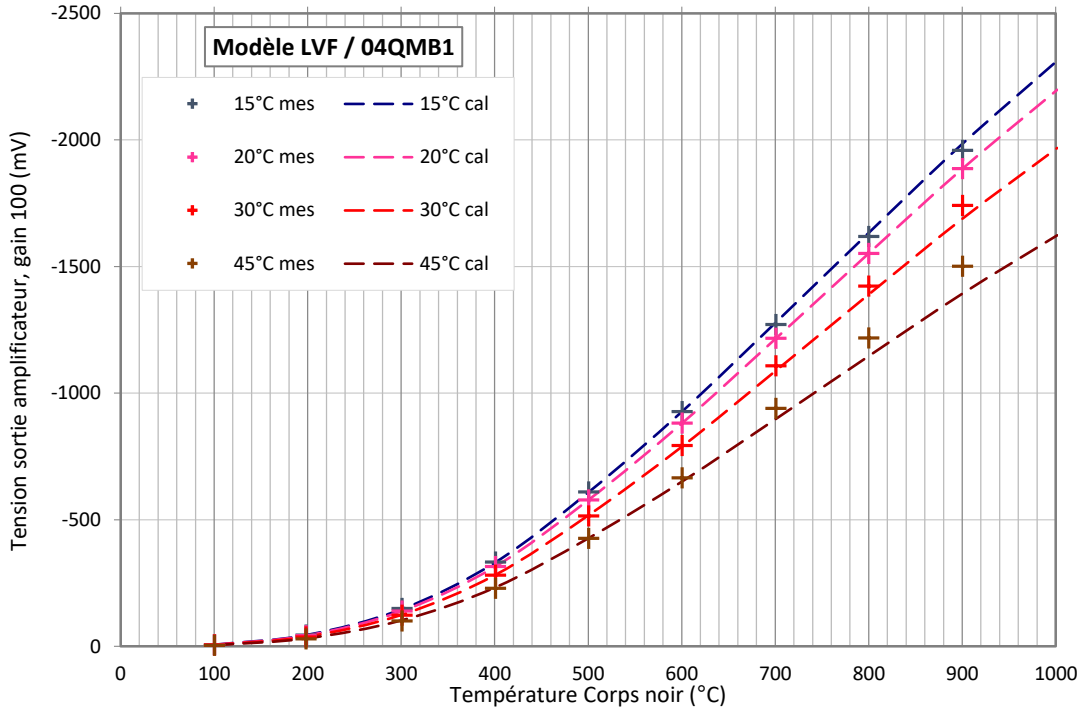


Figure II-22. Courbes calculées de l'ICOTOM 04-FM-B1 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C.

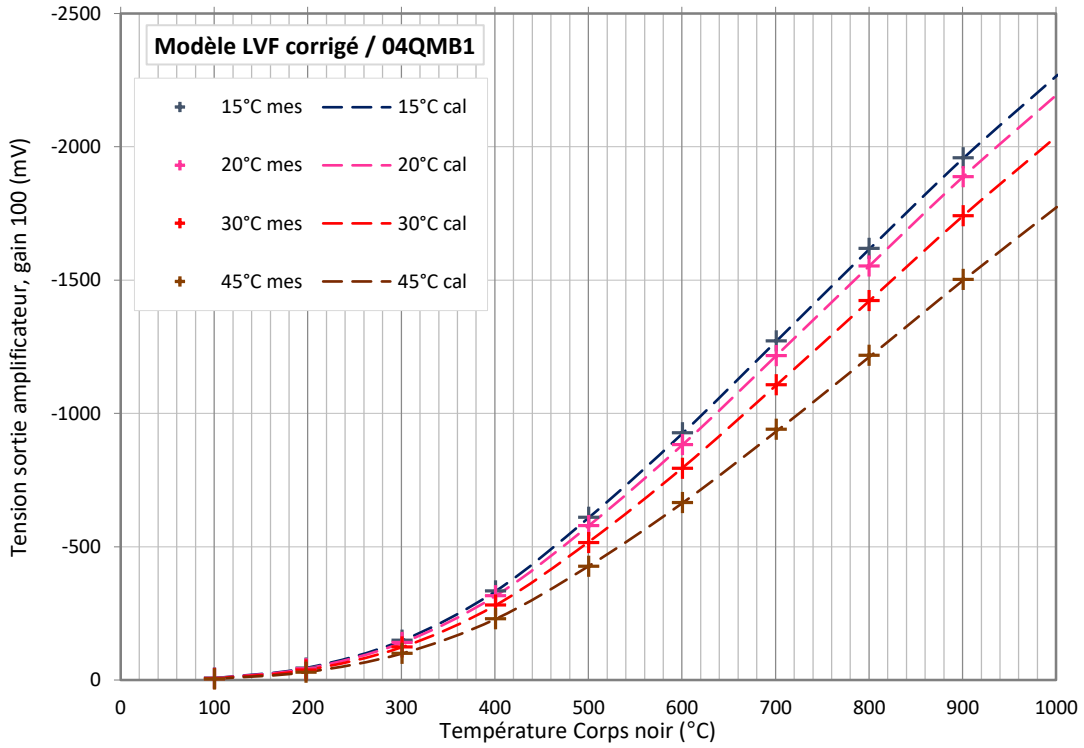


Figure II-23. Courbes calculées de l'ICOTOM 04-FM-B1 pour les températures T du capteur : 15, 20, 30 et 45°C en incluant la correction de l'Eq. (II-5) ; K=7,6.10-6 K-2.

Les valeurs du paramètre K varient d'un capteur à l'autre mais rentent du même ordre de grandeur, allant de $7{,}5.10^{-6}$ K^{-2} pour le capteur 8 à $9{,}6.10^{-6}$ K^{-2} pour le capteur 11. Il pourrait être envisageable d'améliorer encore ce modèle au vu du comportement de ce capteur 11, l'écart modélisation/mesure variant non linéairement avec la température de corps noir ; mais celui-ci restant inférieur à 4% sur notre domaine de comparaison, ce modèle peut être conservé en l'état.

Compte-tenu de ces observations, pour obtenir une valeur de densité de flux avec un capteur ayant une température de -27°C (donnée de vol) il est possible soit d'appliquer les évolutions du courant de sortie en fonction de la température du capteur obtenues avec les ICOTOM 05QMB1 et 06QMB2 pour une seule température de corps noir aux modèles de vol, soit de prolonger linéairement les évolutions du courant de sortie en fonction de la température du capteur constatées sur les modèles de vol pour des températures de capteur positives et des températures de corps noir variables.

Un programme a été réalisé, permettant la conversion des signaux de tension issus de l'amplificateur CNES en densité de flux de rayonnement, c'est-à-dire en éclairement des capteurs. Ce programme a été adapté pour accepter en entrée les signaux issus du module COMARS+. Le programme convertit donc ces signaux en courant pour établir la correspondance avec l'étalonnage de LVF. Pour cela, l'étalonnage en courant du DLR est utilisé. Les signaux COMARS étant un pourcentage de la tension maximale (5V), les intensités s'obtiennent par une fonction affine (section II.2.2.).

b) Application de l'étalonnage LVF aux données d'étalonnage DLR

Des différences notables, exposées précédemment, ayant été constatées entre les mesures DLR et les mesures LVF pour des températures de corps noir similaires, le programme de conversion (utilisé avec une température de capteur de 20°C) ne permet pas de retrouver les résultats exposés dans l'étalonnage DLR.

Les déviations sont exposées dans le Tableau II-4.

a) Etalonnage DLR

Alors que LVF a réalisé un étalonnage d'un seul jeu d'ICOTOM (05QMB1 et 06QMB2) à basses températures pour une seule température de corps noir (500°C), le DLR a étalonné le jeu de secours (04QMB1 et 07QMB2) pour cinq températures de capteurs (-50°C, -15°C, 0°C, 20°C, 50°C) et plusieurs températures de corps noir (21,100, 200, 300, 400 et 500°C). Une nouvelle procédure adaptée aux données du DLR doit être mises en place, avec de nouvelles hypothèses, pour établir une conversion automatique des signaux des COMARS en densités de flux.

Une approche grossière est de calculer le ratio les intensités des courants produits par les ICOTOM FM d'une part et les ICOTOM QM d'autre part, pour des températures de corps noir proches, et pour des températures de capteur de 20°C. L'étape suivante consiste à multiplier les résultats d'étalonnage obtenus pour une température de capteur de -30°C par ce ratio et de recalculer des tensions. En comparant ces tensions avec les

résultats de l'étalonnage à -30°C et en utilisant une régression linéaire, une estimation de la température équivalent de corps noir puis de la densité de flux d'énergie peut être déduite.

08FMB1				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,66	0,804	0,495	586	547,5
14,44	1,839	1,281	696,3	655,4
15,49	3,416	2,308	799,9	745,9
16,53	5,536	3,367	889,1	817,5
09FMB1				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,7	0,804	0,444	586	537,3
14,45	1,839	1,188	696,3	645,4
15,6	3,416	2,286	799,9	744,2
16,6	5,536	3,267	889,1	811,2
11FMB1				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,7	0,804	0,321	586	509
14,45	1,839	1,099	696,3	635,3
15,6	3,416	2,126	799,9	731,9
16,6	5,536	3,148	889,1	803,8

12FMB2				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,72	0,255	0,151	586	536,6
15,6	0,926	0,927	696,3	673,8
20	2,427	2,440	799,9	779,4
25,9	5,130	4,520	889,1	865,3
13FMB2				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,72	0,255	0,183	586	548,2
15,6	0,926	0,968	696,3	678
20	2,427	2,481	799,9	781,5
25,9	5,130	4,573	889,1	867,1
14FMB2				
Signal COMARS (%5V)	Flux DLR (kW/m²)	Flux LVF (kW/m²)	T_{CN} DLR (K)	T_{CN} LVF (K)
13,72	0,255	0,317	586	585,3
15,6	0,926	1,031	696,3	684
20	2,427	2,546	799,9	784,8
25,9	5,130	4,622	889,1	868,8

Tableau II-4. Application aux données d'étalonnage DLR de la conversion basée sur l'étalonnage LVF.

II.2.6. Application aux données de vol EXOMARS 2016

a) Etalonnage LVF

Le programme de conversion Signal-Eclairement présenté précédemment a été modifié pour prendre en compte les signaux COMARS, afin de convertir les données de

vol du module EDM/Schiaparelli, exprimées en fonction du temps, en densité de flux d'énergie. Ces résultats sont disponibles dans les Tableaux Tableau II-5, Tableau II-6 et Tableau II-7. Le Tableau II-5 présente les densités de flux dans tout l'hémisphère face à chaque ICOTOM, le Tableau II-6 présente les densités de flux dans le cône d'ouverture de chaque ICOTOM, et le Tableau II-7 présente les températures de corps noir équivalentes aux luminances obtenues.

	Amont		Centre		Aval	
Temps	08FMB1	13FMB2	11FMB1	12FMB2	09FMB1	14FMB2
14:42:42	137	50	49	168	54	111
14:44:01	5618	1959	3344	1227	3278	1167
14:44:12	1778	449	962	193	903	323
14:44:22	335	38	128	91	88	89
14:44:32	17	59	46	122	45	69
14:44:42	43	59	79	133	60	69
14:44:52	43	70	79	133	60	59
14:45:02	58	70	92	133	78	59
14:45:12	58	59	79	133	60	69

Tableau II-5. Densités de flux (W/m2) dans tout l'hémisphère face à chaque ICOTOM (LVF).

	Amont		Centre		Aval	
Temps	08FMB1	13FMB2	11FMB1	12FMB2	09FMB1	14FMB2
14:42:42	12,4	4,5	4,5	15,2	4,8	10
14:44:01	508	177,1	302,4	111	296,4	105,6
14:44:12	160,8	40,6	87	17,4	81,7	29,2
14:44:22	30,3	3,4	11,6	8,2	8	8,1
14:44:32	1,5	5,3	4,1	11	4,1	6,3
14:44:42	3,9	5,3	7,2	12	5,4	6,3
14:44:52	3,9	6,3	7,2	12	5,4	5,4
14:45:02	5,2	6,3	8,3	12	7	5,4
14:45:12	5,2	5,3	7,2	12	5,4	6,3

Tableau II-6. Densités de flux (W/m2) dans le cône d'ouverture de chaque ICOTOM (LVF).

	Amont		Centre		Aval	
Temps	08FMB1	13FMB2	11FMB1	12FMB2	09FMB1	14FMB2
14:42:42	447	476	390	543	394	519
14:44:01	939	753	816	701	812	696
14:44:12	703	612	619	552	611	587
14:44:22	513	408	443	507	421	506
14:44:32	344	485	386	524	386	493
14:44:42	384	485	415	529	400	493
14:44:52	384	493	415	529	400	485
14:45:02	398	493	423	529	414	485
14:45:12	398	485	415	529	400	493

Tableau II-7. Températures (K) de corps noir équivalentes (LVF).

b) Etalonnage DLR

En appliquant la méthode décrite dans la section II.2.5. a) , les données de vol sont converties en densités de flux et en températures équivalentes. Les résultats sont montrés dans les Tableaux Tableau II-8 et Tableau II-9 respectivement.

Il convient de rester très prudent avec ces résultats qui demandent à être confirmés par une approche générale de tous les résultats d'étalonnage produits au DLR.

La comparaison des données de vol converties suivant les étalonnages LVF et DLR montre des valeurs assez proches pour les ICOTOM de type B2 mais un rapport d'environ 2 sur les valeurs de densités de flux mesurées par les ICOTOM de type B1. Cette divergence importante a déjà été constatée dans les comparaisons d'étalonnage face à des corps noirs.

	Amont		Centre		Aval	
Temps	08FMB1	13FMB2	11FMB1	12FMB2	09FMB1	14FMB2
14:42:42	514	136	514	136	514	136
14:44:01	11200	1750	6665	1133	6173	968
14:44:12	2831	394	1798	239	1761	221
14:44:22	636	175	514	136	604	136

Tableau II-8. Densités de flux (W/m2) dans tout l'hémisphère face à chaque ICOTOM (DLR).

	Amont		Centre		Aval	
Temps	08FMB1	13FMB2	11FMB1	12FMB2	09FMB1	14FMB2
14:42:42	533	533	533	533	533	533
14:44:01	1093	738	933	693	913	678
14:44:12	748	603	676	568	673	563
14:44:22	553	548	533	533	548	533

Tableau II-9. Températures (K) de corps noir équivalentes (DLR).

Nous pouvons déduire de tout ceci plusieurs éléments de ces données. Tout d'abord, la densité de flux maximale reçu dans la bande B1 est de l'ordre de 10 kW/m² dans un angle solide hémisphérique, et de l'ordre de 2 kW/m² dans la bande B2.

Les étalonnages LVF et DLR divergent d'un facteur de l'ordre de 2 sur la bande B1, mais sont similaires (à 10% près) sur la bande B2.

II.2.7. Données complémentaires CORIA

Afin de renforcer les données obtenues avec LVF et le DLR, nous avons également procédé à des campagnes d'acquisition de signal ICOTOM devant une source de type corps noir, comme décrit en début de section II.2. et dont un exemple est illustré en Figure II-5. La première campagne, une étude préliminaire sur un seul jeu d'ICOTOM (05QMB1 et 06QMB2) a déjà permis de remarquer que la sensibilité des ICOTOM à leur propre température était nette, en particulier l'ICOTOM de type B1, mais également que la quantité de signal délivrée par les ICOTOM de type B2 était plus faible, de l'ordre d'un rapport 2. Par la suite, une seconde campagne a été menée avec un jeu supplémentaire (01QMB1 et 02QMB2) en plus du jeu déjà en notre possession, avec un support refroidi par eau adapté pour 4 ICOTOM.

a) Signaux de sortie devant un four de type corps noir

Nous pouvons effectuer plusieurs remarques à la suite de ces campagnes : premièrement, la linéarité du comportement des ICOTOM avec leur propre température est belle est bien confirmée à l'issue de ces campagnes ; ensuite, la Figure II-24 nous montre que pour $T_{ICOTOM} = 20°C$, le comportement des ICOTOM de même type est quasiment le même lorsque l'on fait varier la température du corps noir à une constante multiplicative près.

En revanche, entre la première et la seconde campagne, le signal délivré par le capteur 06QMB2 dans des conditions expérimentales similaires a drastiquement chuté, typiquement d'un facteur 20 dans les mêmes conditions de températures et d'exposition.

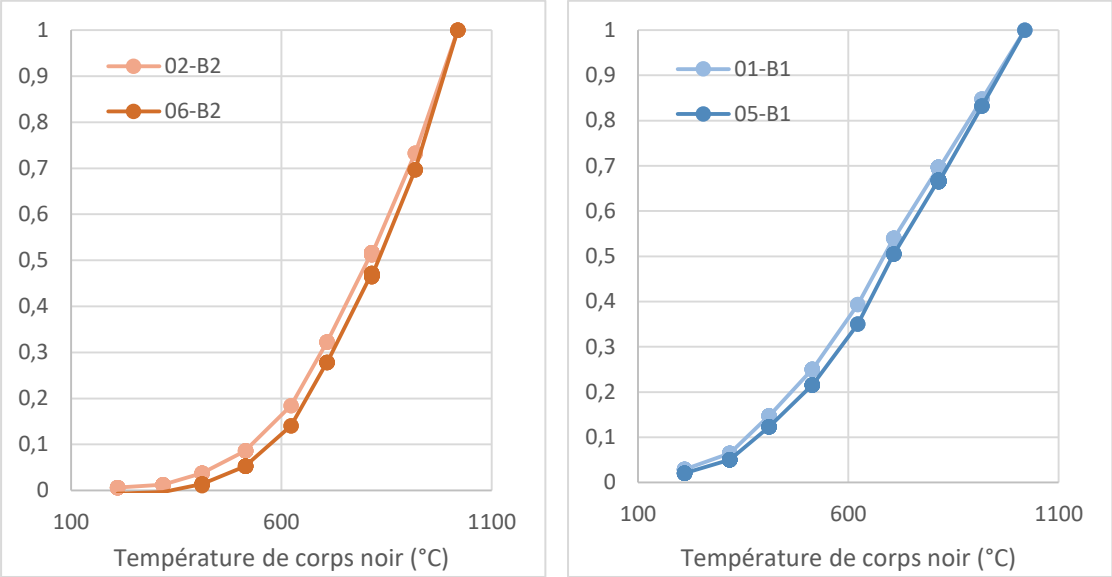


Figure II-24. Comparaison de signaux ICOTOM pour TICOTOM = 20°C, normalisés par le signal maximal observé pour observer la dynamique commune.

Enfin, une troisième campagne a été effectuée conjointement avec le DLR en plaçant les ICOTOM dans un support à refroidissement par effet Peltier afin d'explorer les domaines de températures de capteur négatives (en rapport avec les -27°C observés en conditions de vol). Tout ceci nous permet d'extraire quelques résultats sur le dernier jeu d'ICOTOM QM (modèles au sol) que nous n'avions pas eu entre les mains, à savoir le 04QMB1 et 07QMB2, et comparer directement nos résultats avec les deux autres organismes ayant procédé à des mesures sur ces modèles de radiomètres. Ces comparaisons peuvent être résumées en Figures Figure II-25 et Figure II-26.

Sur la Figure II-25, nous notons que les trois étalonnages en courant sont cohérents sur l'ICOTOM 04QMB1, tandis qu'une différence pouvant aller jusque 25% s'observe sur l'étalonnage de l'ICOTOM 07QMB2. Les raisons de ces écarts ont été longuement décortiqués : différences de « corps noir » (géométrique, étendu…), amplifications différentes (exclu par la mise en commun des bancs d'amplification et des étalonnages en courant pour les amplis COMARS+), dysfonctionnements…

Ces différences sont d'autant plus flagrantes sur la comparaison illustrée en Figure II-26. Dans l'ensemble le DLR observe une plus forte dépendance du signal avec la température des ICOTOM que LVF ne l'a observé, rendant toute interprétation des résultats en aval beaucoup plus ouverte à discussion.

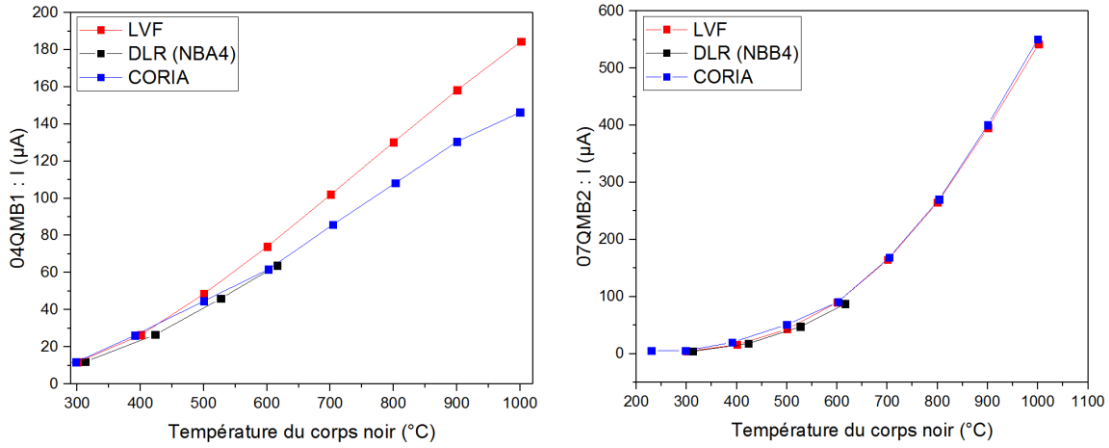


Figure II-25. Comparaison des étalonnages ICOTOM en température de corps noir, en prenant en compte les trois étalonnages (LVF, DLR et CORIA), ainsi la campagne commune DLR/CORIA.

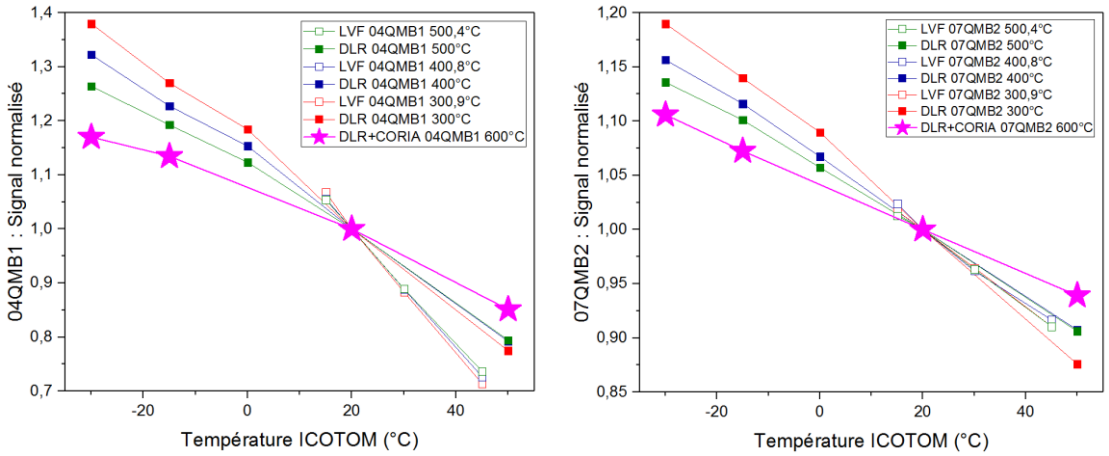


Figure II-26. Comparaison des signaux ICOTOM en fonction de leur propre température, en prenant en compte les trois étalonnages (LVF, DLR et CORIA), ainsi la campagne commune DLR/CORIA.

b) Etalonnage en luminance

Afin de préparer la mesure de flux radiométriques, nous avons tenté d'extraire la caractéristique U=f(T) pour T_{ICOTOM}=20°C pour les ICOTOM 5 et 6 exposés au plasma, et comparé cette caractéristique à la luminance théorique, intégrée sur la bande de sensibilité et modulée par ladite sensibilité $\tau(\lambda)$ de l'ICOTOM correspondant, que nous appellerons ici M :

$$M(T) = \int_{\lambda_2}^{\lambda_1} \tau(\lambda) L^0\ (\lambda, T)\, d\lambda$$

Dans l'hypothèse du rayonnement de corps noir isotrope, cette quantité seule suffit dans notre comparaison. A l'instar des calibrations précédentes, nous supposons que la fonction de transfert est affine, et de très rapides ajustements nous donnent les

correspondances illustrées en Figure II-27. Le modèle U=f(M) sous forme de fonction affine semble donc très satisfaisant sachant que l'erreur de mesure sur U est de l'ordre de 5%, bien supérieure à l'écart inférieur à 2% entre le modèle et la tension mesurée.

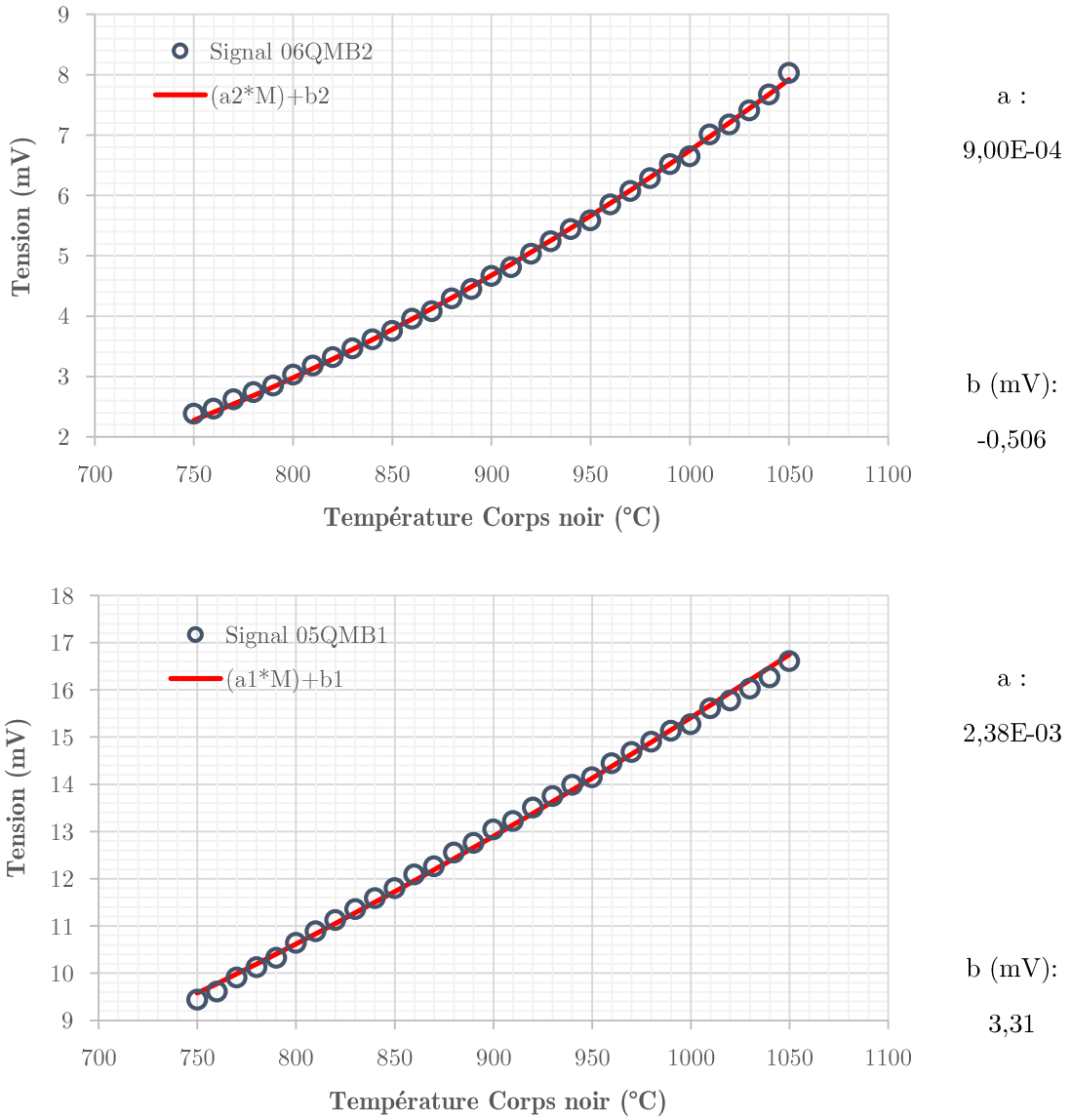


Figure II-27. Modèles U=f(M) pour TICOTOM = 20°C.

Sachant que la température des capteurs lors de l'exposition au plasma de laboratoire a été maintenue à 20 degrés, nous avons donc un premier étalonnage nécessaire pour la mesure de flux radiométriques présentée en II.3. Concernant l'application du modèle aux données de vol, il est important de noter que les campagnes de qualification des ICOTOM effectuées par LVF ou le DLR avant ce travail de thèse ne nous permettent pas de disposer des données nécessaires pour étalonner précisément les données de vol : il sera nécessaire de discuter des marges d'erreur à attendre de l'étalonnage.

II.3. Essais plasmas inductifs, influence pression et enthalpie spécifique

II.3.1. Installation des appareils de mesure sur SOUPLIN, présentation des campagnes de mesure

Concernant l'installation du support des ICOTOM sur la veine d'essai, les tests en pression d'eau et sous vide primaire ont montré une parfaite étanchéité des soudures à l'eau et des joints au gaz. Les vides limites obtenus avec la canne en position sur la veine d'essai sont identiques à ceux obtenus sans la canne.

La Figure II-28 montre la face avant de la canne (sans le masque réducteur d'angle) derrière le jet de plasma de CO_2. L'axe de la canne intercepte naturellement l'axe du jet. Les deux radiomètres ICOTOM sont placés verticalement de façon à ce qu'ils observent symétriquement la même position longitudinale.

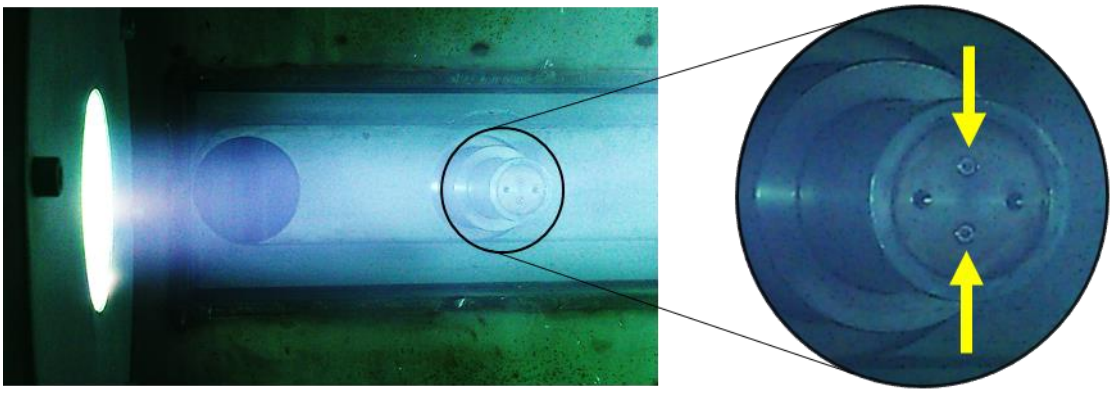


Figure II-28. Photographie de la canne refroidie et des radiomètres ICOTOM durant le fonctionnement de la soufflerie au CO2. (Les ICOTOM sont désignés par les flèches jaunes)

Lors de la première et la seconde campagne de mesures, nous avons effectué en parallèle des mesures de spectroscopie d'émission grâce au spectromètre MAYA dans sa configuration complète de collection de la lumière (Annexe B).

En fonctionnement, la température des capteurs reste comprise entre 11,8 et 12°C en fonction de la température d'entrée de l'eau de refroidissement.

Afin d'observer un plasma chaud mais fortement recombiné, la canne a été installée à 270 mm de la sortie de la torche pour la première série d'essais *in situ*. La position radiale a été fixée de sorte que les ICOTOM soient à 131 mm de l'axe du jet. Compte tenu de l'ouverture numérique des fibres optiques, chaque radiomètre ICOTOM capte le rayonnement provenant d'une zone de près de 5 cm de diamètre au niveau de l'axe du jet. Ce volume de mesure est très grand alors que le plasma n'est pas homogène à cette

échelle radialement et longitudinalement. La corrélation avec des mesures locales devra donc se faire, soit par intégration de celles-ci sur le volume de mesure des radiomètres ICOTOM, soit en réduisant leur volume de mesure à l'aide du masque réducteur d'angle.

La seconde série de mesures a été effectuée dans les mêmes conditions, mais la canne a été décalée à une position longitudinale de 90 mm pour observer un plasma plus dissocié.

Lors de la troisième campagne, nous avons rapproché la canne du plasma, plaçant les ICOTOM à 71 mm de l'axe du jet, soit la distance minimale atteignable avec la canne. La zone mesurée au niveau de l'axe est ainsi de 2,8 cm de diamètre environ. Nous avons en parallèle effectué des mesures locales de spectroscopie d'émission en conjuguant la fente d'entrée d'un spectromètre portatif MAYA directement avec un point de l'axe du jet grâce à un miroir sphérique.

Figure II-29. Spectromètre MAYA 2000 Pro.

En pratique, nous avons relevé des signaux bien plus faibles sur le capteur B_2 (quelques dixièmes de volts) sensible au rayonnement de CO_2 que sur le capteur B_1 (plusieurs volts, parfois dépassant la dizaine) qui couvre une bande commune à CO et CO_2. L'incertitude sur la pression est inférieure à 5%, celle sur la puissance du générateur largement inférieure au pourcent. L'incertitude sur le signal des ICOTOM est de l'ordre de 5% sur B_1 et 10% sur B_2, due à de fortes oscillations de signal sur le temps.

II.3.2. Influence de la puissance injectée et de la pression

Cette section présente les résultats accumulés lors de la troisième campagne de mesures, mais les résultats sur la deuxième campagne sont globalement similaires.

Sur les Figures Figure II-30 et Figure II-31 sont illustrées les variations des signaux B_1 (en haut), B_2 (au milieu) et du rapport B_1/B_2 (en bas) ; si l'on se représente une nappe

de résultats $V_{ICOTOM} = f(p,h)$ avec V le signal de tension collecté sur le banc d'amplification, p la pression mesurée dans la veine et h l'enthalpie spécifique, alors la Figure II-30 représenterait des lignes de niveau p=constante, tandis que la Figure II-31 illustre des lignes de niveau h=constante. On voit au premier coup d'œil sur ces figures que les évolutions des signaux B_1 et B_2 sont très similaires.

Un premier résultat important est que le rapport B_2/B_1 ne semble pas varier avec la puissance injectée en amont, à position et pression fixée. Pourtant la spectroscopie dans le domaine proche-UV–proche-IR montre une nette évolution des intensités relatives entre les raies atomiques (C, O) et les bandes de C_2 par exemple : statuer sur la dissociation et sur une non-dépendance de celle-ci avec la puissance injectée serait donc une erreur.

Un second résultat important est que le rapport B_2/B_1 possède une dépendance claire et monotone avec la pression, à position et puissance fixée. Cette décroissance laisserait donc à penser deux choses :

- Le taux de dissociation CO/CO_2 augmente, ce qui semble peu probable car plus de pression signifie une fréquence de collision plus grande, donc un temps de retour à l'équilibre plus faible et une recombinaison rapide du plasma...
- Autre piste : l'augmentation de pression induit une recombinaison plus rapide des espèces atomiques, et le plus facile / probable est donc la formation de CO ; augmentant la possibilité d'avoir CO sur un état excité émettant dans la bande B_1, donc entraînant une diminution du rapport R. Cette théorie semble confirmée par les spectres MAYA, dans lesquels les raies atomiques semblent moins présentes en proportion du reste du spectre au fur et à mesures que la pression augmente.

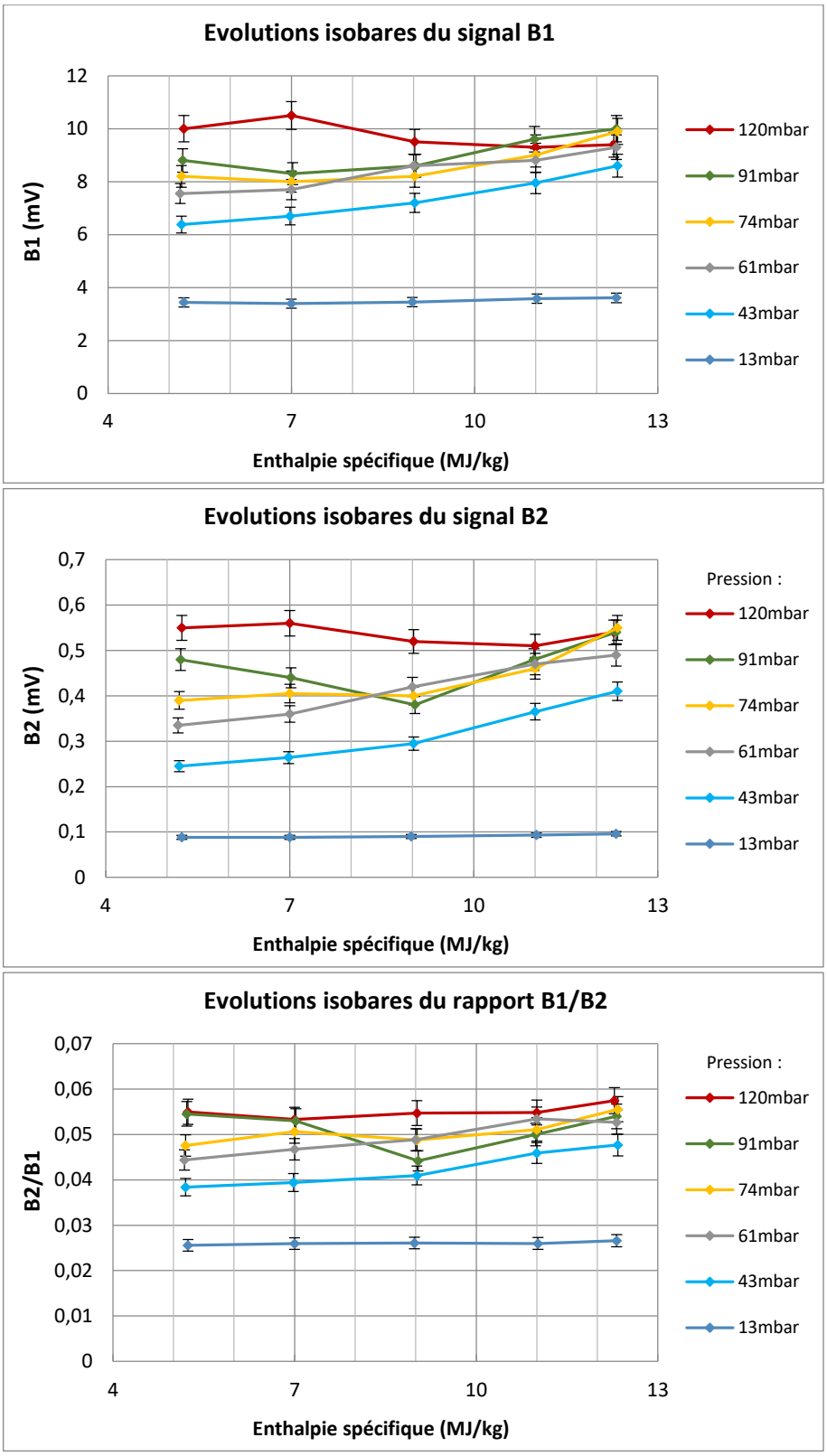


Figure II-30. Influence de l'enthalpie spécifique sur les signaux ICOTOM dans un plasma de CO2.

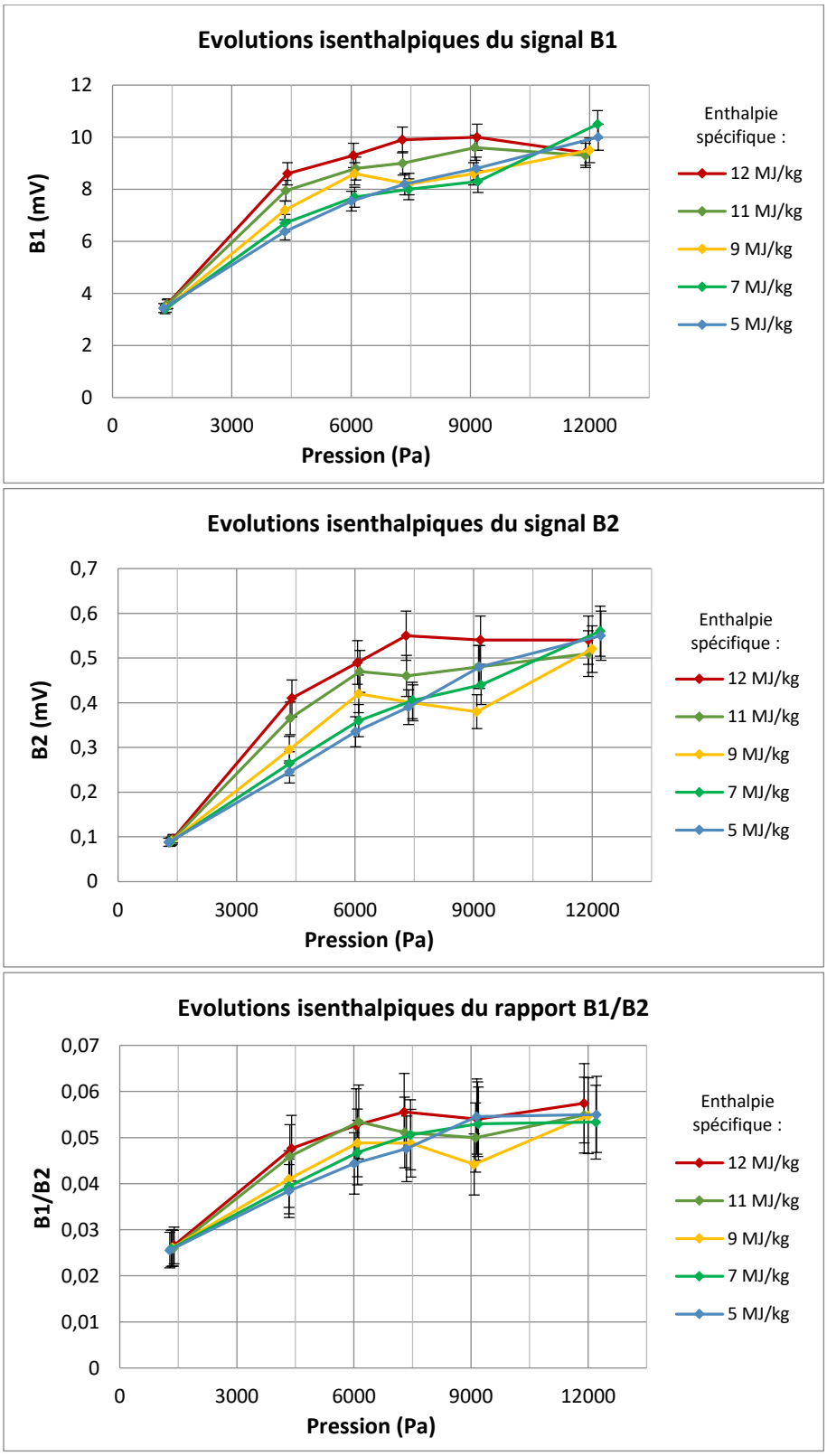


Figure II-31. Influence de la pression sur les signaux ICOTOM dans un plasma de CO2.

II.3.3. Influence de la distance longitudinale à la sortie du jet

La première campagne de mesures a été effectuée sur le hublot le plus éloigné, situé à 27 cm de la sortie du jet, et la seconde sur le hublot le plus proche, à 9 cm. La canne n'a pas été déplacée sur son support, donc la distance des ICOTOM à l'axe du plasma n'a pas changé.

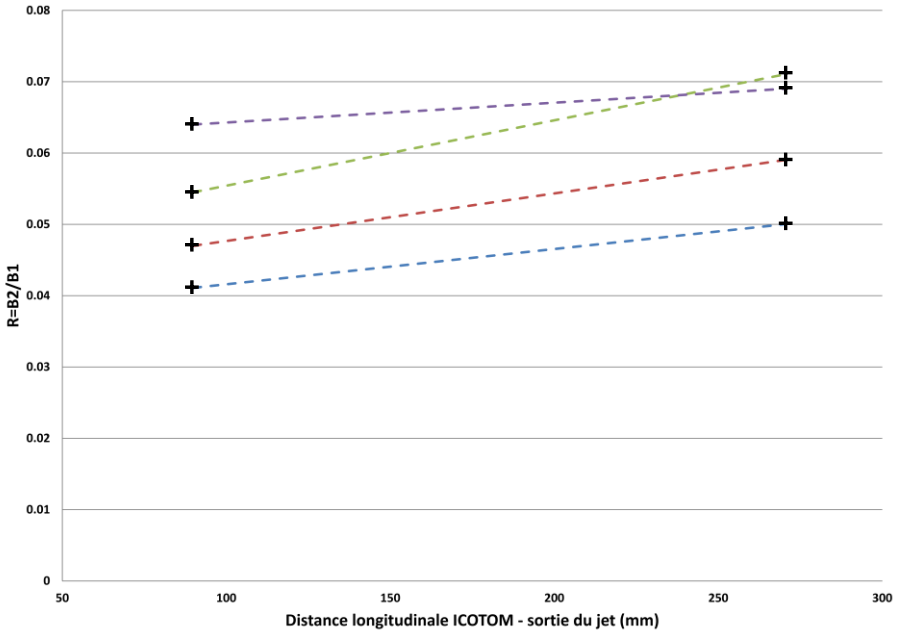


Figure II-32. Influence de la distance longitudinale sur le rapport R des signaux des ICOTOM. Chaque courbe représente un point de fonctionnement du plasma.

Le principal résultat est représenté en Figure II-32 et réside dans le fait que le rapport de signal $R = \frac{B_2}{B_1}$ croît avec la distance à la sortie du jet. Vu que B_2 est sensible à une bande de CO_2, et B_1 à une bande de CO_2 ainsi que deux bandes de CO, on peut justifier cette hausse de signal par une présence relative de CO_2 par rapport à CO plus importante avec la distance, ce qui signifierait que le taux de dissociation devient plus faible : cela serait réaliste car cela correspondrait à la recombinaison du plasma. Cette hypothèse, bien que plausible, ne reste qu'une hypothèse car pour l'instant rien ne nous permet de relier les populations sur les états excités correspondant aux bandes de sensibilité des ICOTOM au reste des populations en CO et CO_2 ! Néanmoins cela nous rassure quant à l'utilisation de ces capteurs.

II.3.4. Influence de la distance radiale à l'axe du jet

La seconde campagne de mesures a été effectuée avec pour distance radiale entre les ICOTOM et l'axe du jet de 131 mm, et la troisième à 71 mm. La canne n'a pas été déplacée longitudinalement entre ces deux campagnes. La Figure II-33 présente l'évolution du rapport R avec la distance entre les ICOTOM et l'axe du jet de plasma.

Par souci de clarté j'ai choisi de ne pas faire figurer les points de données, mais uniquement les lignes d'appartenance à un point de fonctionnement.

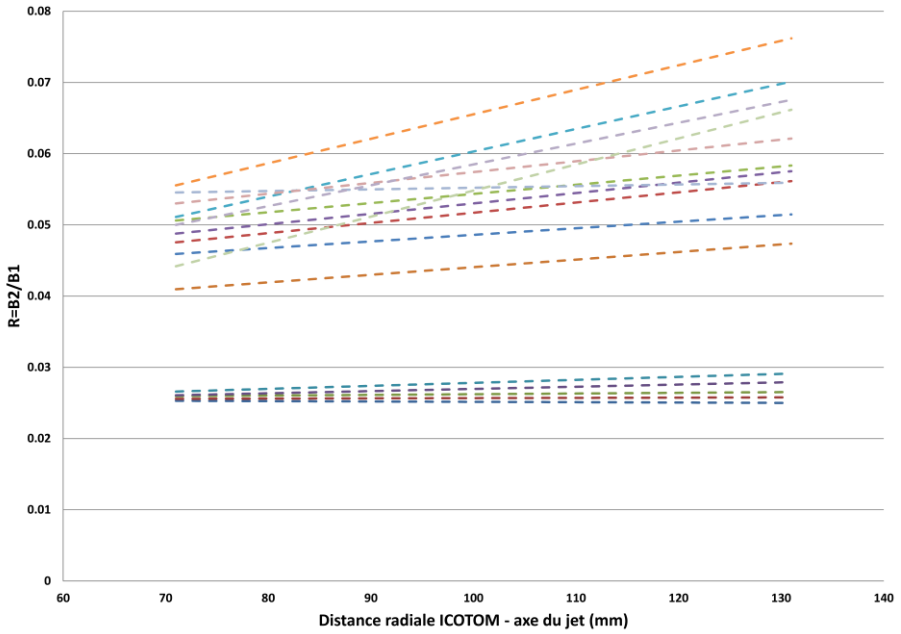


Figure II-33. Influence de la distance radiale sur le rapport R des signaux des ICOTOM. Chaque courbe représente un point de fonctionnement du plasma.

On note globalement une augmentation du rapport R en fonction de la distance radiale, ce qui peut s'expliquer par le fait qu'éloigner les radiomètres conduit à viser une zone plus large da plasma ; cela conduit à une plus grande contribution de la périphérie du plasma au rayonnement reçu, périphérie qui serait plus recombinée, donc donnant un signal dans la bande B_2 plus important que celui de B_1. A nouveau conclure sur la dissociation générale CO–CO_2 sans d'autres mesures est impossible, mais les résultats obtenus ne tombent pas en contradiction avec l'intuition que l'on peut avoir du phénomène.

A nouveau, on pourra améliorer ces résultats en augmentant le panel de distances radiales et ainsi obtenir des tendances bien plus fiables.

Par la suite, des calculs de composition chimique à l'équilibre via CEA [39] pourront permettre d'effectuer des simulations de spectres à diverses températures et relier les résultats via la réponse spectrale des ICOTOM aux mesures sur les ICOTOM, afin éventuellement de pouvoir déduire un ordre de grandeur des températures sur les points mesurés. En effet si le jet n'est pas à l'équilibre thermodynamique, il n'en reste néanmoins pas très éloigné et les valeurs simulées ne seront que des estimations. On voit ainsi qu'il est primordial de disposer de tous les moyens ensemble pour pouvoir statuer sur les comportements des capteurs et leur lien avec le taux de dissociation.

II.4. Calcul numérique de spectres

II.4.1. Spectres d'absorption et d'émission

Du fait des énergies importantes qui y sont présentes, un plasma inductif est un milieu fortement soumis aux phénomènes de transferts radiatifs. Les transitions énergétiques qui ont lieu étant régies par la mécanique quantique, la répartition spectrale de la lumière émise et absorbée est discrète. Dans le cadre des spectres infrarouges que nous simulerons, les énergies mises en jeu viennent de transitions vibrationnelles et sont de l'ordre de 0,25 à 0,5 eV. Le Tableau II-10 résume la décomposition de l'énergie d'une molécule utilisée dans le cadre de ce stage. Des structures plus fines existent, mais leur utilisation est ici inappropriée au vu du type de transitions étudiées.

E	$=$	$E_{électronique} + E_{rotation} + E_{vibration}$
Diatomique		
E_{rot}	$=$	$F(J,v)$
	$=$	$B_v J(J+1) - D_v(J(J+1))^2$
$avec\ B_v$	$=$	$B_e - \alpha_e(v+\frac{1}{2}) + \gamma_e(v+\frac{1}{2})^2$
$et\ D_v$	$=$	$D_e - \beta_e(v+\frac{1}{2}) + \delta_e(v+\frac{1}{2})^2$
E_{vib}	$=$	$G(v)$
	$=$	$w_e(v+\frac{1}{2}) - w_e x_e(v+\frac{1}{2})^2$
Triatomique linéaire		
E_{rot}	$=$	$F(J,v_1,v_2,v_3)$
	$=$	$B_{v_1,v_2,v_3} J(J+1) - D_{v_1,v_2,v_3}(J(J+1))^2$
E_{vib}	$=$	$\sum_{i=1}^{3} G(v_i)$
	$=$	$\sum_{i=1}^{3} w_i(v_i+\frac{d_i}{2}) + \sum_{i\leq j\leq 3} x_{ij}(v_i+\frac{d_i}{2})(v_j+\frac{d_j}{2}) + \sum_{i\leq j\leq 3} g_{ij} l_i l_j$
avec		d_i la dégénerescence de la vibration i,
		g_{ij} des constantes additionnelles anharmoniques
et		l_i les nombres quantiques de moment angulaire.

Tableau II-10. Décomposition de l'énergie d'une molécule, approximations à l'ordre 2.

La molécule de CO est une molécule diatomique, par conséquent les transitions énergétiques sont aisément calculables en découplant l'hamiltonien de vibration de celui de rotation de la molécule. On peut ensuite appliquer la théorie des perturbations pour améliorer la précision.

En revanche, le caractère triatomique de la molécule de CO_2 rend les choses beaucoup plus complexes ; en plus de la rotation de la molécule, les modes de vibration sont plus nombreux [40]:

- Vibrations axiales : élongation
  - Symétrique, de nombre quantique ν_1
  - Antisymétrique ν_3
- Vibrations longitudinales : torsion
  - Deux modes dégénérés ν_2, un par plan de référence contenant l'axe de la molécule

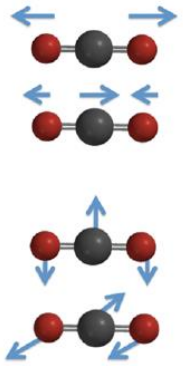


Figure II-34. Représentation des modes de vibration du CO2.

Enfin, la torsion induit la possibilité d'un degré de liberté supplémentaire de rotation autour de l'axe de la molécule [41], symbolisé par le nombre l_2.

Ainsi représenter l'évolution de l'énergie potentielle V de la molécule en fonction des coordonnées nécessiterait 4 coordonnées normales – r1, r2 désignant par exemple chacune une distance séparant l'atome de carbone avec un des deux atomes d'oxygène, r3 et r4 désignant les coordonnées liées aux torsions – en plus de la coordonnée liée à V. Si l'on veut visualiser un tel diagramme, on ne peut représenter que des sections de cette hypersurface, par exemple en se déplaçant le long d'une ou deux coordonnées particulières. La Figure II 35 illustre l'évolution de V en fonction des coordonnées de déplacement axial r1 et r2. La profonde vallée en B est la région de stabilité de CO2, les régions en A1 et A2 représentent des minima d'énergie correspondant à la dissociation CO2 > CO + O ; enfin la région en C est la zone où les trois atomes constitutifs de CO2 se sont dissociés. Si on note Q1 la première bissectrice des axes r1 et r2 représentant la vibration axiale symétrique ν 1, et Q3 la droite parallèle à la seconde bissectrice représentant la vibration axiale antisymétrique ν 3, il peut être intéressant de visualiser les sections correspondantes de l'isosurface. Ces sections sont représentées en Figure II 36. On remarque ainsi que la vibration symétrique est similaire à un potentiel d'oscillateur anharmonique, avec la présence d'une limite de dissociation ; en revanche, la vibration antisymétrique présente un potentiel harmonique : elle est non-dissociative ! Plus généralement la molécule étant dans un état vibratoire qui est donné par une combinaison linéaire des vibrations normales, on note donc que la forme des potentiels possibles sont nombreux, et que leur caractère dissociatif ou non n'est pas si simple à déterminer...

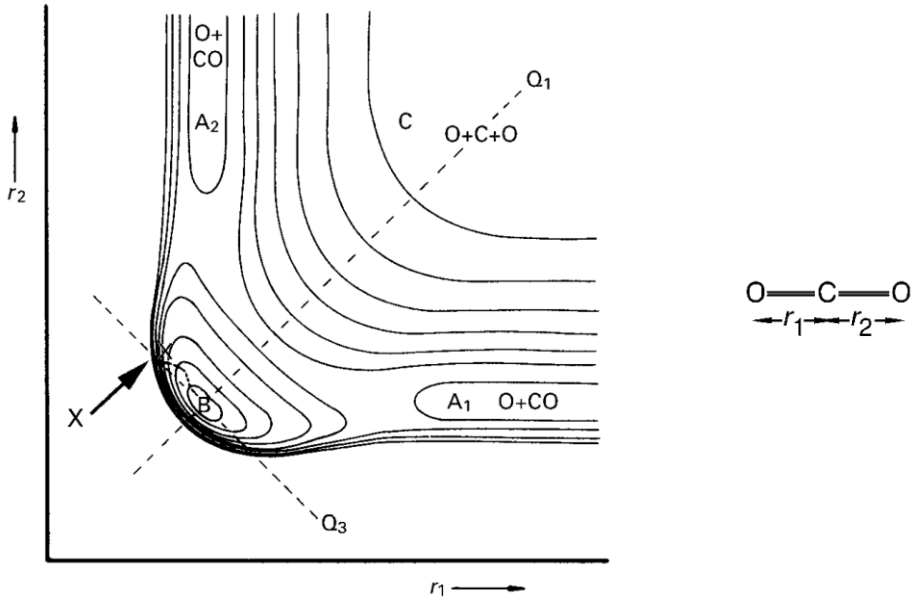


Figure II-35. Isosurface du potentiel de vibration axiale de CO2, en fonction des longueurs des liaisons C=O. [42]

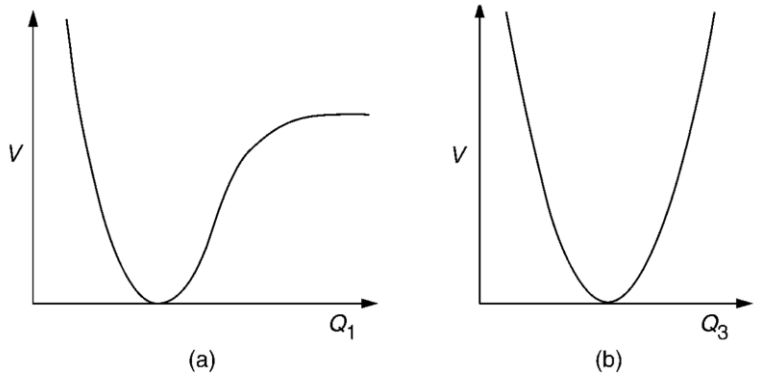


Figure II-36. Allure générale des potentiels V de CO2 pour les vibrations symétrique v1 (a) et antisymétrique v3 (b). [42]

Par la suite les phénomènes naturels (élargissements) et "artificiels" (fonction d'appareil) rendent ces spectres plus continus au sens mathématique du terme :

- L'élargissement naturel est issu du principe d'incertitude d'Heisenberg. La durée de vie ΔT d'un état excité est lié à l'incertitude ΔE sur son énergie. Ainsi un état de courte durée de vie laissera une grande incertitude sur l'énergie du photon émis. Ainsi plusieurs atomes/molécules sur un même état excité vont conduire non pas à une distribution d'énergie infiniment mince, mais à une raie élargie selon un profil Lorentzien.}

- L'élargissement Doppler (parfois appelé thermique) : l'effet Doppler crée un décalage en fréquence de l'onde émise par une source mobile. Dans un gaz, les

particules se meuvent dans toutes les directions, ce qui conduit à un élargissement de la raie spectrale ; si le gaz suit la statistique de Maxwell-Boltzmann, les raies sont élargies selon un profil Gaussien. Plus le gaz est chaud, plus les particules se meuvent rapidement : l'élargissement Doppler est alors plus important.}

- L'élargissement collisionnel (ou élargissement de pression) provient du fait que les énergies d'un atome (ou d'une molécule) sont calculées lorsque celui-ci est isolé. Or dans un milieu réel les atomes/molécules en présence sont en interaction permanente avec leurs voisins, ce qui modifie légèrement leurs niveaux d'énergie ; ces modifications sont aléatoires et conduisent à une distribution d'élargissement Lorentzienne. L'élargissement qui en résulte est d'autant plus important que la pression et la température sont importantes. Ce phénomène peut également conduire à un décalage du centre de la raie en fréquence. Les causes des élargissements sont multiples : on peut citer l'élargissement de Van der Waals, issu des interactions du même nom, l'élargissement Stark lorsque les particules sont soumises à un champ électrique, voire l'élargissement de résonance lorsque les particules qui interagissent sont sur des états énergétiques très proches.

Enfin, un phénomène important intervient dans les spectres de CO_2 : les résonances de Fermi. Celles-ci interviennent lorsque deux états ont les mêmes caractéristiques quantiques de symétrie, et que les énergies des transitions sont très proches. Cela arrive le plus fréquemment avec un mode normal et un mode harmonique (fréquence multiple d'un mode normal).

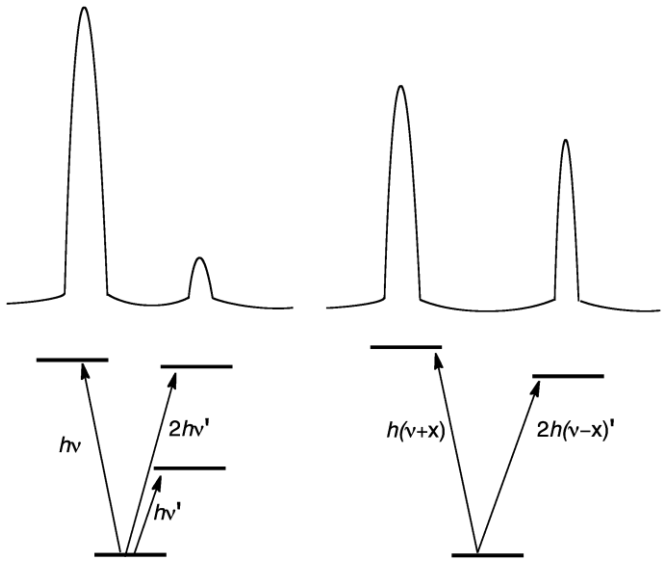


Figure II-37. Allure des changements dus à une résonance de Fermi. A gauche, niveaux non perturbés ; à droite, ce qui est réellement observé. [43]

Il y a alors un décalage en énergie des transitions, éloignant les raies l'une de l'autre, et une modification de leurs intensités respectives, la plus intense devenant plus faible et

la moins intense devenant plus importante. Le phénomène est d'autant plus marqué que les énergies initiales sont proches. La Figure II-37 illustre le résultat d'une résonance.

Sur CO_2, c'est le cas entre l'harmonique 02^00 de la transition 01^10 (premier état excité de ν_2 à 667 cm^{-1}, vibration de torsion) situé à 1334 cm^{-1}, et la transition 100 (premier état excité de ν_1, vibration d'élongation) à 1337 cm-1. Cela introduit un éloignement de ces raies, l'une étant renvoyée à 1285 cm^{-1}, l'autre à 1388cm^{-1}, mais aussi une augmentation en intensité de la raie 02^00 quasiment pour égaler celle de la transition 01^10. [43]

Ainsi, il est nécessaire d'utiliser un code capable de prendre en compte ces phénomènes pour produire ces spectres discrets puis les élargir, et enfin de résoudre l'équation de transferts radiatifs (ETR) sur une épaisseur de plasma.

II.4.2. Modèles et bases de données

Dans cette section vont être présentés les principes de calcul utilisés dans les codes de calcul de transferts radiatifs, ainsi que le cas plus particulier du code PASTIS élaboré au CORIA. [44]

a) Modèles de calcul

Le principe des codes similaires à PASTIS est simple : on part de la mécanique quantique pour déterminer les propriétés microscopiques de rayonnement des particules, à savoir les coefficients d'émission et d'absorption, puis dans l'hypothèse où la diffusion est absente, l'ETR est résolue de proche en proche sur un chemin optique et le résultat est intégré sur l'ensemble de ces chemins optiques.

Différents modèles de calcul de ces coefficients existent :

- Le modèle raie-par-raie est le modèle le plus complet car il nécessite de recenser l'ensemble des transitions intervenant dans les gammes de longueur d'onde du calcul. Chaque raie est traitée indépendamment : coefficients sur la transition puis élargissement du profil de raie ; Ensuite tous ces profils de coefficients sont additionnés pour donner les allures spectrales et locales des coefficients d'émission ou d'absorption de l'atome ou la molécule considéré(e). PASTIS utilise par exemple un traitement raie-par-raie.
- Le modèle statistique (appelé aussi modèle à bandes étroites) est un modèle similaire, mais se contente de calculer un coefficient "intégré" sur une bande de longueur d'onde. Il n'est alors plus nécessaire de traiter toutes les transitions une par une. [45]

- Des modèles "prévisionnels" existent, et se fondent sur la prédiction des grandeurs manquantes sur des raies non calculées, à partir de lois empiriques modélisées sur des raies déjà connues et tentant de décrire le comportement de ces grandeurs en fonction de divers paramètres tels que les températures ou les nombres quantiques par exemple. [46]

b) Bases de données de raies spectrales

Si pour des atomes ou des molécules diatomiques le calcul direct est possible, en revanche le calcul des hamiltoniens pour des molécules plus complexes telles que le CO_2 est plus problématique pour plusieurs raisons. Premièrement la résolution des hamiltoniens liés à une seule transition est bien plus ardue, à cause du nombre de paramètres quantiques mis en jeu et de la précision demandée. Deuxièmement le nombre de transitions possibles est bien plus important, donc rend le calcul bien plus long. Enfin la grande dépendance des coefficients avec des paramètres tels que la température et la pression rend la répétition de tels calculs extrêmement contre-productive.

Ainsi, à la manière de la chimie tabulée, des bases de données ont été créées pour stocker les caractéristiques des transitions prises en compte, dans le but pour l'utilisateur futur d'avoir la possibilité de directement les réutiliser lorsque leur cas de calcul rentre dans les tolérances de la base créée. Divers articles ont pour thématique de tester les domaines de validité des bases créées afin justement de permettre aisément de savoir dans quelles conditions une base est pertinente.

Il existe des bases de données pour les raies atomiques (nous utilisons fréquemment celle du NIST) mais aussi et surtout pour les molécules. Trois bases ont retenu notre attention :

- HITRAN est la plus ancienne d'entre elles [47] et existe donc dans différentes éditions avec différents cas de calcul [48], [49] pour diverses molécules et atomes. En général cette base a été calculée à la température dite de référence de 296 K.
- HITEMP est une version calculée à la température de 1000 K pour diverses molécules et atomes, puis les coefficients ont été ramenés à la température de référence de 296 K pour simplifier les traitements de ces bases. [50]
- CDSD était premièrement issu de la volonté de ses auteurs d'obtenir une base pour le CO_2 et est devenue un complément des bases ci-dessus car l'intégration y est très simple (format de présentation identique) ; il y a également eu différentes éditions, typiquement à des températures différentes (CDSD-1000, calculé à 1000 K a par exemple été intégré dans l'édition 2010 d'HITEMP) ou pour des atmosphères particulières telles que Vénus ou Mars. Dans notre cas de calcul, nous utilisons la base la plus récente, à savoir CDSD-4000 : calculée à 4000 K, elle est bien plus complète et lourde que ses congénères. [51], [52]

Ces bases de données sont sous la forme d'un ensemble de fichiers texte de 80Mo chacun contenant l'ensemble des raies sélectionnées par les auteurs et leurs

caractéristiques, comprises entre deux nombres d'onde mentionnés dans le nom de fichier. Ces trois bases de données ont l'avantage de se présenter sous le même format (à quelques paramètres près), à savoir des variables de tailles et de formats bien définis ; chaque liste de paramètres correspondant à une raie est concaténée pour optimiser la taille du fichier final. Cela présente l'inconvénient d'une lecture visuelle peu envisageable sans traitement préalable.

Le format HITRAN peut être présenté par le Tableau II-11 et la Figure II-38. Le numéro d'isotopologue permet d'indicer l'espèce concernée par la transition, l'isotopologue 1 représentant le plus courant sur Terre (et sur Mars), à savoir $^{16}O^{12}C^{16}O$. L'intensité S représente le coefficient d'absorption "brut" d'une raie d'absorption à la température de référence T_{ref}, à savoir 296 K :

$$S = \int_{-\infty}^{+\infty} k_\nu \, d\nu \qquad \text{(II-6)}$$

Pour retrouver l'allure de la raie d'absorption, il faut retrouver calculer S à la température T de notre cas de calcul, qui est donnée par l'expression (II-7) (où Q désigne la fonction de partition totale, σ_l désigne le nombre d'onde du niveau bas et σ_{ul} celui de la transition), puis convoluer cette distribution ponctuelle avec les profils d'élargissements dont on a parlé en Section II.4.1.

$$S(T) = S(T_{ref}) \frac{Q(T_{ref})}{Q(T)} \frac{e^{-\frac{hc\sigma_l}{k_B T}}}{e^{-\frac{hc\sigma_l}{k_B T_{ref}}}} \frac{1 - e^{-\frac{hc\sigma_{ul}}{k_B T}}}{1 - e^{-\frac{hc\sigma_{ul}}{k_B T_{ref}}}} \qquad \text{(II-7)}$$

Le profil global est un profil de Voigt donné par les articles de Whiting [53] et Oliveiro [54] dont les paramètres de largeur et de décalage sont données par les paramètres du calcul et ceux déduits de la base de données.

D'autres paramètres représentant les caractéristiques quantiques des états concernés par la transition sont également présents mais sont non pertinents pour l'utilisation que nous faisons de la base pour le moment.

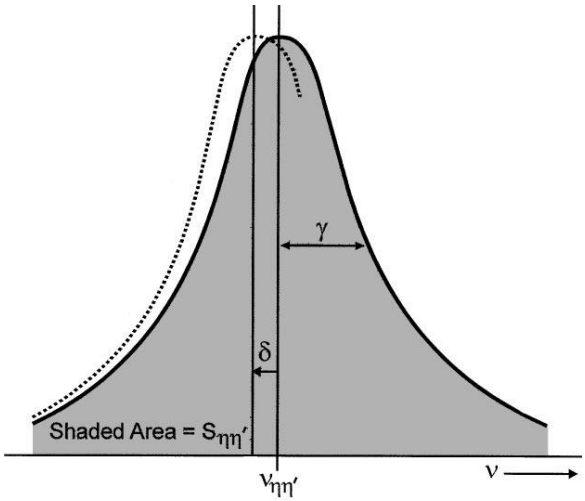


Figure II-38. Schéma des paramètres essentiels contenus dans HITRAN. [48]

Symbole	Paramètre	Longueur du champ	Type de variable	Unités et commentaires
M	Identifiant de la molécule	2	Entier	Par ordre chronologique d'introduction dans HITRAN
I	Numéro d'isotopologue	1	Entier	classé Par abondance sur Terre
ν_0	Nombre d'onde dans le vide	12	Réel	cm^{-1} à 296K
S	"Intensité"	10	Réel	$cm^{-1}.(molecule.cm^{-2})^{-1}$
A	Coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée	10	Réel	s^{-1}
γ_{air}	Mi-largeur à mi-hauteur (élargissmeent de pression dans l'air)	5	Réel	$cm^{-1}.atm^{-1}$ à 296K
γ_{self}	Mi-largeur à mi-hauteur (élargissement de pression dans le gaz pur)	5	Réel	$cm^{-1}.atm^{-1}$ à 296K
E"	Energie du niveau bas	10	Réel	cm^{-1}
n	Coefficient de dépendance en température pour γ	4	Réel	
δ	Décalage du centre de la raie dû à la pression (dans l'air)	8	Réel	$cm^{-1}.atm^{-1}$

Tableau II-11. Paramètres de la base de données HITRAN qui sont utilisés dans le code de calcul.

II.4.3. Intégration des bases de données dans PASTIS

PASTIS est un programme de calcul de spectres de type raie-par-raie initialement rédigé en FORTRAN77. Afin de pouvoir utiliser les bases de données de CO_2 sélectionnées, il a fallu créer des sous-programmes capables d'extraire les données importantes de ces bases et de calculer les spectres correspondants, puis d'exporter les résultats pour que le programme puisse continuer son calcul. C'est notamment le long travail qui a été effectué pour créer les trois subroutines appelées `Molecular...`, tant en termes de prise en main du langage, de compréhension du fonctionnement de PASTIS et des limitations de la machine de calcul. La Figure II-39 référence l'essentiel de la structure de PASTIS, avec en rouge les structures ajoutés dans ce travail. Il est à noter que d'autres subroutines du programme ont dû être modifiées afin de pouvoir appeler correctement les nouveaux sous-programmes et les variables et tableaux qui en découlent.

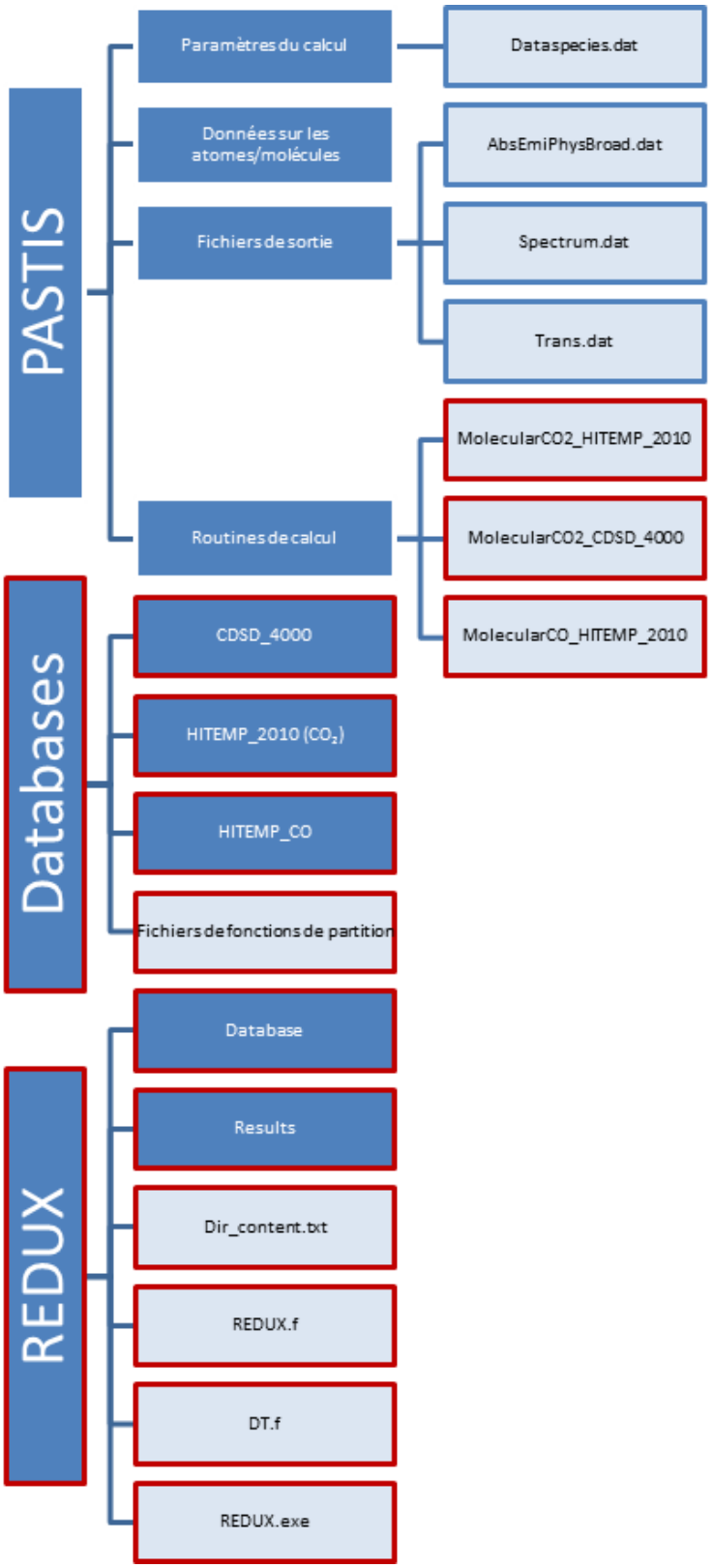


Figure II-39. Organigramme présentant la structure globale de PASTIS, ainsi que les ajouts effectués en rouge pour intégrer les bases de données au code.

Pour éviter de nombreux problèmes de mémoire, il a été nécessaire de reformater les bases utilisées en créant un programme annexe (Redux), qui permet de recréer des fichiers de bases de données au format quasi identique, mais en supprimant tous les paramètres inutilisés par les sous-programmes que j'ai créé. 40% d'espace ont ainsi été économisés sur les bases totales. Malgré tout, le nombre de raies présentes dans CDSD4000 pour le CO_2 est tel (plus de 600 millions) qu'il a fallu réviser le mode de fonctionnement du code PASTIS ; le nombre de raies excédait systématiquement la taille maximale possible des tableaux de stockage internes au programme.

De base, PASTIS calcule les coefficients d'absorption (`ab(nlines)`) et d'émission `em(nlines)` "bruts" ainsi que les données d'élargissement Doppler et de pression (`deltadop(nlines), deltap(nlines)`) pour chaque raie et les stocke dans des tableaux dédiés indicés par le numéro de raie ; puis grâce à la subroutine `PhysicalBroadeningAccurate` les raies sont élargies une à une, créant un tableau en longueur d'onde qui contient la somme des contributions de chacune des raies à l'absorption à telle longueur d'onde, et un autre pour l'émission. Afin de contourner la limitation de taille des tableaux, la subroutine `MolecularCO2_CDSD_4000` extrait le contenu d'un seul fichier de la base utilisée, calcule `ab(nlines), em(nlines), deltadop(nlines)` et `deltap(nlines)` et appelle directement `PhysicalBroadeningAccurate` pour élargir le tout et le stocker dans les tableaux en longueur d'onde ; ensuite la boucle effectue la même procédure pour le ficher de base de données suivant jusqu'à arriver hors du domaine de calcul. La plus grosse difficulté a résidé dans les conversions des grandeurs, car les bases de données sont en nombre d'onde là où PASTIS est rédigé en longueur d'onde, mais également en termes d'unités, avec l'intensité d'absorption S exprimée en $cm^{-1}.(molecule.cm^{-2})^{-1}$, là où les unités du système international utilisées dans PASTIS devrait nécessiter une grandeur en $m^{-1}.s^{-1}.(m^{-3})^{-1}$ ou $m^{-1}.Hz.(m^{-3})^{-1}$. Il a donc été nécessaire de remonter à la théorie complète de calcul de ces raies, en unités HITRAN comme en unités SI, afin de pouvoir effectuer les conversions qui conviennent. Au final, le principe de calcul est donné par la Figure II-40.

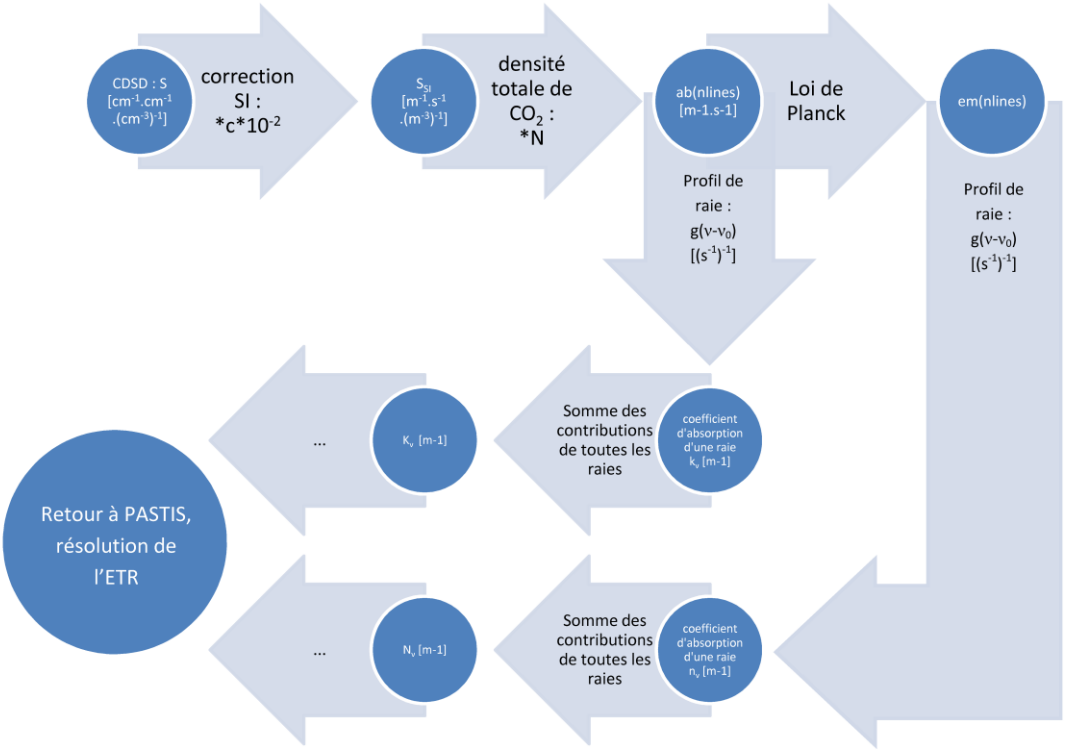


Figure II-40 Principe de calcul des raies à partir de CDSD.

Ainsi pour tester le programme modifié, je me suis servi d'un article de Perrin et al. [55] qui a calculé des spectres d'absorption locaux pour un plasma 50% CO–50% CO_2, à 100 Pa et 3600 K.

La molécule de CO étant diatomique, les systèmes de transitions énergétiques sont bien connus, et il est possible de calculer directement dans le code les caractéristiques de ces transitions et d'en sortir des spectres (Figure II-41). Nous avons également importé la base de données HITEMP pour CO à titre de comparaison.

Si les résultats sont quasiment identiques en termes de positions des bandes et de forme, on note néanmoins que les résultats du calcul direct sous-estiment les résultats publiés [55] : là où notre code nous donne un maximum de 0,15 m^{-1} à 2250 cm^{-1}, l'article présente un maximum à même position de 0,235 m^{-1} environ. En revanche, importer les données d'HITEMP donne des résultats plus proches de la littérature encore avec le même maximum d'absorption. Il peut y avoir plusieurs hypothèses à ces différences : il est possible que le code de calcul des potentiels ait trop simplifié les hypothèses de calcul, entraînant ces imprécisions ; cependant, de récentes modifications de la procédure de calcul (de longueur d'onde en nombre d'onde) ont entraîné un changement des résultats, laissant penser à une erreur de correction d'unités.

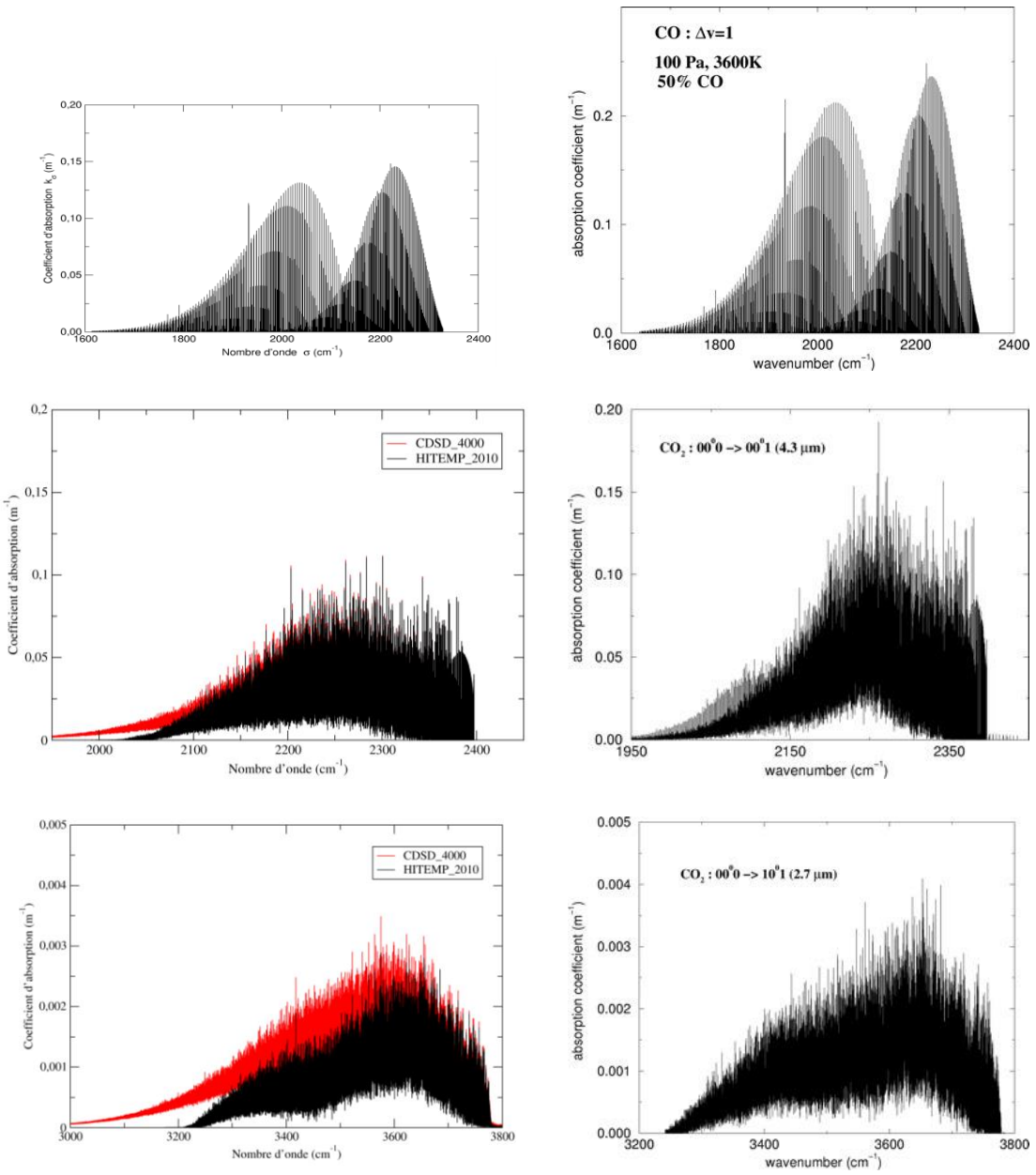


Figure II-41. Comparaison des spectres d'absorption simulés (à gauche) avec la littérature (à droite) [55]. De haut en bas : CO, bande B1 ; CO2, bande B1 ; CO2, bande B2.

Pour CO_2, nous avons donc utilisé CDSD-4000 (calculée à 4000 K) [52] et HITEMP-2010 (calculée à 1000 K) [50], car elles respectent le même formalisme, tant en termes d'unités, de température de références que de format de fichiers. Il est à noter que ce qui se gagne en termes de puissance de machine nécessaire et de temps de calcul se paye en termes de taille numérique des bases de données. C'est pourquoi nous avons allégé ces bases en éliminant les grandeurs tabulées qui n'étaient pas nécessaires à notre calcul et en réécrivant ensuite une base allégée, plus aisément exploitable.

Nous avons effectué des calculs dans les conditions décrites plus haut. Les résultats sont illustrés en Figure II-41, avec pour comparaison les résultats publiés dans l'article

de Perrin et al. (à droite) pour la bande spectrale correspondant au radiomètre B1. Un travail similaire a été réalisé pour la bande spectrale correspondant au radiomètre B2.

Nous pouvons tirer deux résultats de ces simulations :

- Si le calcul du coefficient d'absorption de CO_2 dans la gamme [2000 – 2400 cm^{-1}] semble peu dépendre de la base de référence, il n'en est pas de même pour la gamme [3000 – 3800 cm^{-1}]. On note que l'importance de choisir une base de donnée adaptée à notre cas de calcul (ici 3600K donc CDSD-4000 semblerait plus adaptée) se remarque via l'influence des bandes "chaudes", issues de transition avec des états énergétiques trop peu peuplés à 1000K (donc trop peu probables pour que leur présence ne soit mentionnée dans HITEMP-2010). Ainsi les coefficients d'absorption y sont largement sous-estimés.

- Ces deux bases de données nous donnent des résultats proches de ceux l'article de Perrin et al. [55], mais quantitativement un écart non négligeable subsiste : dans la bande d'ICOTOM B1, notre maximum global d'absorption (vers 2250 cm^{-1}) est d'environ 0,1 m^{-1}, ce qui sous-estime la valeur publiée (approximativement 0,15m^{-1}). En revanche le calcul effectué avec CDSD-4000 dans la bande B2 semble très proche des résultats de la littérature. Il est à noter que si les résultats sur une bande semblent proches, localement les raies semblent très différentes. Il sera donc nécessaire de comparer de manière plus poussée notre procédure de calcul et nos résultats avec ceux de la littérature pour améliorer nos simulations, et par la suite convoluer les spectres en transmission / émission avec la réponse des ICOTOM afin d'obtenir un signal théorique de ceux-ci pour comparaison avec les mesures dans les plasmas.

Ces mesures ICOTOM ainsi que ces simulations sont une première étape vers une simulation de l'écoulement, de la chimie et du rayonnement qui est actuellement l'objet d'une collaboration entre le CNES et divers laboratoires français, pour permettre de déterminer les modèles adaptés et nécessaires à la simulation d'une entrée martienne et comprendre l'intensité des phénomènes physico-chimiques mis en jeu lors de la recombinaison.

Chapitre III. VENOM

III.1. Principe

VENOM (pour Vibrationnally Excitated Nitrous Oxide Monitoring) désigne un diagnostic optique de mesures de vitesse et de température en deux dimensions, établi dans le cadre d'écoulements à haute vitesse et à température de 300 K. [56]

La méthode consiste à ensemencer l'écoulement avec une quantité contrôlée de NO_2, puis de produire du NO(X,v=1) via photodissociation grâce à une grille de faisceaux laser UV à 355nm. Cette population de NO excité vibrationellement n'étant pas présente nativement, elle peut alors être suivie en générant deux images successives de fluorescence induite par un plan laser coplanaire à la grille initiale, dont l'écart temporel est fixé. En visualisant le déplacement et la déformation de la grille initiale entre les deux images, un champ de vitesses 2D dans le plan de mesure est alors extractible. Si les lasers générant les deux images de PLIF sont réglés pour exciter deux états rotationnels différents, alors il est possible de remonter à une température de rotation du NO en question. Il faut pour cela inverser la déformation du motif de grille générée par l'écoulement du NO dans la seconde image, grâce à la mesure précédente du champ de vitesse. Ainsi la première image et la seconde image modifiée possèdent un motif superposable, dont le rapport des intensités locales permet de remonter à la température de rotation.

Une variante [57] a été introduite par la suite, dans laquelle le NO(X,v=1) est produit indirectement en excitant le NO(X,v=0) déjà existant dans le fluide considéré grâce un laser à 226 nm. La longueur d'onde est réglée finement pour chercher les transitions (X,v=0)→(A,v=0). Une fois que le NO(A,v=0) est produit, il se désexcite notamment par fluorescence et collisions, produisant une quantité de NO(X,v=1) dans le processus. C'est précisément cette espèce qui sera par la suite suivie par PLIF.

Le but de cette campagne a donc été mettre en place un système de mesure similaire applicable aux plasmas d'air, avec l'idée en cas de succès d'étendre cette technique à un plasma de CO2 ensemencé de NO, dans le but de mesurer des champs de vitesses et de températures locaux.

III.2. Dispositif prévu et dispositif réel

La Figure III-1 présente le dispositif initialement prévu. Le plasma produit par la torche inductive SOUPLIN présentée précédemment est soumis à deux excitations laser successives. La première excitation à 226 nm correspond à l'ensemble des transitions rovibroniques (X,v=0)→(A,v=0) entre les états électroniques $A^2\Sigma$ et $X^2\Pi$. La seconde à 224nm correspond quant à elle à l'ensemble des transitions rovibroniques (X,v=1)→(A,v=1) entre ces états électroniques $A^2\Sigma$ et $X^2\Pi$.

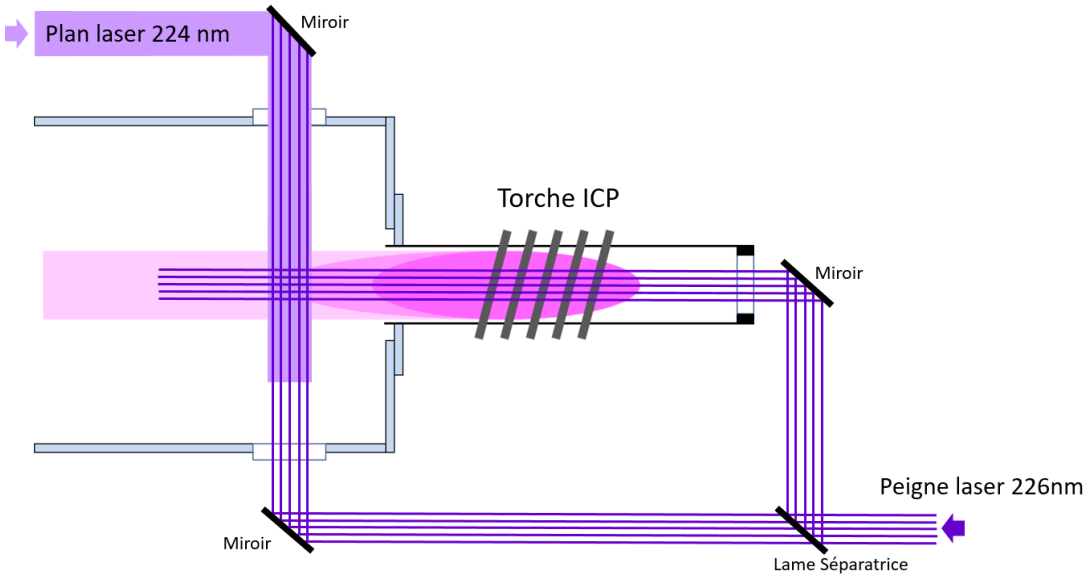


Figure III-1. Dispositif VENOM prévu, partie excitation laser. (vue de dessus)

La Figure III-2 présente un schéma simplifié du comportement attendu : la première excitation en étape 1 vient peupler l'état (A, v=0), qui se désexcite lors de l'étape 2 par fluorescence. L'étape 3 illustre l'excitation d'une partie de la population alors retombée en (X,v=1) par le second laser, l'amenant ainsi sur (A, v=1). L'étape 4 illustre la seconde désexcitation par fluorescence vers les états $X^2\Pi$. Il est important de noter qu'ici les longueurs d'onde sont indicatives et ne sont que l'approximation des longueurs d'onde réelles nécessaires pour exciter une transition rovibronique précise. Il est en effet nécessaire de régler précisément la longueur d'onde pour pouvoir obtenir l'absorption nécessaire à la population des états $A^2\Sigma$ recherchés.

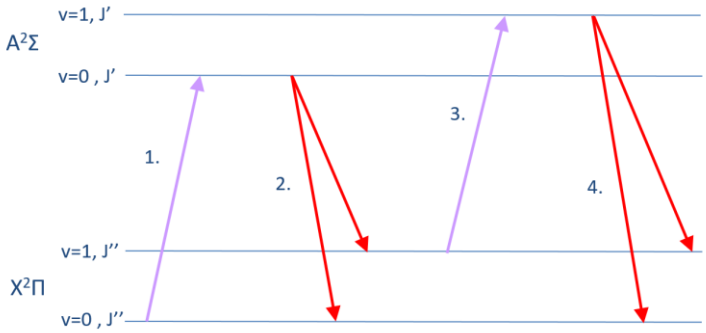


Figure III-2. Modèle simplifié des transitions ciblées par VENOM.

Le dispositif initial prévoit donc la création d'un peigne laser qui sera séparé en deux branches pour générer un motif de grille lors de la première excitation, et d'une nappe laser lors de la seconde excitation pour retrouver le motif alors déformé par

l'écoulement du plasma. La mesure des déplacements de chacun des points de la grille entre les deux images donnera accès aux composantes axiales et radiales de la vitesse.

En tenant compte du montage de collection et de ses performances, et de la distance minimale nécessaire entre deux faisceaux lasers pour qu'ils soient résolus sur l'image, la décision d'utiliser un système produisant 5 faisceaux à partir du laser initial semble un bon compromis.

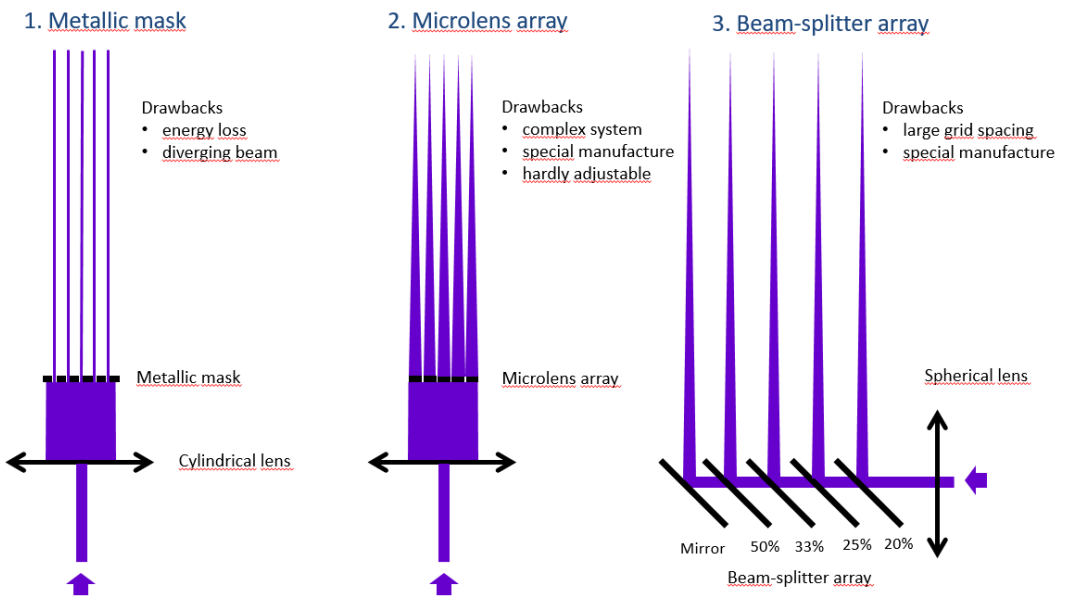


Figure III-3. Différentes solutions pour la production du peigne laser.

Trois solutions illustrées en Figure III-3 ont été étudiées pour la production du peigne de 5 faisceaux. La solution la plus simple consiste à faire passer le faisceau laser dans un masque métallique percé de 5 trous, mais c'est aussi la solution où la perte d'énergie est la plus importante. La seconde utilise une matrice de microlentilles, chacune d'entre elles collectant et focalisant un cinquième de l'énergie totale. Cela nécessite notamment une collaboration avec une entreprise de vente ou de production d'optiques pour produire spécifiquement un tel dispositif, et aucune d'entre elles n'était intéressée par le développement d'un tel système. La troisième solution a été testée et consiste en la succession de 4 lames séparatrices et un miroir permettant donc de séparer le faisceau original en 5, donnant ainsi le nom au système : pentasplitter. Les résultats se sont révélés très satisfaisants en ce qui concerne la forme et la qualité des faisceaux produits. Cependant la précision mécanique de l'assemblage, compte tenu de ces faibles dimensions, était insuffisante pour garantir le caractère coplanaire et parallèle des 5 faisceaux de sortie. De même, en raison de la distance très faible entre deux lames successives (2.5mm), il est extrêmement complexe de concevoir un moyen de contrôler indépendamment leur positionnement. La décision de revenir sur la première solution a alors été retenue, les

calculs permettant de s'assurer que l'énergie par impulsion de 2 mJ du laser serait suffisante.

Afin de collecter le signal de fluorescence, un système de deux caméras ICCD PI-MAX (une PI-MAX2 en bas et une PI-MAX4 en haut) a été mis en place, comme illustré en Figure III-4. Les optiques de collection utilisées permettent de déterminer une taille de zone de mesure de 10mm*10mm, centrée sur l'axe de symétrie du plasma et située entre 76 et 86 mm de la sortie de la torche. La caméra du dessus était destinée à collecter la fluorescence due à la première excitation (226 nm), tandis que la caméra inférieure devait collecter la fluorescence due à la seconde excitation (224 nm). Des filtres devaient permettre de ne conserver que le rayonnement de fluorescence recherché.

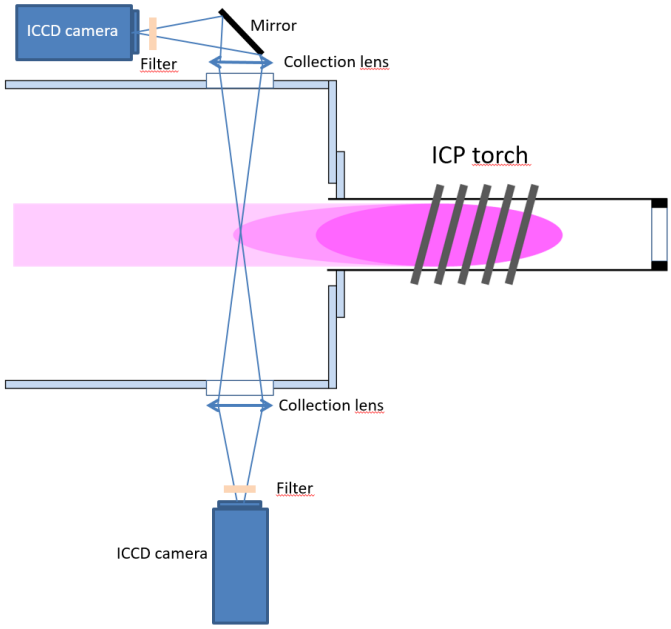


Figure III-4. Système initial de collection de la fluorescence. (Vue de côté)

Par la suite, pour maximiser le signal collecté, ces filtres ont été supprimés et une seule caméra (celle du dessus) a été utilisée. En tenant compte du fait que le premier motif de fluorescence est issu de l'excitation laser en grille, la première fluorescence peut n'être enregistrée qu'une fois pour la mesure des champs de vitesse. En revanche dans le cas des mesures de température pour un écoulement instationnaire, deux caméras sont nécessaires. Il est à noter que la taille des motifs dépend des optiques de focalisation et de collection, mais aussi de la durée de collection de l'image.

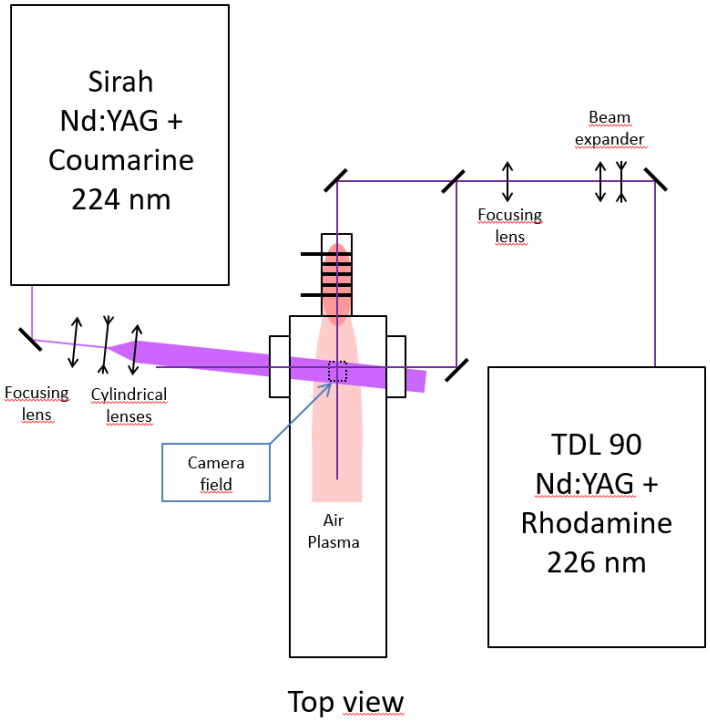


Figure III-5. Système d'excitation réel. (Vue de dessus)

L'installation réelle d'excitation a également été modifiée, avec l'ajout d'un réducteur de faisceau lors des tests du pentasplitter, d'un élargisseur de faisceau (*beam expander*) pour obtenir un beam waist plus fin, ou le décalage angulaire de l'axe optique de la nappe à 224 nm pour éviter que chaque laser ne pénètre dans le système optique de l'autre. Dans la plupart des tests, le masque métallique n'a pas été utilisé. En effet, sans connaître a priori le motif de la seconde image, il paraissait judicieux de ne pas générer d'ambiguïté sur l'identification et la mise en correspondance des signaux de fluorescence. (Est-ce l'image du premier faisceau horizontal ou celle du second, du troisième… ? Si le déplacement du NO correspondant est mal identifié, l'influence sur la valeur de la vitesse est immédiate.)

Il est intéressant de noter que la déviation des lasers due aux gradients des indices optiques lors du passage dans la zone comportant le plasma n'est pas significative.

Pour produire le laser à 226 nm, un laser à colorant Quantel TDL90 pompé par un laser Nd:YAG a été utilisé. Le colorant, un mélange de 80% Rhodamine 590 et 20% de Rhodamine 610 est pompé par le laser Nd:YAG doublé à 532 nm pour donner un faisceau à 575 nm, puis celui-ci est sommé dans un cristal de mélange avec le fondamental du Nd:YAG à 1064 nm pour donner un faisceau à 226 nm. L'énergie de ce faisceau de sortie est d'environ 2.5 mJ.

Pour produire le laser à 224 nm, la procédure est un peu plus simple. Un laser à colorant Sirah PrecisionScan pompé par un laser Nd:YAG a été utilisé. Le colorant, de

la Coumarine, est pompé par le laser Nd:YAG triplé à 355 nm pour donner un faisceau à 448 nm, puis celui-ci est sommé avec lui-même dans un cristal doubleur (cas particulier d'un cristal de mélange) pour donner un faisceau à 224 nm. L'énergie de ce faisceau de sortie est d'environ 2.5 mJ.

III.3. Points de fonctionnement

Trois points de fonctionnement avaient été sélectionnés pour explorer diverses situations de températures et de vitesses. Ces conditions étaient les suivantes :

- p = 4 kPa – h = 12 MJ/kg – T ≈ 3500 K
- p = 4 kPa – h = 16 MJ/kg – T ≈ 4200 K
- p = 2 kPa – h = 12 MJ/kg – T ≈ 3000 K

Durant la campagne, d'autres conditions ont également été explorées, notamment pour aller chercher des valeurs plus élevées de pression et plus faibles d'enthalpie. La plupart des tests ont été effectués dans des intervalles de 1.5 à 7.5 kPa pour la pression, et de 6 à 12 MJ/kg pour l'enthalpie. Le signal de fluorescence était très faible dans les points de plus hautes enthalpies. En prenant cela en compte, en plus des difficultés à obtenir le second signal de fluorescence, les efforts se sont concentrés sur les points de fonctionnement plus favorables, à basse pression (1.5 kPa) et faible enthalpie (6.5 MJ/kg), avec des températures estimées de l'ordre de 2500 K.

III.4. Diffusions Rayleigh et de Mie, fluorescence induite par laser et VENOM

III.4.1. Diffusions Rayleigh et de Mie

La diffusion Rayleigh désigne la diffusion élastique de la lumière par des particules dont la taille caractéristique est plus petite que la longueur d'onde. Dans le cas où la taille des particules est plus grande que la longueur d'onde, on entre dans le domaine de la diffusion de Mie.

De tels signaux peuvent être enregistrés dans l'air à pression atmosphérique avec le même dispositif que pour les mesures de fluorescence. Dans ce cas, la diffusion Rayleigh vient de l'interaction du laser avec les molécules de l'air, tandis que la diffusion de Mie est principalement due aux poussières présentes naturellement dans l'air lorsque la veine n'est pas maintenue à basse pression. Ainsi ces deux signaux permettent de placer le laser ainsi que de régler les optiques de collection afin de produire des images nettes.

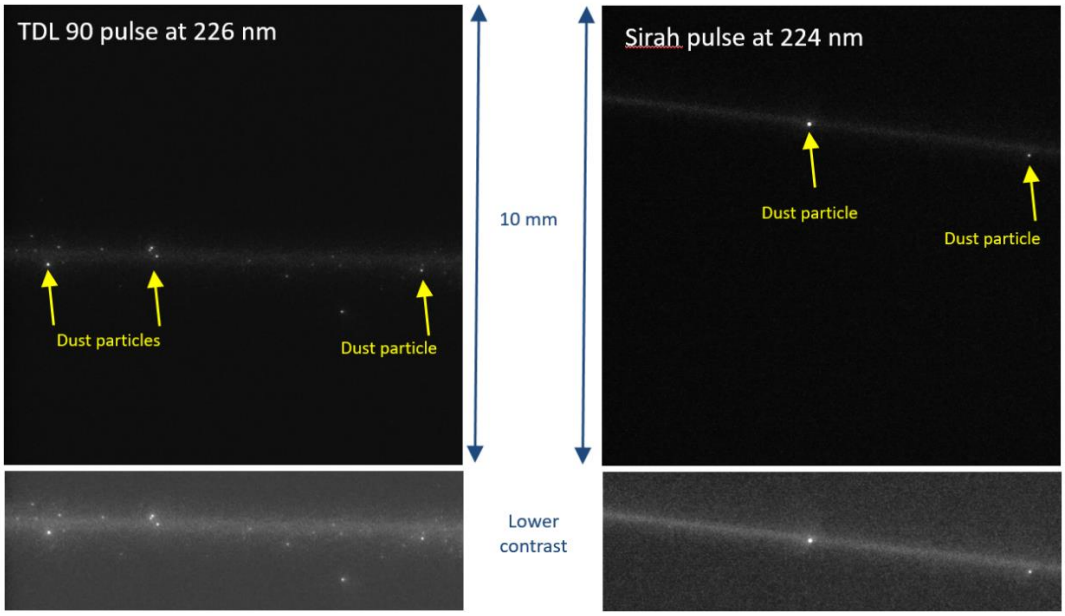


Figure III-6. Visualisation des faisceaux lasers à pression atmosphérique. La mise au point se fait sur les poussières qui traversent le laser.

La Figure III-6 montre des images de diffusion avec chacun des deux lasers. Les deux sont en configuration de faisceau, le 226 nm étant horizontal tandis que le 224 nm est, comme déjà précisé précédemment, légèrement incliné. On voit très distinctement les particules diffuser la lumière lorsqu'elles traversent le volume excité par le laser, et optimiser la netteté de ces points lumineux à l'image permet de s'assurer du bon réglage des optiques de collection.

Les caractéristiques du milieu sondé ainsi que les sections efficaces Rayleigh étant bien connues, c'est également un bon moyen pour étalonner l'énergie laser et la géométrie de la collection.

III.4.2. Fluorescence induite par laser

Avant d'utiliser les deux lasers lors d'expériences communes, des tests de fluorescence induite par laser ont été menés afin d'estimer les niveaux de signal aux deux longueurs d'onde, ainsi que de régler finement la longueur d'onde des lasers pour aller chercher les transitions adéquates. Deux exemples d'images de fluorescence sont illustrées en Figure III-7. Sur la première, le laser à 226 nm a été séparé en deux faisceaux perpendiculaires : l'un traverse le plasma axialement (le faisceau vertical sur l'image) et le second radialement (le faisceau horizontal sur l'image). La configuration du laser 224 nm est la même que précédemment.

Ces images permettent d'obtenir quelques informations qualitatives. La géométrie des faisceaux et leur rapport signal sur bruit sont satisfaisants. En effet ce dernier est de 12 pour le laser à 226 nm et de 17 pour le laser à 224 nm. Cela nous assure de la présence de NO(X,v=0) dans le plasma, qui est requise pour l'expérience. De même, on observe la présence de NO(X,v=1) due aux températures élevées, sans quoi nous n'aurions pas de fluorescence à 224 nm (image de droite sur la figure 7). Ce NO est le même que celui produit lors du processus excitation-désexcitation provoqué par le laser à 226 nm, il est donc nécessaire de différencier les deux contributions à la fluorescence : nous distinguerons alors une fluorescence thermique due au NO(X,v=1) présent naturellement dans le milieu, d'une extra-fluorescence issue de la génération de NO(X,v=1) grâce au laser à 226 nm.

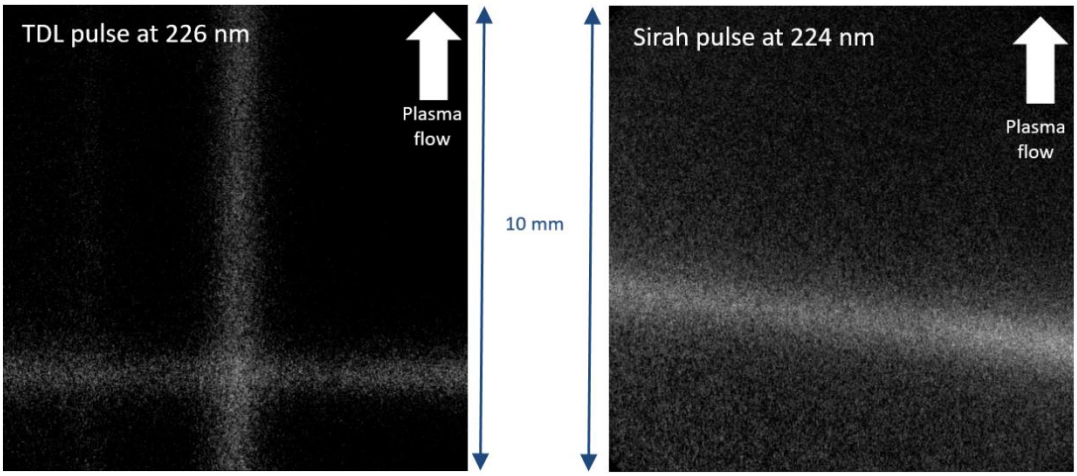


Figure III-7. Images indépendantes de fluorescence dans le plasma.

La particularité des lasers à colorant est de pouvoir modifier finement leur longueur d'onde. Ainsi, si le plasma est stationnaire, il est possible de faire parcourir une certaine gamme de longueur d'onde au laser pour obtenir un spectre d'excitation, correspondant à l'intensité de la fluorescence en fonction de la longueur d'onde du laser. Ce test peut être effectué quelle que soit la température pour le laser à 226 nm, car le niveau NO(X,v=0) est toujours suffisamment peuplé. En revanche, pour le laser à 224 nm, il doit forcément être effectué à plus haute température, où la densité de NO(X,v=1) sera suffisante.

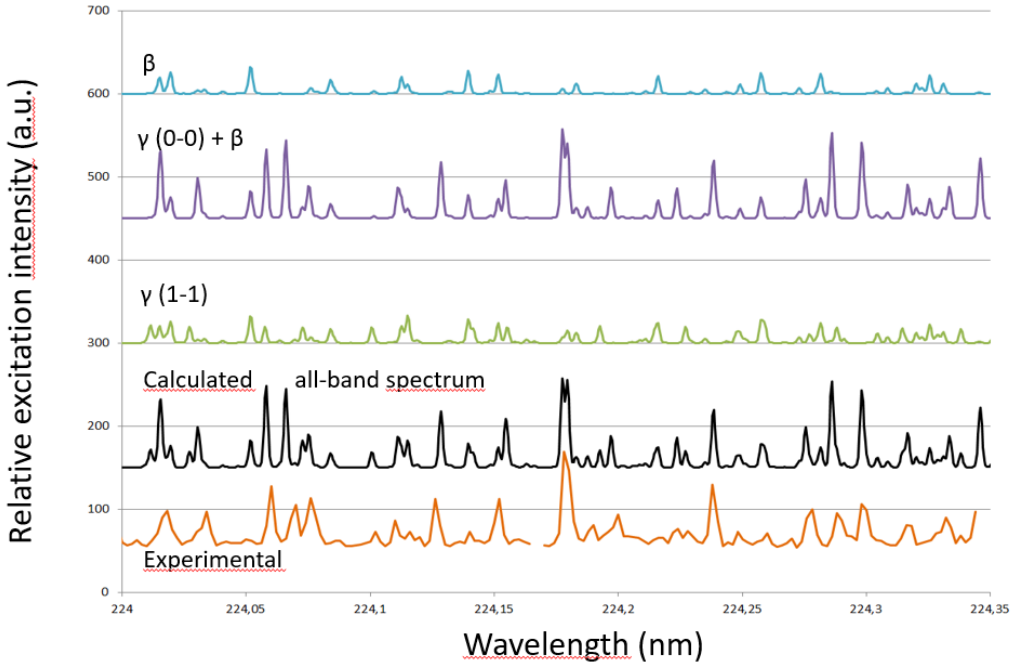


Figure III-8. Spectres de fluorescence calculés, et un spectre expérimental de NO dans un plasma d'air.

III.4.1. VENOM

L'utilisation successive des deux sources d'excitation pour générer le signal supplémentaire de fluorescence de NO(X,v=1) recherché nécessite de déterminer l'importance de plusieurs facteurs, comme l'énergie à apporter, ou le décalage nécessaire entre les deux sources. Il est aussi souhaitable de comparer la population supplémentaire de NO(X,v=1) apportée par le premier laser par rapport à la population de NO(X,v=1) nativement présente dans le plasma. Pour cela un modèle 0D simplifié va simuler les processus à l'œuvre suite à ces deux excitations laser.

III.5. Modèle couplé de fluorescence

III.5.1. Principe de VENOM

Le modèle a pour objectif de simuler la séquence d'événements et les processus élémentaires en jeu lors des mesures VENOM. Cette séquence est décrite comme suit :

- Excitation de NO(X,v=0,J") vers NO(A,v=0,J') à 226 nm (bande γ)
- Fluorescence de NO(A,v=0,J') vers NO(X,v,J"), en particulier NO(X,v=1,J") : première image
- Convection des molécules NO(X,v=1,J") avec le flux de plasma
- Excitation de NO(X,v=1,J") vers NO(A,v=1,J') à 224 nm (bande γ)
- Fluorescence de NO(A,v=1,J') vers NO(X,v,J"): seconde image

Il est à noter que ces processus peuvent être simultanés et ne se déroulent pas sur les mêmes échelles de temps. Il est donc nécessaire de connaitre l'évolution temporelle des populations intervenant dans la séquence.

III.5.2. Modèle VENOM

Afin de rendre les calculs simples et rapides, quelques hypothèses ont été posées :

- Modèle à 4 niveaux :
  NO(X,v=0,J), NO(X,v=1,J), NO(A,v=0,J), NO(A,v=1,J)
- Pas de transferts radiatifs ou collisionnels vers d'autres niveaux rovibrationnels, les transferts d'énergie rotationnelle et vibrationnelle sont considérés comme négligeables pour des échelles de temps inférieures à 1 µs : c'est l'approximation la plus importante, mais comme pour la désexcitation collisionnelle, la conséquence principale n'est que de réduire les échelles de temps.
- Réglage parfait des sources laser :
  L'excitation laser a lieu au maximum de la raie d'absorption, qui est considérée comme une raie gaussienne.
- Equilibre thermique :
  Températures rotationnelle, vibrationnelle et d'excitation électronique identiques. De précédentes études ont montré que ce n'était pas le cas dans toutes les conditions de fonctionnement, en particulier à basse pression. Dans certains cas la température de vibration est plus importante que la température de rotation, ce qui a pour effet d'amplifier certains phénomènes décrits plus loin.
- Basse pression (1.5 kPa):
  C'est la condition la plus étudiée expérimentalement, et est soumise à un faible niveau de désexcitation collisionnelle.
- Les sources laser ont des distributions d'énergie spectrales et temporelles de forme gaussienne.
- Déclenchement de l'excitation à 226 nm: 15 ns (arbitraire pour démarrer avec zéro fluorescence).
- Déclenchement de l'excitation à 224 nm : 100 ns, 300 ns ou 800 ns.
- Temps caractéristique de l'excitation à 226 nm (largeur à mi-hauteur): 4ns.
- Temps caractéristique de l'excitation à 224 nm (largeur à mi-hauteur): 5ns.
- Largeur spectrale de la raie laser à 226 nm : 1.7 cm^{-1}.
- Largeur spectrale de la raie laser à 224 nm : 0.3 cm^{-1}.
- Aire de la section de l'impulsion laser à 226 nm : 0.03 mm^2.
- Aire de la section de l'impulsion laser à 224 nm : 0.0075 mm^2 (dans le cas d'une excitation par un faisceau).
- Répartition spatiale uniforme de l'énergie laser sur la section.

- Pas de temps : 1 ps.
- Méthode de résolution : explicite.

Ecrire les équations d'Einstein nous donne :

$$\frac{dn_1}{dt} = -n_1.B_{13}.u_{226nm} + n_3.[B_{31}.u_{226nm} + A_{31} + Q_{31}]$$

$$\frac{dn_2}{dt} = -n_2.B_{24}.u_{224nm} + n_3.[A_{32} + Q_{32}] + n_4.[B_{42}.u_{224nm} + A_{42} + Q_{42}]$$

$$\frac{dn_3}{dt} = -n_3.\left[B_{31}.u_{226nm} + \sum A_{3v''} + \sum Q_{3v''}\right] + n_1.B_{13}.u_{226nm}$$

$$\frac{dn_4}{dt} = -n_4.\left[B_{42}.u_{224nm} + \sum A_{4v''} + \sum Q_{4v''}\right] + n_2.B_{24}.u_{224nm}$$

Sachant que :

$n_1 = n(X, v'' = 0, J'')$

$n_2 = n(X, v'' = 1, J'')$

$n_3 = n(A, v' = 0, J')$

$n_4 = n(A, v' = 1, J')$

u_{224nm} , u_{226nm} : Densités spectrales d'énergie, respectivement à 224 et 226 nm

A_{ij} , B_{ij} , B_{ji} , Q_{ij} : Coefficients d'Einstein et taux de désexcitation collisionnelle

La température d'équilibre est le paramètre d'étude principal dans le modèle. Afin d'initialiser les calculs, les populations des niveaux sont calculés grâce que code PASTIS [8] également utilisé pour le calcul des spectres d'absorption et d'émission, ou la resolution de l'équation de transfert radiatif sur un chemin optique.

III.5.3. Effets de saturation

L'un des paramètres de l'étude est l'énergie de chaque impulsion laser. Nous pouvons relier ce paramètre à la densité d'énergie laser grâce à l'aire de la section minimale (waist) du laser et à sa répartition spectrale d'énergie. Si la densité spectrale d'énergie est trop importante, un grand nombre de molécules est excité par le laser et le processus d'excitation est alors saturé dans les équations d'équilibre.

Pour ces calculs le délai est court (85 ns) et la même énergie E est choisie pour les deux sources lasers. Les calculs sont faits pour les raies d'excitation suivantes :

- R1(0-0, J=0.5): 226,1592 nm
- R1(1-1, J=0.5): 223,8006 nm

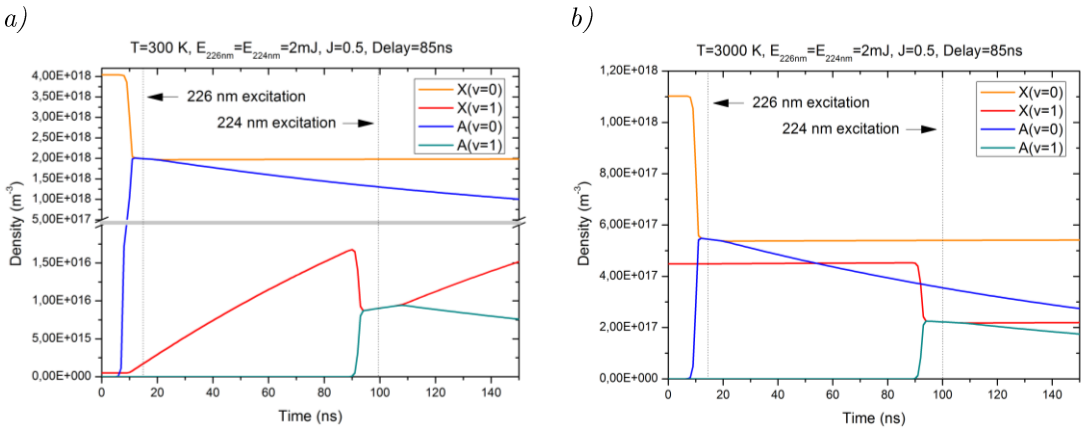


Figure III-9. Évolutions temporelles des populations pour E=2 mJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).

La Figure III-9 illustre l'évolution typique des densités de populations avec des énergies de faisceau de 2mJ, soit le maximum expérimentalement obtenu avec les sources laser. Lors des deux excitations, la saturation intervient très rapidement et bien avant le maximum d'énergie de chaque laser (représenté par les lignes verticales grises), et ce à des températures de 300 K comme de 3000 K. La principale différence observée vient de la population NO(X,v=1) : étant relativement absente à 300 K au début de la simulation, cette population augmente suite à la première excitation jusqu'au moment de la seconde excitation, là où à 3000 K, cette population est dès le départ suffisante pour ne pas être modifiée par la première excitation.

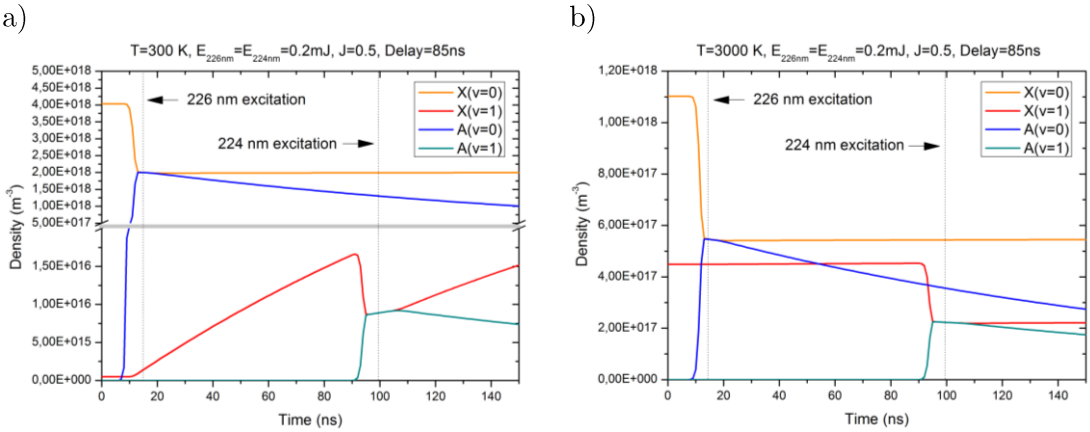


Figure III-10. Évolutions temporelles des populations pour E=0,2 mJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).

Il n'y a pas de différence significative lorsque l'énergie est divisée par 10 (Figure III-10). En comparant les deux figures, on note que la saturation arrive plus tard lorsque l'énergie est moins importante. En diminuant encore l'énergie d'un facteur 100 (Figure III-11) jusqu'à 2 µJ, on aperçoit enfin un comportement sans effet de saturation. La seconde excitation est encore très proche de la saturation, car à même énergie par

impulsion que la première source à 226 nm, la seconde source possède de plus grandes finesses spectrale et temporelle, rendant la densité spectrale d'énergie de la source plus importante.

Quelle que soit l'énergie, le comportement de NO(X,v=1) reste le même, croissante entre les deux excitations à 300 K et quasi constante à 3000 K. De plus, la densité maximale de NO(X,v=1) à 300 K est un à deux ordres de grandeur plus faible que celle à 3000 K

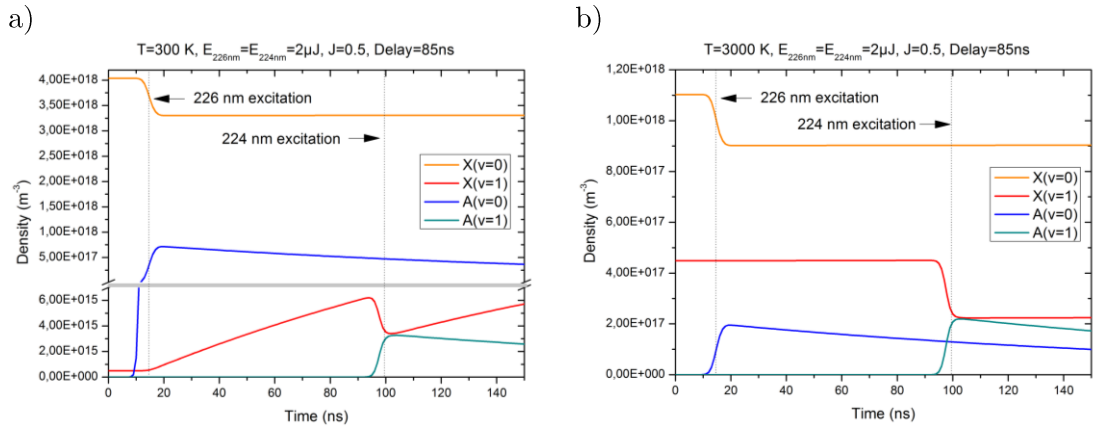


Figure III-11. Évolutions temporelles des populations pour E=2 µJ, T=300 K (a) et T=3000 K (b).

III.5.4. Évolution temporelle relative de NO(X,v=1) en fonction de la température

VENOM étant basée sur la surpopulation du niveau NO(X,v=1), il paraît judicieux d'étudier le rapport $R_{NO} = \frac{[NO(X,v=1)(t)]}{[NO(X,v=1)(t=0)]}$ entre la densité de NO(X,v=1) à chaque instant et sa densité initiale pour illustrer l'efficacité éventuelle de l'excitation.

Pour les mêmes conditions expérimentales (avec E=0,2mJ), la Figure III-12 présente ce ratio pour des températures de 300 K, 3000 K et une nouvelle température de 600 K. Si les deux températures déjà utilisées confirment nos observations précédentes, on s'aperçoit également que dès 600 K le processus de surpopulation est beaucoup moins efficace avec un facteur 1,4, en comparaison d'un facteur 35 à 300 K.

L'explication de ce phénomène peut être donnée grâce aux équations : plus grande est la densité de NO(X,v=1), et plus sa dérivée temporelle sera faible. À de hautes températures, la population thermique de NO(X,v=1) est naturellement importante, à tel point que le processus de surpopulation n'est plus efficace.

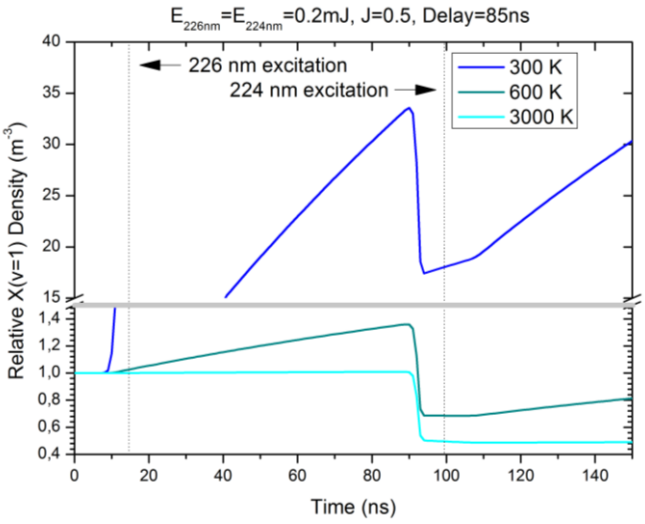


Figure III-12. Évolution du ratio NO(X,v=1)(t) sur NO(X,v=1)(t=0) pour E=0,2 mJ, T=300 K, T=600 K et T=3000 K.

Dans ces conditions, il devient alors impossible de différencier la population thermique de NO(X,v=1) de la surpopulation amenée par l'excitation laser. Dans les deux prochaines sections nous étudierons la possibilité de changer deux autres paramètres liés aux sources lasers : le délai entre leurs déclenchements respectifs, puis le changement de longueurs d'ondes pour chercher une transition plus efficace.

III.5.5. Influence du délai entre les deux excitations

A basse pression, le processus de désexcitation est principalement radiatif. Dans le cas de la désexcitation de NO(A,v=0), ce processus vient peupler le niveau NO(X,v=1). Sachant que le temps de cette désexcitation est d'environ 400 ns (cf courbe bleue de la Figure III-13), allonger le délai entre les deux sources lasers pour se rapprocher de cette durée devrait permettre te sonder un niveau NO(X,v=1) plus peuplé que dans les cas illustrés précédemment.

Les Figures III-13 et III-14 présentent l'évolution des densités de population à 300 et 3000 K lorsque les délais entre les deux impulsions laser sont réglés respectivement à 285 ns et 785 ns. Les changements sont particulièrement visibles lorsque T=300 K. Plus le délai est important, plus le processus de surpopulation est efficace. La Figure III-14 nous montre cependant que des délais supérieurs à 800 ns sont inutiles car la désexcitation de NO(A,v=0) est à 98% accomplie.

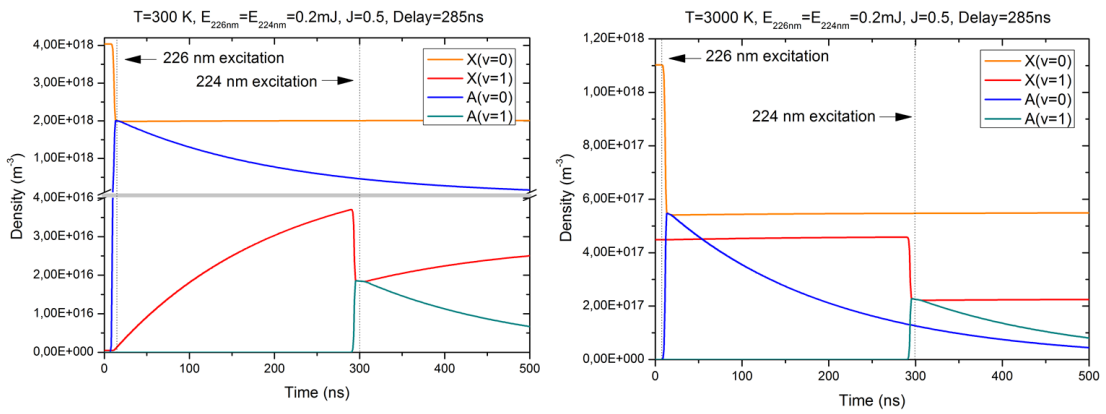


Figure III-13. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 285 ns, T=300 K (à gauche) et T=3000 K (à droite).

En revanche, à T=3000 K, la surpopulation de NO(X,v=1) reste extrêmement faible comme les montrent également les Figures III-13 et III-14, à droite.

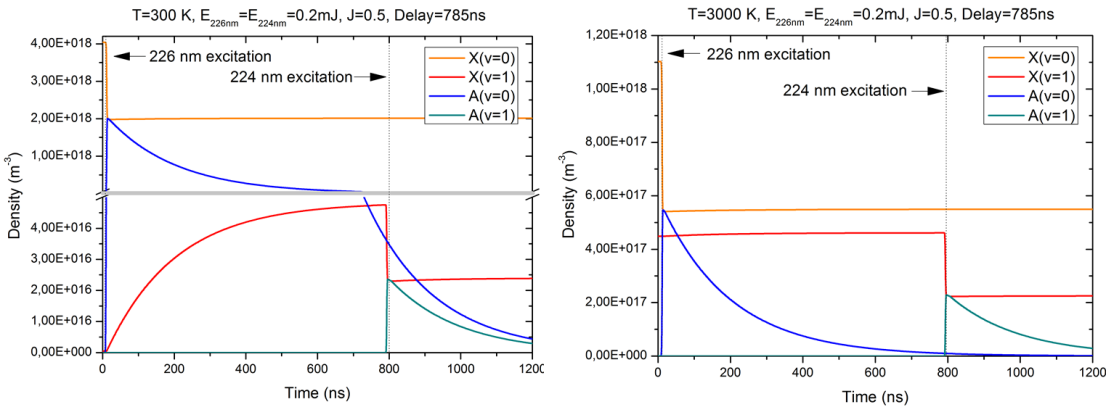


Figure III-14. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 785 ns, T=300 K (à gauche) et T=3000 K (à droite).

III.5.6. Influence du nombre rotationnel des niveaux sondés

Les premiers tests expérimentaux ont été effectués avec des transitions dont les nombres rotationnels étant compatibles avec une population thermique importante pour obtenir un fort signal de fluorescence, et des nombres rotationnels faibles. Mais quelles différences dans les résultats aurait-on avec des nombres rotationnels plus élevés ?

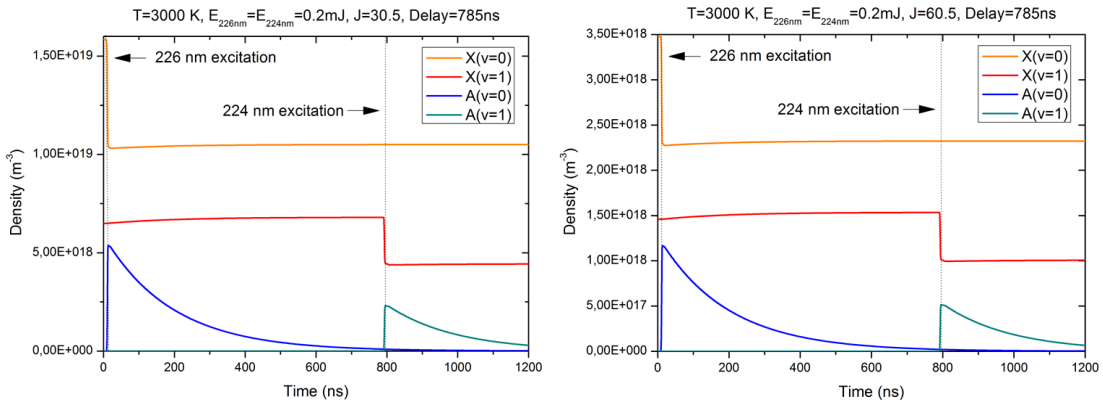


Figure III-15. Évolution temporelle des densités avec un délai entre les impulsions laser de 785 ns, pour T=3000 K, J=30.5 (à gauche) et J=60.5 (à droite).

La Figure III-15 montre l'évolution temporelle des densités de populations lorsque le nombre rotationnel est plus élevé, ici J=30.5 et 60.5. Elle peut être comparée avec le graphique de droite sur la Figure III-14. Sans surprise, la densité la plus importante de NO(X,v=1) est atteinte pour des nombre rotationnels intermédiaires. L'expérience a fait ressortir les plus grandes densités pour J=15.5 et 20.5. Il faut avoir en tête que moins un niveau est initialement peuplé, plus les équations de bilan permettent une importante surpopulation. Ainsi le processus de surpopulation est plus efficace pour des niveaux faiblement peuplés.

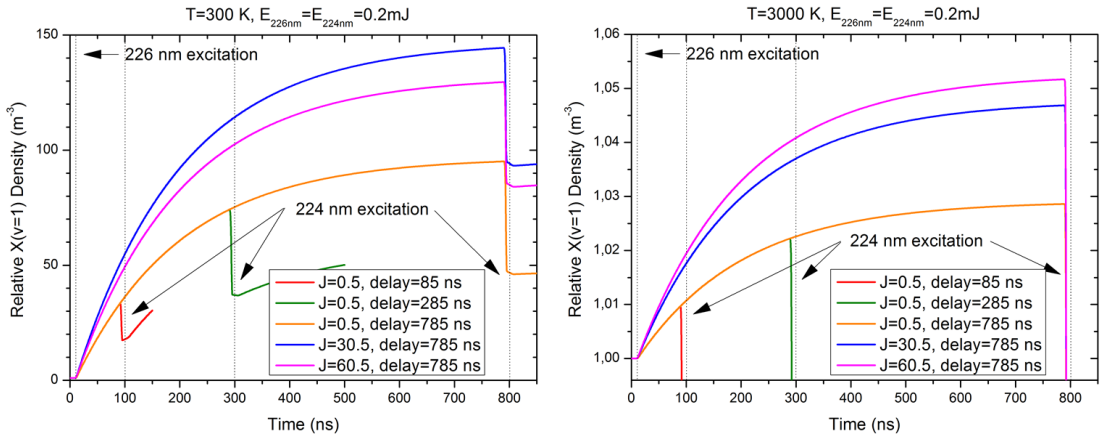


Figure III-16. Évolution du ratio NO(X,v=1)(t) sur NO(X,v=1)(t=0) pour E=0.2 mJ, T=300 K (à gauche) and T=3000 K (à droite) pour divers délais et nombres rotationnels.

La Figure III-16 peut être utilisée comme un résumé des remarques précédentes pour T=300 K et T=3000 K. Pour T=3000 K, la surpopulation est plus importante pour J=60.5 que pour J=30.5 à cause de la plus faible densité initiale à J=60.5. Malgré tout, cela n'implique pas que l'utilisation de ces états de nombre rotationnel élevé dans une expérience VENOM donnerait des résultats significatifs, la surpopulation n'excédant pas les 5%.

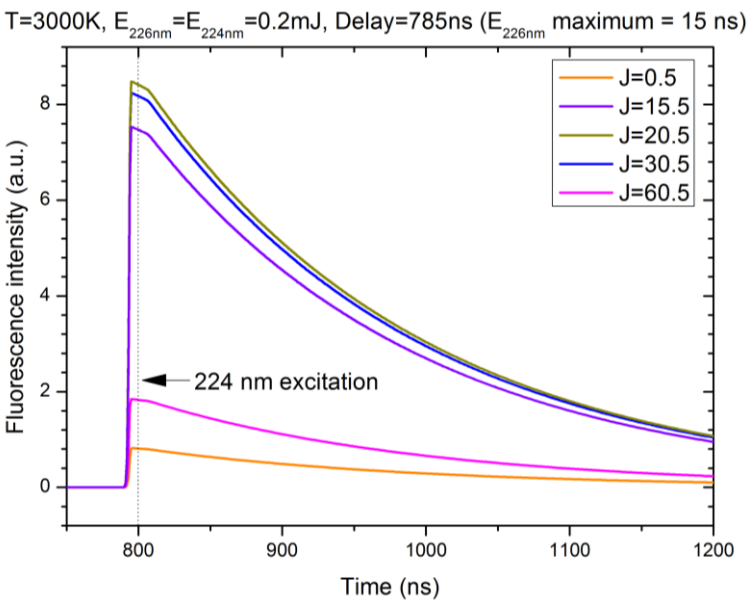


Figure III-17. Évolution temporelle de l'intensité de la seconde fluorescence (second signal VENOM) en fonction du nombre rotationnel pour E=0.2 mJ, T=3000 K et un délai de 785 ns.

De plus, lorsque l'on trace l'évolution temporelle de l'intensité de la seconde fluorescence (Figure III-17), il apparait clairement que l'intensité du signal VENOM chute si le nombre rotationnel est trop faible ou trop important. Le nombre rotationnel présentant la fluorescence secondaire maximum est celui qui a été sélectionné pour les expériences (J=20.5). Un autre argument à prendre en compte tient dans le fait que les longueurs d'onde correspondant à des transitions de nombre J élevés sont trop éloignées de la longueur d'onde centrale du colorant produisant le laser à 224 nm, impliquant une chute de l'énergie produite par la source laser. Cela nécessiterait alors un remplacement du colorant.

III.5.7. Conclusion

Un modèle simple à 4 niveaux doté d'hypothèses raisonnables nous a permis de montrer que la surpopulation de NO(X,v=1) due à une première excitation de NO(X,v=0) est de moins en moins efficace avec l'augmentation de la température. De plus, à cause de la population thermique initiale de NO(X,v=1) qui augmente fortement avec la température, cette population supplémentaire devient négligeable, faisant chuter drastiquement l'efficacité globale de la technique. Dans les conditions les plus favorables (délai entre les impulsions important, nombre J optimal avec la température), la population supplémentaire maximale est estimée à environ 4% lorsque le plasma est à l'équilibre thermique à 3000 K.

Est-il possible de séparer ce faible signal supplémentaire de la fluorescence thermique ? Sur une image VENOM réussie, une grille d'extra-fluorescence devrait apparaître en surbrillance au-dessus de la fluorescence thermique de fond. L'écart-type du bruit de ce signal de fond peut être déterminé localement aux pixels voisins du nœud étudié de la grille. Il est à noter que plus le signal global est important (donc plus la température est importante), plus le bruit sera important. Si la contribution due à l'extra-fluorescence est supérieure à trois fois l'écart-type du bruit, il est alors possible d'isoler le signal correspondant et l'utiliser pour les mesures de vitesses locales. Pour la condition du plasma la plus étudiée, en considérant la valeur moyenne du bruit enregistré sur les images, ce signal d'extra-fluorescence aurait dû excéder 17% du signal thermique pour être détectable. Il est donc impossible de détecter le signal dans nos conditions d'études.

Chapitre IV. Diffusion Raman spontanée dans un plasma

IV.1. Diffusion Raman spontanée

IV.1.1. Principe de la diffusion Raman : diffusion inélastique

L'une des interactions possibles entre la lumière et la matière est le phénomène de diffusion : le rayonnement incident est alors dévié lors de collisions avec la matière dans des directions diverses. Dans le cas où la taille caractéristique D des particules est importante devant la longueur d'onde incidente λ, le régime est dit spéculaire, et est alors régi par l'optique géométrique. Lorsque D est du même ordre de grandeur que λ (typiquement $0.1\,\lambda < D < 10\,\lambda$), le régime est dit résonnant et est appelé diffusion de Mie. Dans le cas d'une particule sphérique, la théorie de Mie est privilégiée, dans le cas contraire la théorie de Lorenz-Mie généralisée [58] est une solution. Enfin, dans le cas où D est négligeable devant la longueur d'onde, il existe plusieurs distinctions :

- Dans le cas d'une interaction d'un photon avec un électron faiblement lié, on entre dans le domaine de la diffusion Compton. C'est typiquement une diffusion issue d'une collision inélastique, c'est-à-dire que les partenaires de collision ont échangé de l'énergie au cours du processus. L'atome s'ionise au cours de l'échange. Lorsque des photons de faible énergie parviennent sur des électrons libres, la diffusion est élastique : c'est la diffusion Thomson.
- Dans le cas d'une collision élastique – c'est-à-dire que les énergies des partenaires de collision sont inchangées avant et après l'interaction – entre un photon et un atome ou une molécule, on entre dans le domaine de la diffusion Rayleigh (qui explique notamment la couleur du ciel, bleu en temps normal, tendant vers le rouge à l'aube et au crépuscule).
- Enfin, si la collision photon-lourd (lourd désignant indifféremment atome ou molécule) est inélastique, on entre dans le domaine de la diffusion Raman. Si le lourd a gagné de l'énergie au cours du processus (et donc le photon diffusé est moins énergétique), la diffusion est dite Stokes. Dans le cas contraire où le lourd a perdu de l'énergie en faveur du photon diffusé, on parle de Raman Anti-Stokes.

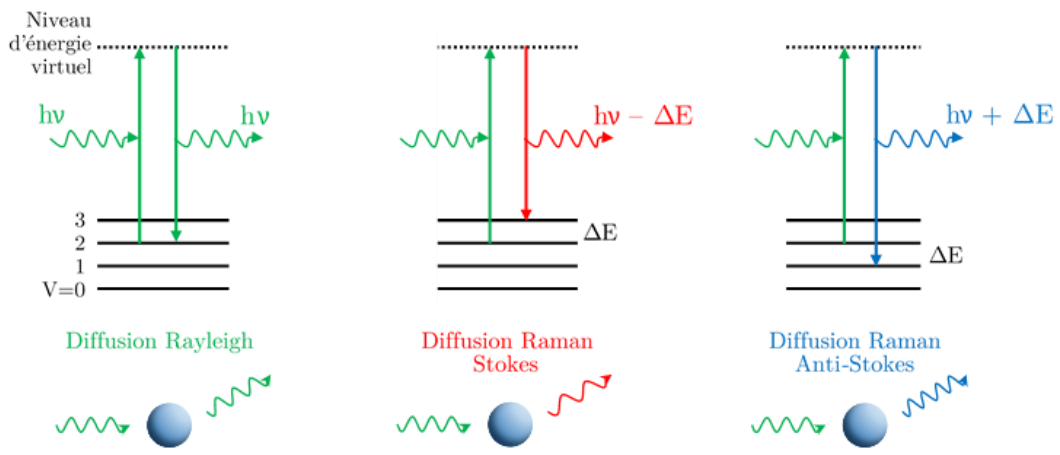


Figure IV-1. Diagramme en niveaux d'énergie illustrant la diffusion des photons par un atome ou une molécule.

Les états d'énergie d'un lourd étant quantifiés et propres à chaque espèce chimique, les décalages possibles en énergie du niveau initial et du niveau atteint après collision sont connus. Ainsi, les décalages possibles en énergie du photon diffusé sont prévisibles et caractéristiques de l'espèce diffusante.

Lors de l'analyse spectrale d'un rayonnement diffusé de la sorte, on observe donc pour chaque décalage Raman (lié à une transition E_l-E_u) une raie correspondant à la somme des contributions de toutes les collisions ayant fait intervenir cette transition. Il est alors possible de remonter à la population des niveaux initiaux du milieu traversé par le rayonnement, et donc en déduire plusieurs données liées à l'espèce sondée. En sommant toutes les contributions des populations des niveaux bas, on obtient la population totale du niveau bas dans la zone de mesure, que l'on peut relier à une population totale. On en déduit alors une densité de population, appelée plus couramment concentration dans le milieu. En analysant la forme du spectre mesuré, il est possible d'obtenir une mesure de température liée au stockage d'énergie en jeu. En général, la diffusion Raman faisant intervenir les stockages vibrationnels et rotationnels, on peut remonter à une température vibrationnelle et rotationnelle, dans les cas où ces températures sont définies.

IV.1.2. Application aux diagnostics optiques (combustion) pour des mesures locales de températures et de densités d'espèces

L'analyse de la diffusion Raman spontanée possède plusieurs atouts. En étant basée sur de la diffusion, la procédure est souvent considérée comme non-invasive, c'est-à-dire qu'elle ne modifie pas le milieu mesuré. (Au sens strict, le caractère inélastique de la collision induit nécessairement une modification de l'état des molécules, mais cette modification est insuffisante pour influer sur le milieu.) Ainsi la mesure effectuée est

représentative. La technique est utilisable quelle que soit la nature de la source lumineuse d'excitation (même si l'efficacité de la technique chute avec la longueur d'onde), ainsi le choix de ladite source est plus libre que pour d'autres techniques de diagnostic laser. La position du spectre de diffusion Raman découlant des niveaux d'énergie d'une espèce sondée, cette position est caractéristique d'une espèce ; l'intensité du signal étant proportionnelle à la densité de l'espèce sondée dans la zone de mesure, il est alors possible de sonder plusieurs espèces simultanément. Le phénomène de diffusion étant plus rapide (temps caractéristique 100fs-1ps) que la fluorescence (100ns-1ms) et observé uniquement dans la zone de mesure, la technique permet donc des mesures locales et instantanées (en *single-shot*) ; cette rapidité donne également à la technique l'avantage de ne pas être soumises à des désexcitations collisionnelles (phénomène de *quenching*) qui parasiteraient la mesure.

L'analyse de la diffusion Raman peut aussi rencontrer des obstacles. Le plus connu, c'est la faiblesse du signal observé par rapport à d'autres techniques de diagnostic lasers (environ 2 à 3 ordres de grandeur avec la diffusion Rayleigh et 15 à 20 avec la diffusion de Mie [59]). De plus, la mesure quantitative de densité nécessite un étalon afin d'éliminer les paramètres propres à l'expérience (fonction d'appareil).

Grâce à l'utilisation de sources laser pulsées à hautes puissance et dont la régularité tir-à-tir est quantifiée, il est alors possible de contourner le problème de la faible quantité de signal en accumulant les tirs et en additionnant les spectres Raman qui en résultent. La spectroscopie Raman a été souvent développée et utilisée au CORIA, que ce soit en observant la diffusion spontanée (A. Lo [60], H. Ajrouche [61], F. Guichard [62], G. Cléon [35], D.Studer [27]) ou en développant des diagnostics dérivés (F. Berthillier [63] : DRASC, Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente, ou *CARS* en anglais). Elle a été plus souvent éprouvée dans des milieux en combustion à pression atmosphérique, avec notamment le développement d'une source haute-puissance et d'une chaîne de mesure pour effectuer un diagnostic 1D instantané, multi-espèce et mono-coup dans une flamme turbulente (H. Ajrouche, F. Guichard), mais elle a aussi été un diagnostic utilisé dans les plasmas (A. Lo, D. Studer) avec de nouveaux obstacles à franchir.

IV.1.3. Dispositif expérimental

Dans les plasmas d'entrée atmosphériques produits au CORIA dans l'installation SOUPLIN, la pression typique de 6000 Pa engendre un premier obstacle lié à la faible densité des particules sondées (densité globale du gaz 150 à 300 fois plus faible qu'à pression atmosphérique). Il est donc nécessaire d'accumuler le signal sur un nombre important de tirs. Pendant la mesure, pour pouvoir déposer une énergie importante sans induire de phénomènes non linéaires voire de claquages, le paramètre important à contrôler est *la densité volumique et temporelle d'énergie* au point focal ; dans le cas

contraire la mesure ne serait alors plus représentative et rendrait impossible le diagnostic Raman. Une solution est alors apportée pour chaque problème : on joue sur la source laser pour obtenir une densité temporelle d'énergie faible et une répartition spatiale d'énergie optimale, et on sélectionne une lentille qui va focaliser ledit laser de manière moins importante afin de maintenir la densité locale volumique d'énergie à un faible niveau.

C'est ainsi que nous utiliserons le laser Nd:YAG Continuum White Cell Long Pulse doublé à 532 nm présenté dans le Chapitre I. La cellule de White permet de s'assurer que l'impulsion du laser est étalée dans le temps, tandis qu'un inducteur magnétique permet de lisser l'intensité générale pour éviter une densité locale d'énergie trop importante. Le laser délivre donc nominalement 750 mJ à 532 nm, avec une section initiale de 8 mm et une longueur d'impulsion de 106 ns. Le laser est polarisé verticalement à 95% à sa sortie. Pour sa focalisation, nous avons sélectionné une focale de 1m à 532 nm.

Un critère important lors du choix des optiques est de perdre le moins de puissance lorsque le laser est amené et focalisé dans le milieu ciblé : notre choix s'est donc porté sur quatre miroirs 532nm (>95% de réflexion) et une lentille (95% de transmission) ainsi que deux hublots Spectrosil2000 à haute transmission installés à angle de Brewster. Cet angle a la particularité de ne pas engendrer de réflexion lorsque la lumière incidente possède une polarisation Transverse Magnétique ; en tenant compte de la polarisation du laser (95% verticale à 532 nm en sortie de source) cela permet une transmission du faisceau de 98.8%. Le montage global a donc une transmission de 76.5% (=0.95^4*0.95*0.988).

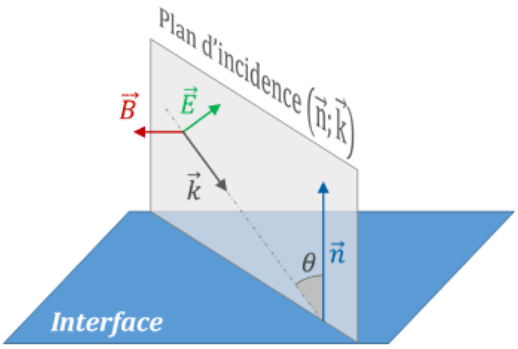


Figure IV-2. Rappel de l'orientation des champs électromagnétiques pour une onde TM.

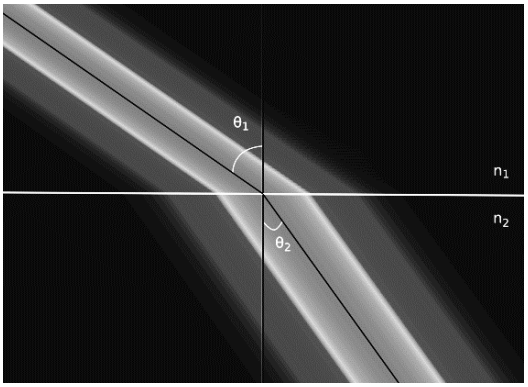


Figure IV-3. Transmission totale de l'onde TM lorsque l'incidence est à angle de Brewster. [source : wiki/Angle_de_Brewster]

Il est également nécessaire d'avoir un spectromètre dont la résolution soit suffisante pour distinguer la forme du spectre Raman observé tout en conservant l'ensemble sur une même image.

Pour cela, nous utilisons un spectromètre Horiba Jobin-Yvon iHR-550 avec un réseau peu diffractant de 600 t/mm. Un autre avantage d'un réseau peu diffractant est la quantité de lumière plus importante qui parvient sur une même ligne de pixels, favorisant la détection dans des conditions où la quantité de signal est faible.

Afin de pouvoir améliorer la détectabilité du signal, une caméra haute intensification Princeton Instruments PI-MAX 4 a été choisie, dotée d'un intensifieur HRf spécialisé dans la gamme de longueur d'onde [400 nm–900 nm] (cf Figure IV-4) et d'un photomultiplicateur électronique (Photocathode + Haute tension), formant deux étages d'amplification successifs.

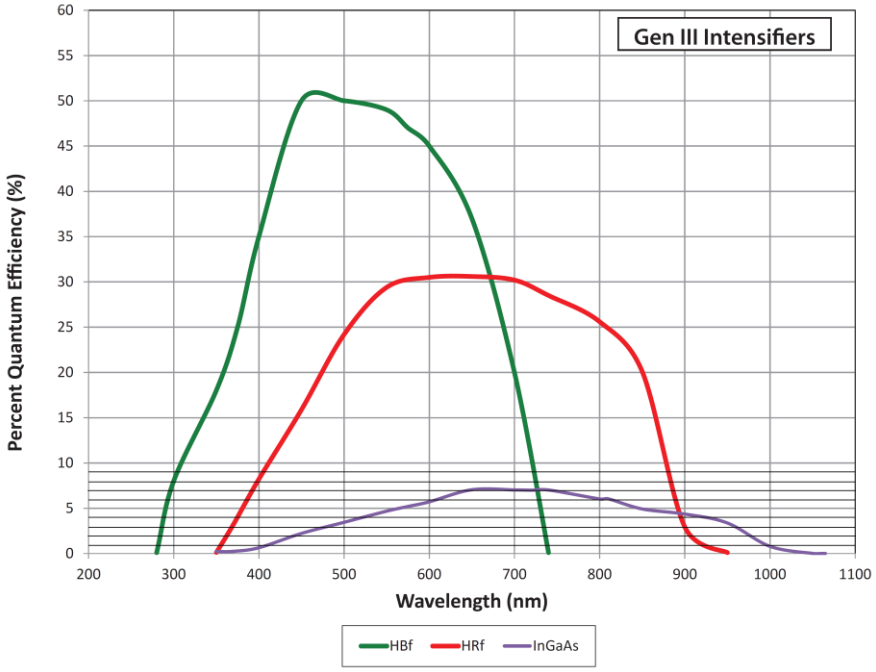


Figure IV-4. Intensificateurs de génération III (Credits : Princeton Instruments).

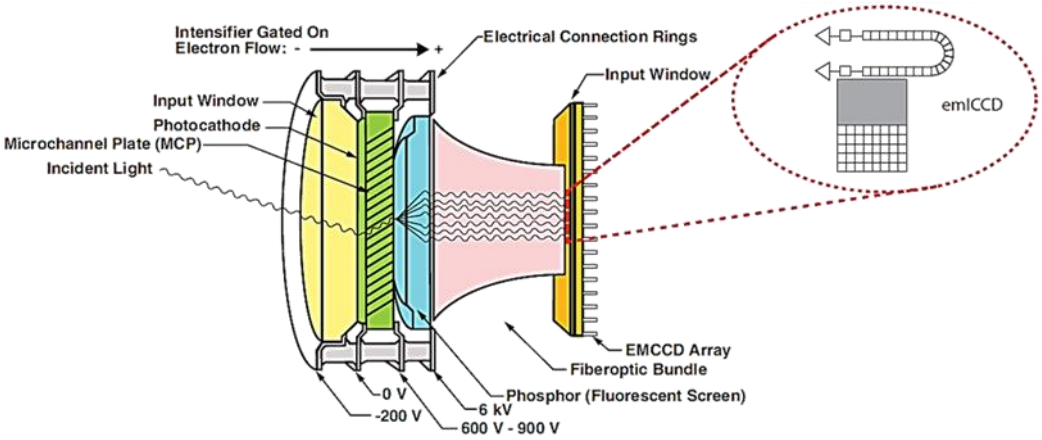


Figure IV-5. Etages d'intensification de la PI-MAX 4 emICCD (Credits : Princeton Instruments).

Enfin, la caméra et le laser sont synchronisés afin d'ouvrir l'acquisition aux moments opportuns uniquement.

Le choix du montage de collection découle de plusieurs facteurs : la nécessité de perdre le moins de signal Raman collecté, la faible ouverture des accès optiques, et un grandissement sélectionné pour avoir une taille de champ de mesure adaptée. Afin d'effectuer des mesures sur axe et hors axe, mais également simplifier les réglages optiques, un montage afocal via deux lentilles a été mis en place, et la troisième lentille a pour rôle d'amener le signal résultant vers la fente d'entrée du spectromètre. Afin d'éviter toutes aberrations, notamment chromatiques (présentées dans la Figure IV-8), et permettre de réutiliser le montage de collection pour les mesures de spectroscopie d'émission et de fluorescence (à des longueurs d'onde différentes du Raman), il a été décidé que des lentilles achromatiques étaient nécessaires. Des lentilles Edmund Optics [400 nm–1000 nm] ont été sélectionnées par la largeur de la bande passante de leur revêtement antireflet (Figure IV-9) et la variation contenue de la focale avec la longueur d'onde sur de tels domaines (Figures Figure IV-10 et Figure IV-11). Compte tenu de la très faible ouverture du spectromètre et la taille réduite des accès optiques (80mm), l'utilisation de lentilles de diamètre 50 mm est préférable à l'utilisation de lentilles de 100 mm. Comme illustré dans les Figures Figure IV-6 et Figure IV-7, cela permet une mobilité du montage de collection au-devant de l'accès optique sans changer les paramètres géométriques de l'acquisition. En effet l'utilisation de lentilles plus grandes que l'accès optique provoque une obstruction du signal collecté, générant un signal non symétrique par rapport à l'accès optique ; de plus, l'ouverture angulaire plus importante générée par un plus grand diamètre de lentille provoque une perte supplémentaire de signal lors l'arrivée de celui-ci sur le premier miroir interne du spectromètre dont les dimensions ne sont pas modifiables.

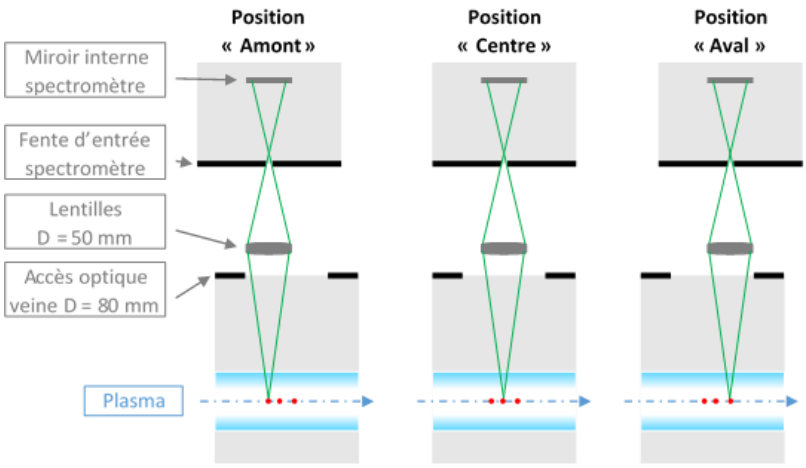


Figure IV-6. Illustration de l'intérêt des lentilles de diamètre 50mm.

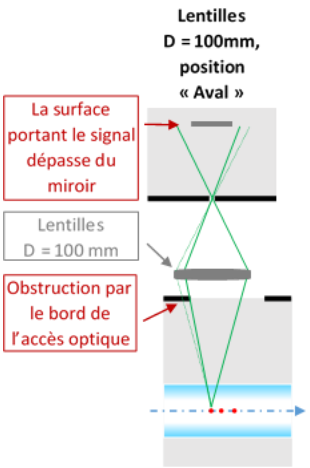


Figure IV-7. Problèmes issus du choix de lentilles trop larges.

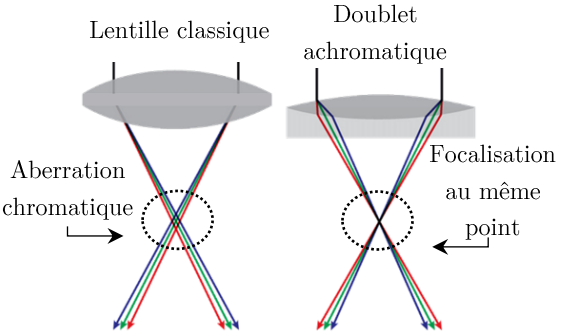


Figure IV-8. Illustration de l'apport de doublets achromatiques sur les aberrations chromatiques.

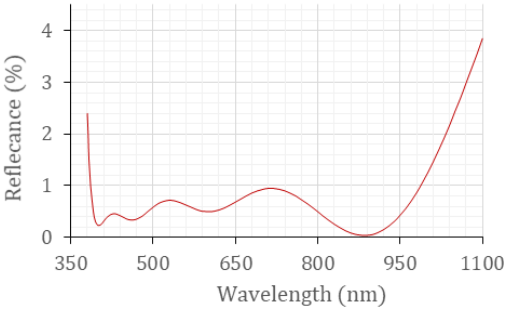


Figure IV-9. Réflectance du revêtement antireflet (400–1000 nm).

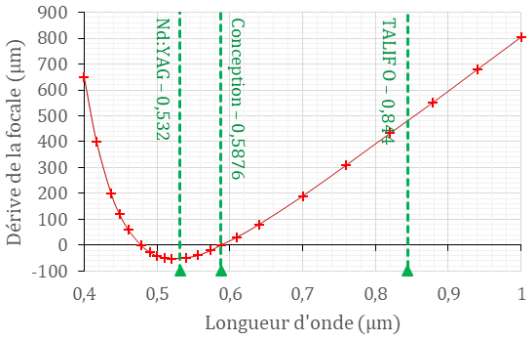


*Figure IV-10. Variation de la focale avec la longueur d'onde sur la lentille Ø50 * f150.*

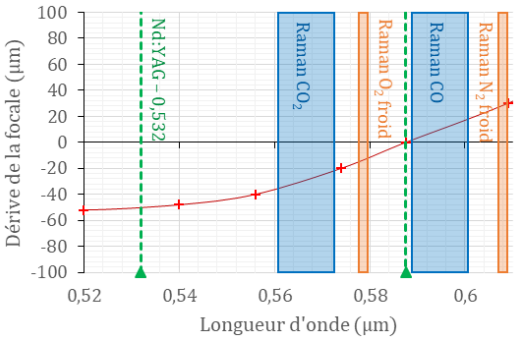


Figure IV-11. Zoom sur la région propre aux diffusions Rayleigh et Raman pertinentes.

Le montage de collection est illustré en Figure IV-12, le grandissement du montage optique est alors de 0.51. En considérant le grandissement du spectromètre de 1.1, et avec une taille de capteur de 13*13mm, la zone de mesure est donc de 22 mm de côté.

Le montage de collection ayant été placé face à un des accès optiques latéraux, il a donc été choisi d'amener le laser d'excitation par le haut. La zone de mesure est donc assimilable à un cylindre vertical et permettra selon la technique employée et son efficacité, de procéder soit à des mesures ponctuelles soit à une mesure 1D. Concernant le choix des positions de mesure, la dimension et la position fixe des accès optiques nous ont poussés à collecter le signal en 4 points du plasma ; trois positions sur l'axe de symétrie du plasma, et une position décalée de l'axe :

- Sur l'axe, à 67mm de la sortie de la torche : position « amont »
- Sur l'axe, à 75mm de la sortie de la torche : position « centre »
- Sur l'axe, à 95mm de la sortie de la torche : position « aval »
- Décalée de 20 mm de l'axe, à 75mm de la sortie de la torche : position « hors axe »

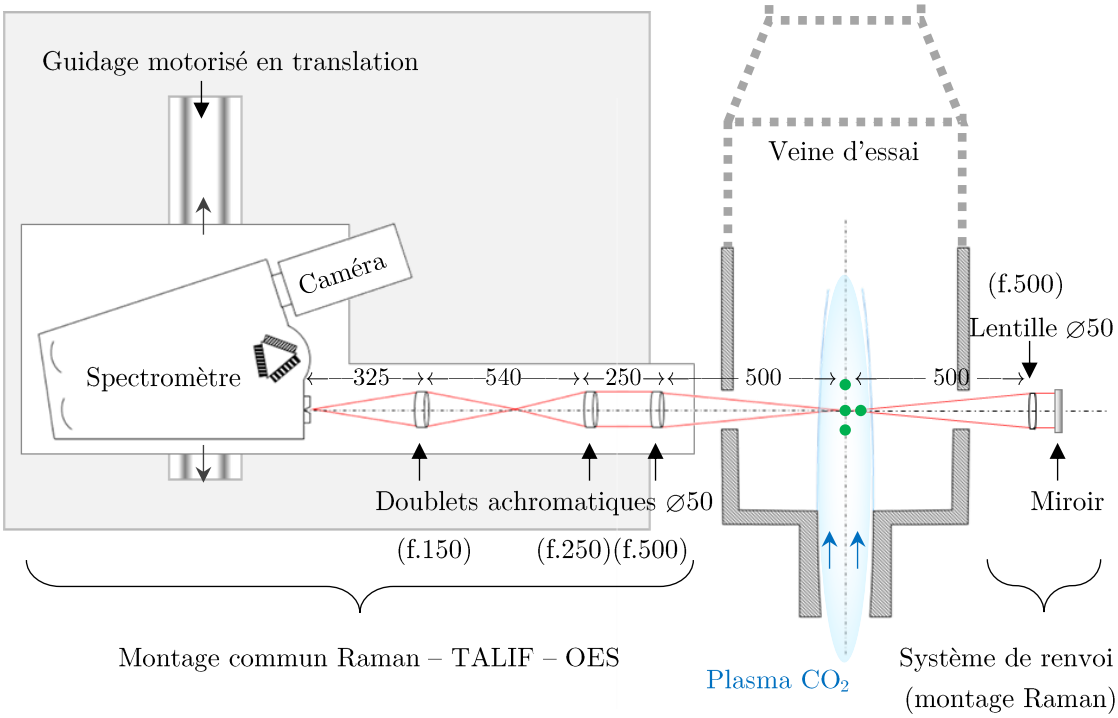


Figure IV-12. Montage de collection, vu de dessus. Les points verts illustrent les 4 positions du laser étudiées, distants de 2 cm les uns des autres (excepté le point amont, distant du point central de 1,5 cm).

IV.2. Mesures de températures de vibration et de rotation du fondamental de CO

IV.2.1. Influence des populations des niveaux sondés sur la forme du spectre

Pour comprendre la forme d'un spectre Raman, il faut revenir à l'échange d'énergie qui a lieu suite à la collision inélastique entre la particule diffusante et le photon incident : la particule diffusante se retrouve sur un niveau vibrationnel et rotationnel différent. Il est donc possible d'exprimer grâce à la mécanique quantique cette variation d'énergie. Pour cela, la nomenclature suivante est adoptée : la particule, ici une molécule diatomique (CO dans le plasma de CO_2 pur, N_2 ou O_2 dans l'air ambiant), se trouve sur l'état (v,J) avant collision et (v',J') après. v et v' représentant chacun les nombres quantiques vibrationnels de l'état considéré, et J et J' leurs nombres quantiques rotationnels. Ainsi la différence d'énergie peut être exprimée :

$$\Delta E_{(v,J)\rightarrow(v',J')} = \left[E_{vib}(v',J') + E_{rot}(v',J')\right] - \left[E_{vib}(v,J) + E_{rot}(v,J)\right]$$

Avec pour approximations à l'ordre 2 :

$$E_{vib}(v,J) = hc\left[\omega_e\left(v+\frac{1}{2}\right) - \omega_e x_e\left(v+\frac{1}{2}\right)^2\right]$$

$$E_{rot}(v,J) = hc\left[B_v^{(1)}J(J+1) - B_v^{(2)}\big(J(J+1)\big)^2\right]$$

$$B_v^{(1)} = B_e^{(1)} + \alpha_e^{(1)}\left(v+\frac{1}{2}\right) + \gamma_e^{(1)}\left(v+\frac{1}{2}\right)^2$$

$$B_v^{(2)} = B_e^{(2)} + \alpha_e^{(2)}\left(v+\frac{1}{2}\right) + \gamma_e^{(2)}\left(v+\frac{1}{2}\right)^2$$

Les transitions usuellement observées en Raman satisfont les règles de sélection $\Delta v = 0, \pm 1$ et $\Delta J = 0, \pm 2$. Nous étudions les transitions Stokes $\Delta v = +1$. La nomenclature attribue usuellement aux bandes rotationnelles $\Delta J = -2, 0$ et $+2$ les noms respectifs O, Q et S. Si nous étudions la branche principale Q et décomposons la différence :

$$\Delta E_{(\Delta v=+1,Q)} = \Delta E_{\substack{vib \\ (\Delta v=+1,Q)}} + \Delta E_{\substack{rot \\ (\Delta v=+1,Q)}}$$

Sachant que :

$$\Delta E_{\substack{vib \\ (\Delta v=+1,Q)}} = hc[\omega_e - 2\omega_e x_e(v+1)]$$

$$\Delta E_{\substack{rot \\ (\Delta v=+1,Q)}} = hc\left[B_{v+1}^{(1)} - B_v^{(1)}\right] J(J+1) \qquad \text{(À l'ordre 1)}$$

$$\left[B_{v+1}^{(1)} - B_v^{(1)}\right] = -\alpha_e^{(1)} + 2\gamma_e^{(1)}(v+1)$$

Nous obtenons :

$$\Delta E_{(\Delta v=+1,Q)} = hc\left[\omega_e - 2\omega_e x_e(v+1) - \Big(\alpha_e - 2\gamma_e\ (v+1)\Big)J(J+1)\right]$$

Ce sont ces valeurs de décalage en énergie qui déterminent l'écart entre la longueur d'onde d'excitation et celles des raies Raman observées. En posant :

$$\Delta E_{(\Delta v=+1,Q)} = hc\ \Delta\sigma_{(\Delta v=+1,Q)}$$

Le décalage en nombre d'onde $\Delta\sigma$ (en cm^{-1}) permet alors directement de travailler avec les développements limités précédents sans se soucier des constantes *hc*.

$$\begin{aligned}\Delta\sigma_{(\Delta v=+1,Q)} = \ & \omega_e - 2\omega_e x_e(v+1) \\ & - \big(\alpha_e - 2\gamma_e\ (v+1)\big)\ J(J+1)\end{aligned}$$

La disposition des raies Raman observées étant déterminée, il reste à établir les hypothèses sur leurs hauteurs respectives.

Dans le volume de mesure V, l'intensité I de diffusion Raman spontanée d'une transition $(v, J) \rightarrow (v', J')$ émise dans la direction θ, dans un cône d'angle solide $d\Omega$ peut être écrite sous la forme :

$$I^{d\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ reçue}} d\Omega = \Lambda\, V\, I_{laser}\, N_{(v,J)} \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)^{\theta}_{(v,J)\rightarrow(v',J')} d\Omega \qquad \text{(IV-1)}$$

Où Λ représente l'efficacité de l'intégralité de la chaîne de collection, I_{laser} désigne l'éclairement laser ($W.m^{-2}$) parvenant dans le volume de mesure V (m^3), $N_{(v,J)}$ représente la densité de particules (m^{-3}) dans l'état (v, J), et $\left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_{(v,J)\rightarrow(v',J')}$ ($m^2.sr^{-1}$) désigne la section efficace différentielle Raman dans la direction Ω pour la transition $(v, J) \rightarrow (v', J')$.

Cette section efficace différentielle peut être reliée à une variation du moment dipolaire de la particule. Lorsque le champ électrique incident (issu du rayonnement d'excitation) parvient au voisinage de la particule, celui-ci induit un changement de son moment dipolaire, la faisant transiter de son état (v, J) vers un état virtuel instable, puis vers un état stable (v', J') via émission d'un rayonnement. On peut alors exprimer le moment de cette transition Raman par :

$$\vec{P} = \langle v, J|\vec{p}|v', J'\rangle$$

Sachant que $\vec{p} = \varepsilon_0 \bar{\alpha} \vec{E}$, cela donne :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \langle v, J|\bar{\alpha}|v', J'\rangle \vec{E}$$

D'autre part, nous pouvons exprimer l'intensité émise par une particule suite à cette transition par :

$$I^{\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ émise \\ particule}}(\theta) = \frac{\pi^2 c}{2\varepsilon_0}\, \nu^4\, \vec{P}^2 \sin^2\theta$$

$$I^{\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ émise \\ particule}}(\theta) = \frac{\pi^2 c \varepsilon_0}{2}\, \nu^4_{Raman}\, \langle v, J|\bar{\alpha}|v', J'\rangle^2\, \vec{E}^2 \sin^2\theta$$

$$I_{laser} = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c \vec{E}^2 \;\Rightarrow\; I^{\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ émise \\ particule}}(\theta) = I_{laser}\, \pi^2\, \nu^4_{Raman}\, \langle v, J|\bar{\alpha}|v', J'\rangle^2\, \sin^2\theta$$

Dans notre configuration expérimentale, l'angle de collection θ est proche de $\frac{\pi}{2}$ $\left(ouverture \leq \tan^{-1}\left(\frac{D_{lentille}}{2\, L_{focale}}\right) \approx \left(\frac{D_{lentille}}{2\, L_{focale}}\right) = 0.05\, rad\right)$

D'où :

$$I^{\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ émise \\ volume\ mesure}} = N_{(v,J)} V I_{laser}\, \pi^2\, \nu^4_{Raman}\, \langle v, J|\bar{\alpha}|v', J'\rangle^2$$

Si l'on pose : $I_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ reçue \\ volume\ mesure}} = \Lambda\, g\left(\nu - \nu_{(v,J)\rightarrow(v',J')}\right) I^{\Omega}_{\substack{(v,J)\rightarrow(v',J') \\ émise \\ volume\ mesure}}$

Avec g(ν) la fonction d'appareil, nous obtenons ceci :

$$\left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)^{\theta}_{(v,J)\to(v',J')} = \pi^2\, \nu_{Raman}^4\, \langle v,J|\bar{\alpha}|v',J'\rangle^2 \qquad \text{(IV-2)}$$

Nous observons ainsi immédiatement la dépendance très forte avec la fréquence d'excitation ; sachant à nouveau que $\nu_{Raman} = \nu_{Laser} - \frac{1}{h}\Delta E_{(v,J)\to(v',J')}$, il saute aux yeux que l'influence du choix de la source laser joue énormément sur l'efficacité générale de la diffusion Raman.

Le spectre résultant est également proportionnel à la population des niveaux concernés : on peut s'attendre donc à observer la superposition de plusieurs bandes vibrationnelles contenant chacun des raies rovibrationnelles dont la taille respective est liée à la répartition de leurs populations, dictées par la température de rotation (lorsque celle-ci a un sens). De même, la hauteur relative des bandes les unes comparativement aux autres dépend d'une part de la répartition des populations vibrationnelles (liée quand c'est possible à la température de vibration), et d'autre part, sachant que les bandes vibrationnelles se chevauchent, de la forme de chaque bande (température de rotation).

En pratique, il existe plusieurs sources physiques d'élargissement des raies théoriques (Doppler, Collisionnel, Naturel) qui viennent déformer le spectre capté. Il existe d'autre part un élargissement expérimental à ne pas négliger : la fonction d'appareil, qui est la fonction de transfert issue de divers facteurs géométriques ou physiques qui déforment le signal lors du passage dans le dispositif de collection.

IV.2.2. Intervention de la fonction d'appareil : mesure sur les diffusions Rayleigh et Raman à conditions ambiantes

Afin de déterminer la fonction d'appareil régissant la déformation du signal théorique, il est possible d'acquérir un signal dans les conditions connues et aisément reproductibles dans une simulation. Deux exemples tiennent dans la diffusion Rayleigh ainsi que la diffusion Raman des molécules majoritaires dans l'air ambiant, à savoir N_2 et O_2. Dans ces conditions de température, les sections efficaces sont connues et le nombre de niveaux rotationnels suffisants pour simuler fidèlement le spectre est faible, rendant le calcul de ladite simulation rapide ; tandis que la densité importante des molécules à pression atmosphérique et l'étalement réduit du signal en longueur d'onde permet une acquisition rapide d'un signal Raman.

En proposant des modèles pour la fonction d'appareil, il est alors possible de convoluer cette dernière avec le signal théorique et comparer le résultat avec le signal réel pour définir la fonction d'appareil pour les mesures Raman qui suivront. En se référant au travail d'H. Ajrouche [61] sur la proposition de modèles pour les caméras emCCD rétro-éclairées, il est possible de modéliser la fonction d'appareil par la

convolution d'une Lorentzienne et d'une fonction de type Trapèze ou Polygone. Ce modèle est plus adapté que d'autres modèles plus simples comme une gaussienne car il permet de faire correspondre la largeur importante de la fonction expérimentale (due en partie à l'ouverture de la fente de 160 µm) et les ailes larges d'une Lorentzienne. Cette comparaison est visible dans les Figures Figure IV-13 et Figure IV-14. Ces ailes seront d'une importance toute particulière lors de la simulation des spectres, pouvant mener à une interprétation des températures erronée si elles ne sont pas correctement modélisées. A été également testé un autre modèle sommant trois fonctions de Voigt (calculées avec l'approximation de Whiting) [53], mais dans notre cas la fonction Trapèze-Lorentzienne Asymétrique permet de modéliser de manière plus fidèle le signal expérimental. Tester cette fonction sur le Rayleigh dans l'air à une température ambiante de 295 K et une pression de 6200 Pa permet une comparaison rapide car les élargissements (naturel, collisionnel, Doppler) sont insuffisants pour intervenir visuellement sur le capteur lorsque le réseau possède 600 traits/mm. Ainsi le signal réellement observé est intégralement identifiable à la fonction d'appareil de l'ensemble de la chaîne d'acquisition. Le résidu est inférieur à 1% du pic de signal avec ce modèle.

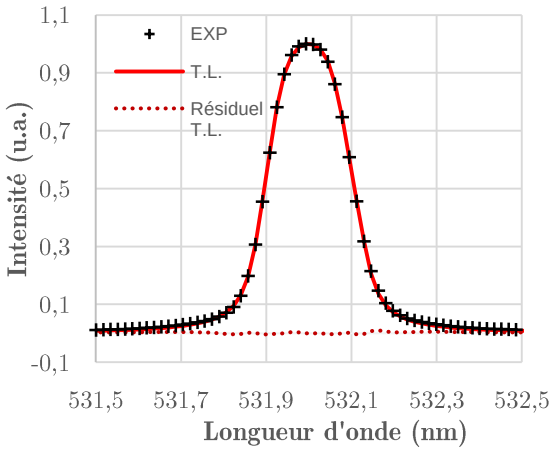


Figure IV-13. Modélisation par une Trapèze-Lorentzienne. Signal : Rayleigh dans l'air, T=295 K, p = 6200 Pa.

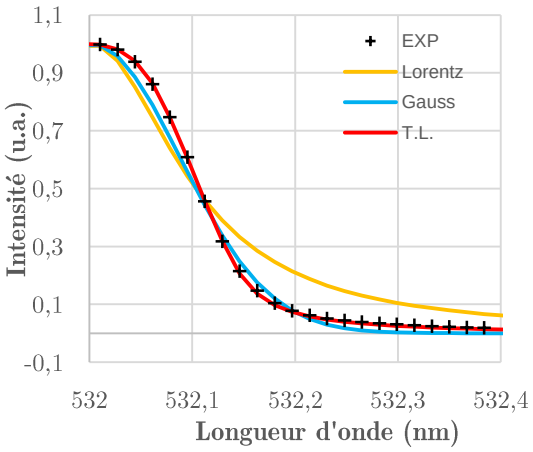


Figure IV-14. Comparaison de la Trapèze-Lorentzienne avec une Gaussienne et une Lorentzienne, sur une moitié du signal Rayleigh.

En pratique, la fonction d'appareil est acquise chaque jour de mesure sur le Raman à froid de N_2 de sorte à permettre une meilleure fidélité des spectres théoriques reconstitués avec les spectres acquis et prendre en compte les divers paramètres expérimentaux qui auront pu varier.

IV.2.3. Reconstruction du signal : (collaboration F. Guichard)

Pour la reconstruction du signal, nous nous sommes appuyés sur le travail d'A. Lo [60], H. Ajrouche [61] et de F. Guichard [62] qui ont respectivement créé et amélioré un code de simulation de spectres Raman. Suite à nos échanges, F. Guichard a développé une version du code permettant de simuler un spectre de CO avec deux températures de Boltzmann (rotation et vibration), qui a pour paramètre d'entrée la fonction d'appareil expérimentale, et dont le calcul des sections efficaces Raman et la valeur du paramètre de coupure pour le nombre rotationnel J ont été adaptés aux très hautes températures des plasmas. Les choix effectués ensuite pour ces paramètres seront détaillés dans la section VI.1.1.

Ce code 0D modélise le spectre Raman émis par un composé donné dans une direction donnée. Il détermine la position des raies d'intérêt (en imposant des nombres vibrationnel et rotationnel maximaux), calcule les sections efficaces intégrées en fonction des températures de consigne, intègre la fonction d'appareil extraite à partir d'un signal Raman à froid de N_2, détermine les populations respectives grâce à la distribution de population donnée par l'utilisateur (Boltzmann, Treanor…) et somme l'ensemble des contributions pour former le spectre final tel qu'observable en noir dans la Figure IV-15.

La thermométrie s'effectue alors en déterminant la distribution de population et la (ou les) température(s) qui permettent le meilleur recoupement du spectre théorique avec le signal mesuré, que ce soit via minimisation automatique ou manuelle.

Une fois le spectre théorique constitué, il est alors possible de déterminer avec plus de précision la densité globale de CO. Cette partie est détaillée dans la section suivante.

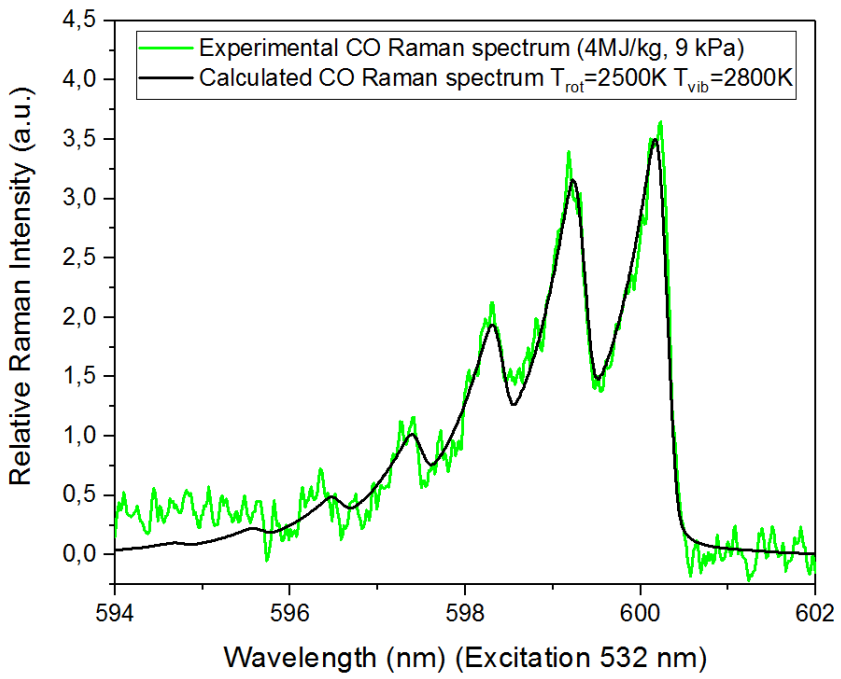


Figure IV-15. Exemple de spectre Raman Stokes de CO dans un plasma de CO_2 pur, et comparaison avec un spectre théorique.

IV.3. Mesures de densité du fondamental de CO

IV.3.1. Etalonnage : mesure du Raman de l'air à température ambiante et pression d'essai

En ce qui concerne la mesure des densités de CO à partir d'un spectre Raman, il est nécessaire de connaître l'efficacité Λ du dispositif de collection.

Pour cela, nous nous appuyons encore sur la mesure de diffusion Raman dans des conditions maîtrisées : les mesures à conditions ambiantes (souvent dites « à froid » par comparaison aux conditions plasma) mentionnées dans les sections précédentes. En procédant à cette acquisition dans les mêmes conditions expérimentales que pour l'acquisition du Raman de CO dans le plasma, nous nous débarrassons ainsi du facteur Λ.

En effet la somme sur l'ensemble du spectre Raman de toutes les contributions rovibrationnelles audit spectre, c'est-à-dire l'aire A_{CO} sous la courbe de signal Raman, est directement proportionnelle à la densité totale de l'espèce X sur son niveau fondamental électronique.

$$A_X = \sum_{pixels} A_X(pixel)$$

Chaque pixel i représente un intervalle de longueur d'onde $[\lambda_i; \lambda_{i+1}]$ et reçoit lui-même l'ensemble des contributions des transitions Raman inclues dans cet intervalle de longueur d'onde :

$$A_X = G\, n \sum_{i=0}^{1023} \int_{\Delta t_{impulsion}} \int_{\lambda_i}^{\lambda_{i+1}} \int_{\Omega} I_{reçue}^{d\Omega}(pixel, t)\, d\Omega\, d\lambda\, dt$$

Avec G le gain global de la caméra et n le nombre d'accumulations.

$$\begin{aligned} A_X = \; & G\, n \int_{\Delta t_{impulsion}} \int_{\lambda_0}^{\lambda_{1024}} \int_{\Omega} \sum_{(v,J)\to(v',J')} I_{\substack{(v,J)\to(v',J') \\ reçue}}^{X,\, d\Omega}(t)\; d\Omega\, d\lambda\; dt \\ = \; & G\, n \int_{\Delta t_{impulsion}} \int_{\lambda_0}^{\lambda_{1024}} \int_{\Omega} \sum_{(v,J)\to(v',J')} \Bigg[\Lambda\, V g\big(\lambda - \lambda_{\Delta v, \Delta J}\big) \\ & * I_{laser}(t)\, N_{(v,J)}^{X} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{X,\,\theta} \Bigg] d\Omega\, d\lambda\, dt \\ = \; & \Lambda\, V\, \Omega\, G\, n \int_{\Delta t_{impulsion}} I_{laser}(t) dt \\ & * \sum_{(v,J)\to(v',J')} \left[N_{(v,J)}^{X} \int_{\lambda_0}^{\lambda_{1024}} g(\lambda - \lambda_{\Delta v, \Delta J}) \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{X,\,\theta=\frac{\pi}{2}} d\lambda \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} A_X = \; & \Lambda\, V\, \Omega\, G\, n \int_{\Delta t_{impulsion}} I_{laser}(t) dt \\ & * \sum_{(v,J)\to(v',J')} \left[N_{(v,J)}^{X} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{X,\,\theta=\frac{\pi}{2}} \int_{\lambda_0}^{\lambda_{1024}} g(\lambda - \lambda_{\Delta v, \Delta J})\; d\lambda \right] \end{aligned}$$

Posons la fonction de distribution des populations rovibrationnelles f telle que :

$$N_{fond}^{X} = \sum_{(v,J)} f^{X}(v,J) N_{(v,J)}^{X}$$

Avec N_{fond}^{X} la densité du niveau fondamental. Posons ensuite la densité surfacique d'énergie du faisceau laser :

$$\varphi_{laser} = \int_{\Delta t_{impulsion}} I_{laser}(t) dt$$

Sachant que $\int_{\lambda_0}^{\lambda_{1024}} g(\lambda - \lambda_{\Delta v, \Delta J})\; d\lambda = 1$ par définition de la fonction d'appareil, nous avons alors :

$$A_X = \; \Lambda\, V\, \Omega\, G\, n\, \varphi_{laser}\, N_{fond}^{X} \sum_{(v,J)\to(v',J')} f^{X}(v,J) \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{X,\,\theta=\frac{\pi}{2}} \qquad \text{(IV-3)}$$

Ainsi en formant le rapport :

$$R_{N_2} = \frac{A_{N_2}^{expérimentale}}{G\, n\, \varphi_{laser}\, N_{fond}^{N_2} \sum_{(v,J)\to(v',J')} f^{N_2}(v,J) \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{N_2,\,\theta=\frac{\pi}{2}}} = \Lambda\, V\, \Omega$$

Nous isolons le facteur expérimental $\Lambda\, V\, \Omega$, qui est indépendant de l'espèce considérée, des températures ou de la pression :

- Remplaçer $A_{N_2}^{expérimentale}$ par $A_{N_2}^{simulée}$ permet d'éliminer le signal non-pertinent dû au bruit ;
- Le gain et le nombre d'accumulations est fixé lors de l'acquisition ;
- En relevant l'énergie laser lors de chaque acquisition de signal et connaissant la répartition spatiale d'énergie (telle qu'illustrée dans le premier chapitre), φ_{laser} est également déterminé ;
- La densité $N_{fond}^{N_2}$ du fondamental de N_2 peut être approchée par sa densité totale dans l'air ambiant soit $X_{N_2} \frac{P}{k_B T}$.
- Le dernier facteur, à savoir la somme des sections efficaces de transition pondérées par la distribution de population de leur niveau d'origine, est calculable grâce à la mesure de températures présentée à la section précédente.

IV.3.2. Densité de CO dans le plasma

De la même manière, suite à l'acquisition de la diffusion Raman de CO dans le plasma, nous pouvons reprendre l'expression de l'aire issue de l'équation (IV-3) pour extraire :

$$N_{fond}^{CO} = \frac{A_{CO}}{\Lambda\, V\, \Omega\, G\, n\, \varphi_{laser} \sum_{(v,J)\to(v',J')} f^{CO}(v,J) \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{CO,\,\theta=\frac{\pi}{2}}}$$

Soit :

$$N_{fond}^{CO} = \frac{A_{CO}}{R_{N_2}\quad G\, n\, \varphi_{laser} \sum_{(v,J)\to(v',J')} f^{CO}(v,J) \left(\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}\right)_{(v,J)\to(v',J')}^{CO,\,\theta=\frac{\pi}{2}}} \qquad \text{(IV-4)}$$

Il réside tout de même plusieurs difficultés sous cette expression a priori résolue. Que ce soit pour la thermométrie ou la mesure de densités, la détermination des sections efficaces différentielles aux températures plasma (1500-8000K) est incomplète car elles ont plutôt été mesurées expérimentalement pour des milieux en combustion.De plus, elles

dépendent fortement de la température, d'où l'importance d'une bonne estimation des températures auparavant ! Ainsi, la fonction de distribution fait partie des hypothèses importantes à émettre et vérifier. Dans le cas d'un gaz neutre à l'équilibre thermique, la distribution de Boltzmann convient, mais d'autres distributions selon les cas existent (Boltzmann-2T, Boltzmann-3T, Treanor…) et doivent être prises en compte pour trouver le meilleur modèle. Une distribution de Boltzmann à deux températures (2T) est généralement appliquée en plasma d'entrée atmosphérique. C'est un modèle où chaque mode de stockage est à l'équilibre au sens de Boltzmann, mais où les températures de chaque mode sont différentes : dans ce cas à deux températures, d'une part, la température électronique et la température vibrationnelle sont les mêmes, et d'autre part, la température cinétique et la température rotationnelle sont identiques. On peut alors définir deux températures qui suffisent à définir les populations de l'espèce considérée. Dans certains cas, un modèle Boltzmann à trois températures (3T) est utilisé en particulier celui qui peut nous intéresser est quasiment identique au modèle 2, mais la distribution des populations vibrationnelles n'est pas Boltzmannienne, au lieu de cela les premiers niveaux (typiquement v=0 et v=1) disposent de leur propre température T_{v1} tandis que le reste de la population est à l'équilibre à une seconde température T_{v2}. Cela permet généralement de modéliser une distribution de population dans laquelle les nombres vibrationnels élevés sont peuplés sans sacrifier la population des premiers niveaux. Enfin, le modèle de Treanor [64] modélise le glissement des densités de population vibrationnelle vers les nombres vibrationnels élevés grâce à un facteur supplémentaire dans l'expression de ladite densité : $n_v = n_0\, e^{-\frac{E_v}{k_B T}}\, e^{-v\gamma}$, avec γ un paramètre unique pour tous les niveaux vibrationnels.

Ainsi, en connaissant la densité du fondamental de CO, il est possible d'avoir une idée de la densité globale de CO dans le volume de mesure, donc du taux de dissociation de CO / CO_2. Une telle mesure sera ensuite consolidée avec d'autres diagnostics optiques tels que de l'émission spontanée sur les niveaux excités de O, ainsi que de la Fluorescence à deux photons sur O.

Chapitre V. Etude de la population d'oxygène atomique dans un plasma de CO_2 pur par TALIF

Ce chapitre présente le principe de la fluorescence induite par laser à deux photons, nommée TALIF pour *Two-photon Absorption Laser-Induced Fluorescence*, ainsi que son intérêt pour aider à qualifier le taux de dissociation CO/CO_2 dans le plasma lors de la recombinaison.

V.1. Présentation de la TALIF

V.1.1. Principe de la fluorescence à deux photons

a) Fluorescence induite par laser : présentation

La luminescence désigne le phénomène durant lequel un atome ou une molécule va émettre spontanément de la lumière après avoir été excité électroniquement par un photon. On distingue alors deux types de luminescence, en fonction de la multiplicité des états de spin des états intervenant dans la transition lumineuse émettrice : la fluorescence concerne la luminescence émise lors d'une transition entre deux états de même multiplicité, tandis que la phosphorescence concerne deux états de multiplicité différente. Nous allons nous concentrer, vous l'aurez anticipé, sur la fluorescence.

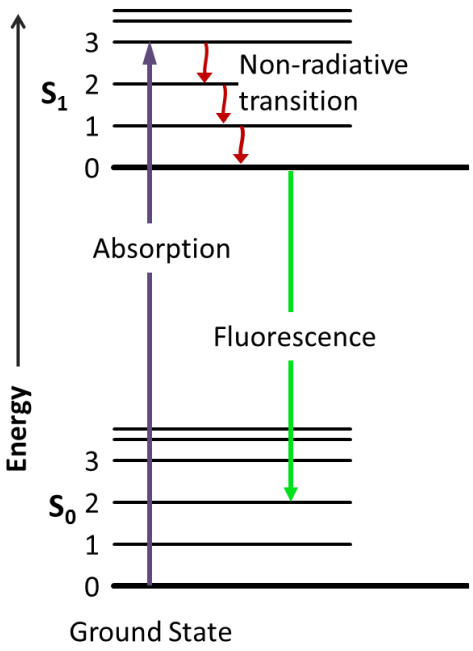


Figure V-1. Diagramme de Jabłoński illustrant les processus intervenant lors de et suite à l'absorption d'un photon par un atome.

La lumière émise par fluorescence peut être de même longueur d'onde que le photon absorbé (fluorescence *résonante*), ou d'une longueur d'onde différente, le plus généralement inférieure. Les processus de conversion interne ou de relaxation vibrationnelle sont des processus rapides de l'ordre de la picoseconde (de 10^{-14} à 10^{-10} s, se référer au Tableau V-12) qui vont amener la particule sur l'état excité électronique le plus bas, avant que la relaxation vers l'état fondamental de même multiplicité en émettant un photon n'intervienne après une durée de l'ordre de la nanoseconde (de 10^{-9} à 10^{-7} s). Pour la culture, la phosphorescence intervient lorsque la particule parvient à un état intermédiaire de multiplicité différente du fondamental par conversion intersystème ; les règles de sélection jugent dans ce cas la transition vers le fondamental impossible, ce qui se traduit en réalité par une probabilité de transition beaucoup plus faible qu'une transition autorisée. Ainsi la désexcitation par phosphorescence est beaucoup plus lente, avec des temps typiques supérieurs à la milliseconde (de 10^{-3} à 10^{0} s). Pour illustrer tout ceci, le diagramme de Jabłoński en Figure V-1 illustre un modèle énergétique typique avec un état fondamental singulet tandis que le Tableau V-12 liste les ordres de grandeurs temporelles des processus intervenant dans le modèle.

Transition type	**Processus**	**Constante de vitesse**	**Ordre de grandeur temporelle (s)**
S(0,v)→S(1,v') S(0,v)→S(n,v')	Absorption	–	10^{-15}
S(n,v)→S(1,v')	Conversion interne	k_{ic}	De 10^{-14} à 10^{-10}
S(1,v)→S(1,v'<v) T(1,v)→T(1,v'<v)	Relaxation vibrationnelle	k_{rv}	De 10^{-12} à 10^{-10}
S(1,v)↔T(1,v'>v)	Conversion inter-système (transition isoénergétique)	k_{cis}	De 10^{-10} à 10^{-8}
S(1,v)→S(0,v')	Fluorescence	k_r ou A	De 10^{-9} à 10^{-7}
S(1,v)→S(0,v')	Relaxation non radiative : Désexcitation collisionnelle	k_{nr} ou Q	De 10^{-7} à 10^{-5}
T(1,v)→S(0,v')	Phosphorescence	k_p	De 10^{-3} à 10^{0}
T(1,v)→S(0,v')	Relaxation non radiative : Désexcitation collisionnelle	k'_{nr} ou Q'	De 10^{-3} à 10^{0}

Tableau V-12. Présentation des processus d'importance dans le diagramme de Jabłoński.

Comme illustré dans le diagramme, la molécule excitée suit généralement des relaxations intermédiaires avant d'émettre le rayonnement de fluorescence, qui est donc moins énergétique que le rayonnement excitateur. Ainsi, le spectre de fluorescence est décalé par rapport au spectre d'absorption (décalage Stokes). L'autre conséquence de ces désexcitations intermédiaires est que même si plusieurs bandes peuvent générer de la

fluorescence, généralement il n'y a qu'une seule bande de fluorescence. La Figure V-2 présente des spectres d'absorption (*extinction molaire*) typiques de solutions contenant de la quinine, avec deux pics d'absorption à 310 et 350 nm, et un pic d'émission à 450 nm. Ici le décalage Stokes est d'une centaine de nanomètres, mais il peut être plus important dans d'autres molécules. Un exemple intéressant est la chlorophylle – ou plutôt, les chlorophylles a et b, mais on va les englober sous un même nom par souci de brièveté – qui possède une bande d'absorption autour de 400–450 nm (et une autre entre 600 et 700 nm, le trou d'absorption entre 500 et 600 nm expliquant ainsi la couleur verte des végétaux) et peut émettre dans le rouge, autour de 680 nm.

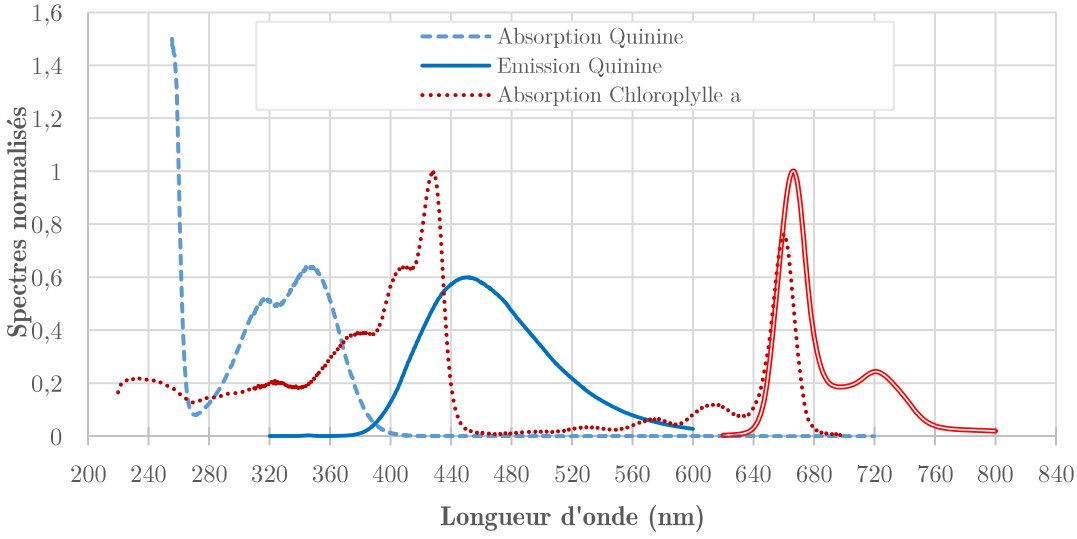


Figure V-2. Spectres d'excitation et de fluorescence : sulfate de quinine et chlorophylle a. (Sources : omlc.org/spectra/PhotochemCAD)

L'extinction molaire usuellement notée $\varepsilon(\lambda)$ et exprimée en $m^{-1}.(mol.m^{-3})^{-1}$ est une grandeur intensive qui nous permet de déterminer l'efficacité d'absorption du rayonnement excitateur pour une espèce donnée. Pour cette espèce X, il est possible de relier cette grandeur au coefficient d'absorption spectrique k_λ décrit dans l'équation 1D de transfert radiatif (II-2) du second chapitre ; pour éviter toute confusion avec le coefficient d'émission présenté dans cette équation, nous noterons cette extinction molaire $\mathfrak{E}$.

Par définition, l'extinction molaire se définit ainsi :

$$k_\lambda^X(x) = \mathfrak{E}^X(\lambda, x)\,[X](x) \qquad \text{(V-1)}$$

avec [X](x) la concentration en espèce X au point considéré, en $mol.m^{-3}$.

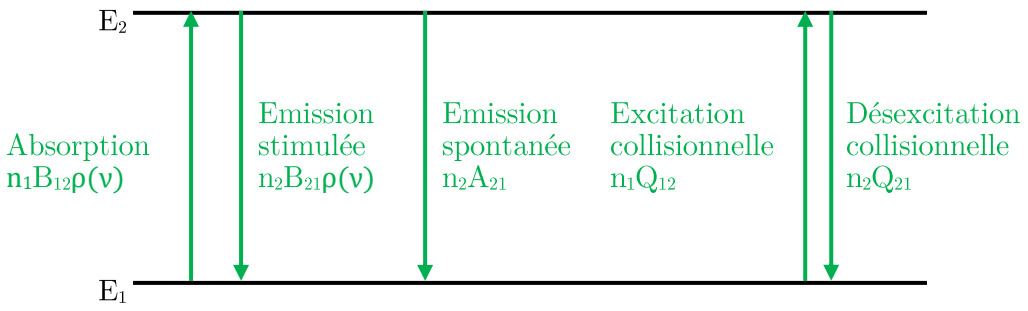


Figure V-3. Modèle à deux niveaux pour la fluorescence.

Posons un modèle simple à deux états (Figure V-3) haut (nommé 1) et bas (nommé 2) pour la fluorescence. Ici, ni représente la densité du niveau i, désigne la densité volumique et spectrique d'énergie du laser en $J.m^{-3}.Hz^{-1}$, les taux A_{ij}, B_{ij} représentent les coefficients d'Einstein usuels, Q_{ij} le taux d'excitation/désexcitation collisionnelle.

L'énergie du signal de fluorescence, c'est-à-dire de la lumière issue de l'émission spontanée, émise dans le cône d'angle solide Ω par les fluorophores dans le volume V pendant la durée dt peut être exprimée ainsi :

$$dE_{émise} = \frac{\Omega}{4\pi} V \, (n_2 \, A_{21}) \, h\nu_{21} \, dt$$

Le bilan de matière sur n_2 donne :

$$\frac{dn_2}{dt} = n_1(B_{12}\rho(\nu) + Q_{12}) - n_2(B_{21}\rho(\nu) + A_{21} + Q_{21})$$

Avec $n_1 Q_{12}$ négligeable devant les autres termes.

Cas particulier : à l'état stationnaire, nous avons $\frac{dn_2}{dt} = 0$ soit :

$$n_2 = n_1 \frac{B_{12}\rho(\nu)}{B_{21}\rho(\nu) + A_{21} + Q_{21}}$$

Un régime intéressant ici est le régime de faible excitation que nous définirons par :

$$B_{21}\rho(\nu) = \frac{g_1}{g_2} B_{12}\rho(\nu) \ll A_{21} + Q_{21}$$

Alors $n_2 \ll n_1$ et :

$$n_2 = n_1 \frac{B_{12}\rho(\nu)}{A_{21} + Q_{21}}$$

Ainsi :

$$dE_e = \frac{\Omega}{4\pi} V \, n_1 B_{12}\rho(\nu) \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} \; h\nu_{21} dt$$

Le signal collecté dans cet angle par un montage d'efficacité Λ est ainsi :

$$S_{coll} = \Lambda \int_{\Delta t_{acq}} \left(\frac{\Omega}{4\pi} V\, n_1 B_{12} \rho(\nu) \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} h\nu_{21} \right) dt$$

$$S_{coll} = \Lambda \frac{\Omega}{4\pi} V\, n_1 B_{12} \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} h\nu_{21} \int_{\Delta t_{acq}} \rho(\nu)\, dt \qquad \text{(V-2)}$$

On voit ainsi l'intérêt d'utiliser une source cohérente pour obtenir une importante densité de signal $\rho(\nu)$: c'est le principe de la fluorescence induite par laser, nommée usuellement LIF (pour *Laser-Induced Fluorescence*).

Il est bon de rappeler que pour des espèces simples (atomiques, molécules diatomiques), les spectres d'excitation ont une apparence moins continue que ce que l'on peut apercevoir dans la Figure V-2, avec des successions de raies fines, il est donc nécessaire d'exciter précisément les transitions souhaitées : un laser ajustable à fine largeur spectrale est alors dans ce cas tout indiqué.

b) *Transition à deux photons*

Il est possible d'atteindre des transitions caractérisées par des énergies d'excitation plus importantes grâce à de l'absorption multiphotonique. Usuellement, on récolte un signal issu d'une transition de fluorescence bien moins énergétique : nous avons l'exemple de l'oxygène atomique ou du xénon qui peuvent être excités avec deux photons UV entre leur fondamental et un état électronique excité, et retomberont classiquement sur des transitions inférieures stables et de plus haute énergie que le fondamental, en irradiant dans le visible ou dans l'infrarouge. Ces exemples, qui ne sont ni plus ni moins que les transitions ciblées dans ce manuscrit dans le plasma de CO_2, sont illustrés en Figure V-4.

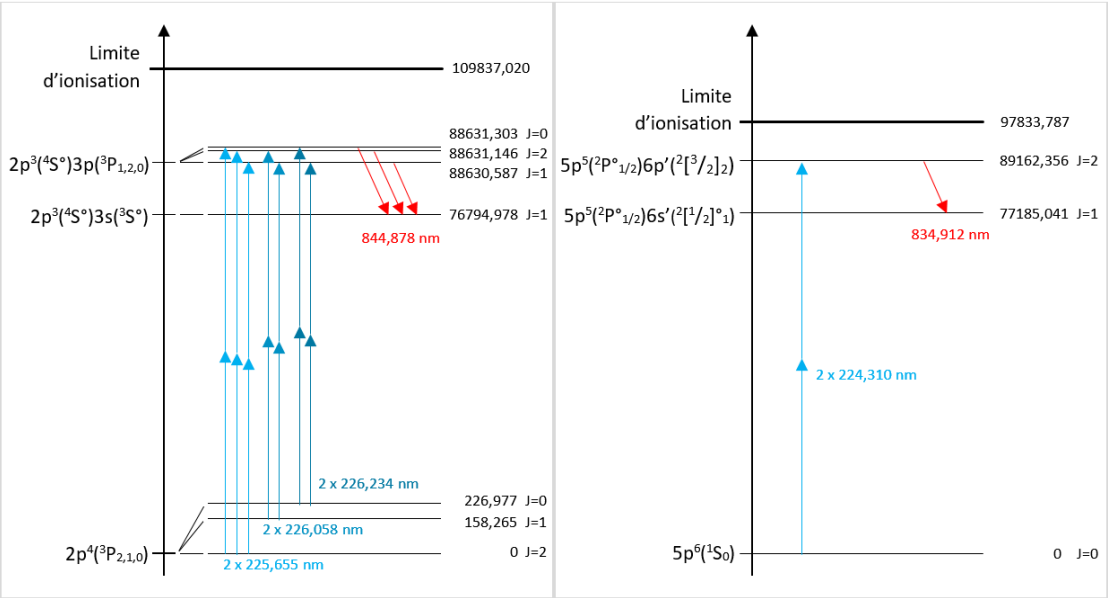


Figure V-4. Diagrammes d'énergie pour la LIF à deux photons de l'oxygène et du xénon.

En reprenant le même raisonnement, et en prenant en compte le fait que la variation de $\frac{dn_2}{dt}$ due à l'absorption multiphotonique d'ordre 2 est donnée par [65] :

$$\left(\frac{dn_2}{dt}\right)^{(2)} = n_1\, G^{(2)}\, \sigma^{(2)}\, \left(\phi_{photons}\right)^2$$

Avec $G^{(2)}$ le facteur statistique lié à l'absorption à deux photons (pour un laser multi-mode, $G^{(2)} = 2$ [66]), $\sigma^{(2)}$ la probabilité d'absorption à deux photons, $\phi_{photons}$ le flux de photons par unité de surface et de temps :

$$\phi_{photons}(t) = \frac{I_{laser}(t)}{h\nu_{12}} = \frac{\varphi_0}{h\nu_{12}} F(t)$$

F(t) le profil temporel de l'intensité laser tel que $\int_{impulsion} F(t)dt = 1$, et

$$\varphi_0 = \frac{E_{laser}}{S_{laser}} = \frac{1}{S_{laser}} \iint_{S_{laser}} \varphi(r)dS$$

la moyenne du profil de densité surfacique d'énergie sur une impulsion.

Par abus de langage, il est parfois rencontré dans la littérature des valeurs de section efficace qui sont en réalité le produit $G^{(2)}\, \sigma^{(2)}$, il convient donc de rester attentif aux équations qui modélisent

Nous avons, en reprenant le même raisonnement que dans la sous-section précédente :

$$n_2 = G^{(2)} n_1 \frac{\sigma^{(2)}\, \left(\phi_{photons}\right)^2}{A_{21} + Q_{21}}$$

Ainsi

$$dE_{émise} = \frac{\Omega}{4\pi}\, V\, (\, n_2\, A_{21})\, h\nu_{21}\, dt$$

$$dE_e = \frac{\Omega}{4\pi}\, V\, G^{(2)} \left[n_1 \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}}\, \sigma^{(2)}\, \left(\frac{\varphi_0 F(t)}{h\nu_{12}}\right)^2 \right] h\nu_{21} dt$$

$$S_{coll} = \Lambda\, N_{accu} \int_{\Delta t_{impulsion}} \left[\frac{\Omega}{4\pi}\, V\, G^{(2)} \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}} \frac{1}{h\nu_{12}}\, n_1\, \sigma^{(2)}\, \left(\frac{E_{laser}}{S_{laser}}\right)^2 F^2(t) \right] dt$$

$$S_{coll} = \Lambda\, \frac{\Omega}{4\pi}\, V\, G^{(2)}\, \frac{1}{h\nu_{12}}\, \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_{21}}\, \frac{E_{laser}^2}{S_{laser}^2}\, N_{accu} \int_{\Delta t_{impulsion}} F^2(t)\, dt\;\; \sigma^{(2)}\, n_1 \qquad \text{(V-3)}$$

Ainsi, nous avons là une technique de mesure locale de population de l'état fondamental (par opposition à la spectroscopie d'émission qui sonde des états excités) non invasive, dont la réponse est proportionnelle à l'énergie laser et à la densité de l'espèce si l'intensité laser est suffisamment faible (hypothèse de « faible excitation » présentée plus haut). La technique donne de bons niveaux de signal tant que la désexcitation collisionnelle (*quenching*) ne vient pas interférer trop intensément.

Cependant, à cause de la nécessité d'exciter des transitions précises, c'est une technique mono-espèce, qui nécessite souvent un laser ajustable en longueur d'onde avec une excellente finesse spectrale. Un obstacle important vient de la désexcitation collisionnelle qui vient diminuer l'intensité du signal de fluorescence produit. Enfin, il est nécessaire d'étalonner les mesures pour se débarrasser des termes expérimentaux $(\Omega, V, \Lambda, \int_{\Delta t_{impulsion}} F^2(t)\, dt)$.

Nous obtenons grâce à une mesure étalon S^X :

$$\frac{S^X}{S} = \frac{\left(E_{laser}^X\right)^2}{h\nu_{12}^X} \frac{h\nu_{12}}{(E_{laser})^2} \frac{A_{21}^X}{A_{21}^X + Q_{21}^X} \frac{A_{21} + Q_{21}}{A_{21}} \frac{\sigma^{(2),X}}{\sigma^{(2)}} \frac{n_1^X}{n_1}$$

Notre expérience visant ici à mesurer la densité du fondamental de l'oxygène et d'utiliser le xénon comme étalon, le modèle minimal est à trois niveaux : l'excitation à deux photons amène l'oxygène du triplet fondamental $2p^3P$ vers l'état excité $3p^3P$, qui retombe ensuite vers l'état $3s^3S$. Nous annoterons les grandeurs avec les symboles de leurs atomes respectifs ; de plus, nous noterons les niveaux bas, haut et d'arrivée, respectivement 0, 2 et 1.

Dans notre cas, le laser utilisé pour exciter les transitions à deux photons sélectionnées est plus fin que le profil d'excitation. En effet, l'élargissement Doppler provoque une convolution du profil d'excitation du niveau fondamental ciblé avec une gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est définie ainsi :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} = \frac{\Delta f}{f_0} = \frac{\Delta\sigma}{\sigma_0} = \sqrt{\frac{8\ln(2)\, k_B T}{mc^2}} \qquad \text{(V-4)}$$

Pour illustrer, en ce qui concerne les transitions types ciblées dans notre expérience sur l'oxygène ($\sigma_0 = 88\,400$ à $88\,600\ cm^{-1}$) et une température ambiante de 300 K, nous obtenons une largeur Doppler de $2{,}74.10^{-1}$ cm^{-1} alors que la largeur du laser (présenté dans la section V.1.3.) est de 6.10^{-2} cm^{-1}. Pour des températures de 3000 à 6000 K, cette largeur Doppler est de l'ordre de 1 cm^{-1}.

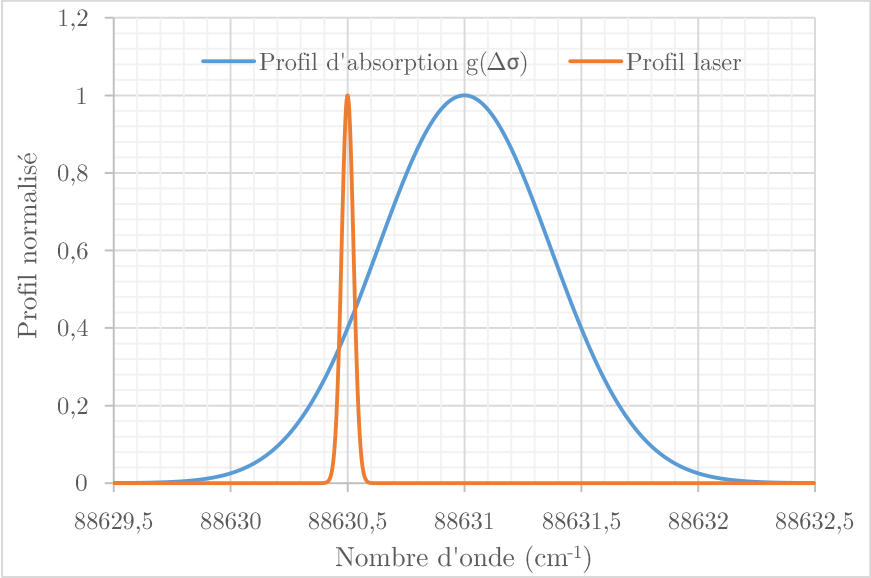


Figure V-5. Profils spectraux types du laser et de l'absorption de l'oxygène à T=3000 K.

Nous devons donc intégrer à l'expression du signal reçu S la valeur du profil spectral d'absorption $g(\sigma - \sigma_0)$ convolué au profil spectral du laser (profils-types illustrés en Figure V-5) ; en première approximation, comme $\Delta\sigma_{laser} \ll \Delta\sigma_{Doppler}$, cette convolution peut être remplacée par $g(\Delta\sigma)$ avec $\Delta\sigma = \sigma_{laser} - \sigma_0$.

Ainsi, corriger l'expression (V-3) donne :

$$S = S_{coll}\, g(\Delta\sigma)$$

Et donc :

$$n_0^O = \frac{S^O}{S^{Xe}} \frac{\left(E_{laser}^{Xe}\right)^2}{h\nu_{02}^{Xe}} \frac{h\nu_{02}^O}{(E_{laser}^O)^2} \frac{A_{21}^{Xe}}{A_{21}^{Xe} + Q_{21}^{Xe}} \frac{A_{21}^O + Q_{21}^O}{A_{21}^O} \frac{\sigma^{(2),Xe}}{\sigma^{(2),O}} \frac{g^{Xe}(\Delta\sigma^{Xe})}{g^O(\Delta\sigma^O)}\, n_0^{Xe} \qquad \text{(V-5)}$$

Suite à ces notes sur le principe général de la TALIF, nous décrirons plus en détail l'étalonnage nécessaire ainsi que les procédures de mesure de la température et de la densité du niveau fondamental dans les sections V.2. à V.4.

V.1.2. Application aux diagnostics optiques pour des mesures locales de températures et de densités d'espèces

L'étude de la fluorescence induite par laser à deux photons dispose de certains atouts. Elle est considérée comme non-invasive, permet des mesures locales de la température et de la densité, et fournit une quantité de signal importante, surtout au regard de la diffusion Raman. Tant que l'on reste dans les limites de faible excitation définies auparavant, le signal collecté est directement proportionnel à la densité du fondamental et au carré de l'énergie de l'impulsion. Si l'on prend le cas de l'oxygène atomique, comme elle utilise deux photons pour amener le fluorophore sur son état excité,

elle ne dispose pas des mêmes obstacles qu'une fluorescence classique : en fluorescence classique, il faudrait produire un laser à 113 nm, ce qui implique que le système acheminant le faisceau laser soit débarrassé de l'air ambiant qui est très absorbant à cette gamme de longueurs d'ondes. L'autre problème d'un laser à 113 nm, c'est la possibilité d'une absorption du laser. Un autre avantage, cette technique est un complément intéressant de la spectroscopie d'émission car la première décrit l'état fondamental tandis que la seconde donne des informations sur les états excités.

En revanche, la fluorescence à deux photons dispose aussi d'inconvénients. Elle est facilement parasitée par les phénomènes de désexcitation collisionnelle. Il n'est possible de sonder qu'une espèce lors de chaque campagne puisque nous excitons une transition précise, et pour cette même raison, il est nécessaire de disposer d'un laser spectralement fin et accordable en longueur d'onde. Enfin, il est nécessaire de disposer d'un étalon pour des mesures quantitatives de température et de densité.

Une campagne de mesure se décompose en deux volets : d'une part, en procédant à un balayage en longueur d'onde d'excitation, il est possible d'estimer une température de translation grâce à l'effet Doppler thermique (Equation (V-4)); d'autre part, une mesure de l'évolution temporelle du signal de fluorescence permet d'estimer l'influence des désexcitations collisionnelles, qui permet de remonter grâce à un étalon à une mesure de densité (Equation (V-5)).

V.1.3. Dispositif expérimental

Afin de produire un faisceau de longueur d'onde ajustable dans la gamme [224–227 nm], nous utilisons un laser Quantel Q-Scan pompé par un laser Nd:YAG Quantel YG980 doublé, illustrés sur la Figure V-6. Le colorant, un mélange LDS698 + DCM (concentrations relatives 45,8%/54,2%), permet d'obtenir un faisceau dont la longueur d'onde est ensuite sélectionnée finement autour de 678 nm grâce à un réseau diffractant 2400 traits.mm^{-1}. Ce faisceau en ensuite triplé pour obtenir un faisceau à 226 nm.

Figure V-6. Laser de pompe YG980 Nd:YAG 532nm (gauche) et laser Q-Scan à colorant (droite). La trajectoire verte est celle du faisceau de pompe.

Ce faisceau est amené au-dessus de la veine d'essai puis envoyé verticalement dans la veine grâce à deux prismes (visibles sur la Figure V-7) et des miroirs 226nm (>99% de réflexion) et à travers un hublot UV à 90% de transmission. Le hublot n'est pas installé à angle de Brewster mais à incidence normale, car la perte d'énergie est ici moins critique que pour la spectroscopie Raman. Une lame séparatrice posée sur un support réglable en orientation sert d'atténuateur de signal.

Concernant le montage de collection du signal, nous rappelons qu'il s'agit du même montage que celui utilisé pour la spectroscopie Raman et les mesures d'émission spontanée présenté dans le Chapitre IV : hublot en quartz Spectrosil, lentilles achromatiques [400–900 nm], spectromètre iHR550 qui joue le rôle de filtre en longueur d'onde, et caméra PI-MAX4 rouge (Figure IV-9). A nouveau, le déclenchement de la caméra est synchronisé sur le signal Q-Switch du laser.

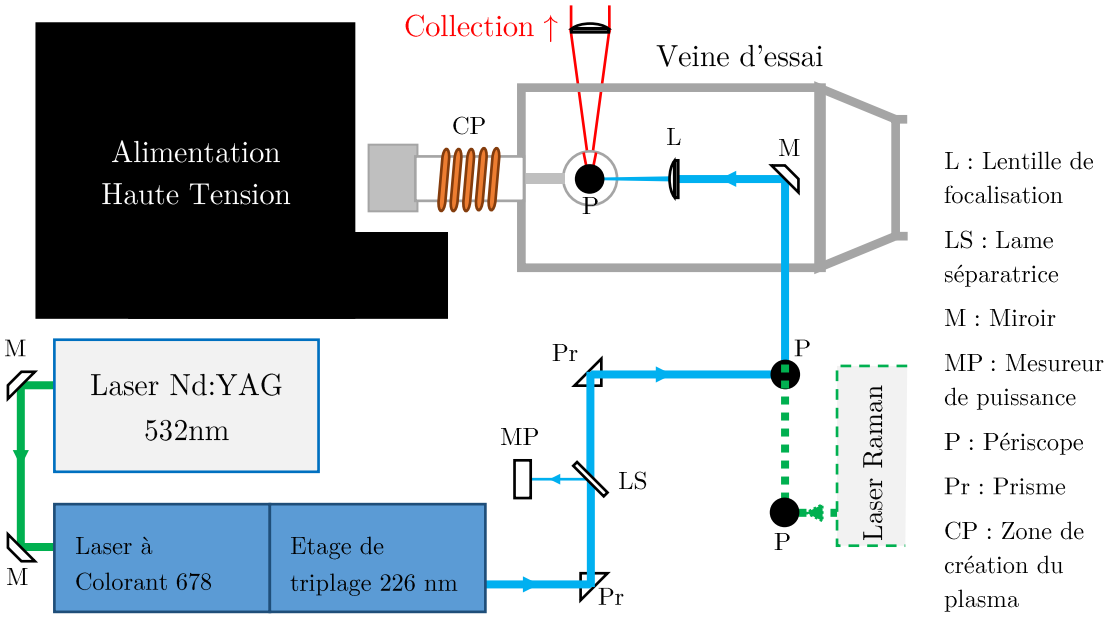


Figure V-7. Vue de dessus du montage d'excitation de la TALIF. Le marquage en pointillé vert figure le trajet du laser d'excitation Raman, à titre de comparaison.

Enfin, lors de l'étalonnage au xénon, le gaz sera maintenu à pression typique d'opération du plasma (6000 – 9000 Pa) dans une petite cellule cylindrique de 70 cl environ, munie de hublots UV et placée au point de collection dans la veine d'essai. Une petite pompe sèche maintient la basse pression tandis que la cellule est alimentée peu à peu en xénon.

Abordons plus en détail les caractéristiques du laser produit par le Q-Scan. Le laser produit un faisceau de 8 à 10 ns de durée, dont le profil spectral est illustré en Figure V-8 et dont la largeur à mi-hauteur spectrale est de 0,06 cm^{-1}. Le laser est stable

temporellement comme on peut le voir sur la Figure V-9 et Figure V-10, avec un profil gaussien d'écart-type de 7,29% constant sur toutes les mesures effectuées.

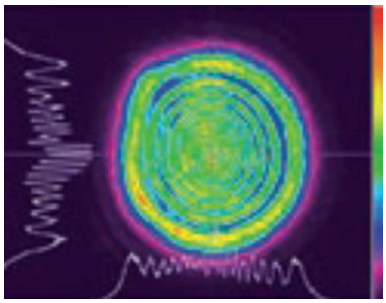


Figure V-8. Profil spatial du laser Q-Scan pour un faisceau à 565nm (Source : Quantel).

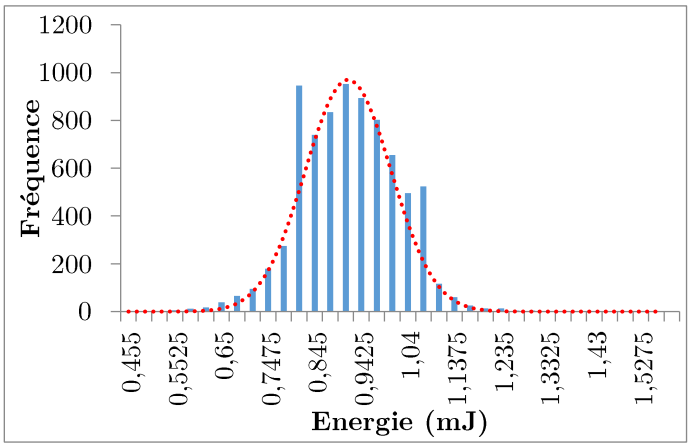


Figure V-9. Histogramme d'énergie type du laser Q-Scan pour un faisceau à 226 sur 8000 tirs.

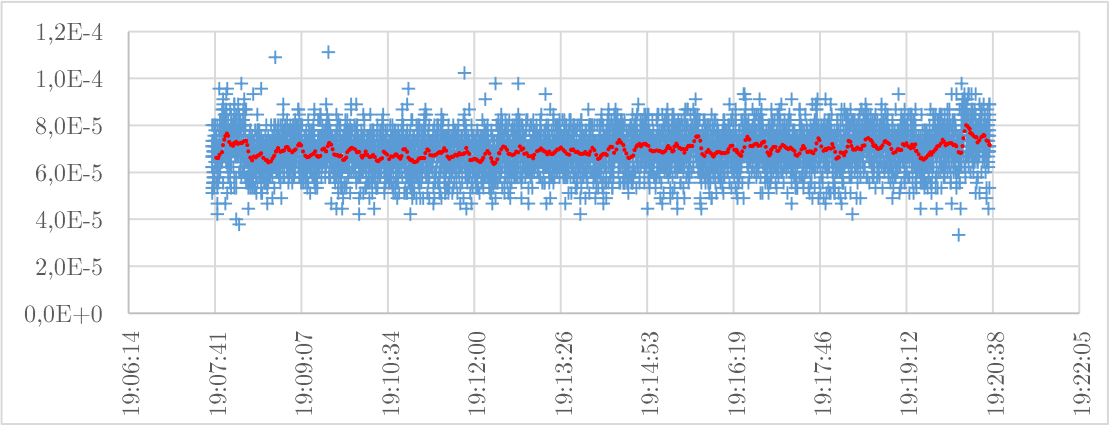


Figure V-10. Mesure de l'énergie laser à 226 nm.

Nous avons aussi relevé l'influence de la longueur d'onde du laser avec l'énergie d'une impulsion, résumée par des mesures d'énergie dans le Tableau V-13. Cette influence s'est montrée stable au fur et à mesure des campagnes.

Niveau bas de transition TALIF	Longueur d'onde approximative (nm)	Energie moyenne (mJ)
$2p^3P_0$	226,234	3,8
$2p^3P_1$	226,058	2,2
$2p^3P_2$	225,655	0,9

Tableau V-13. Influence de la longueur d'onde sur l'énergie.

Une mesure de la transmission de la lame séparatrice en fonction de son orientation est illustrée en Figure V-11.

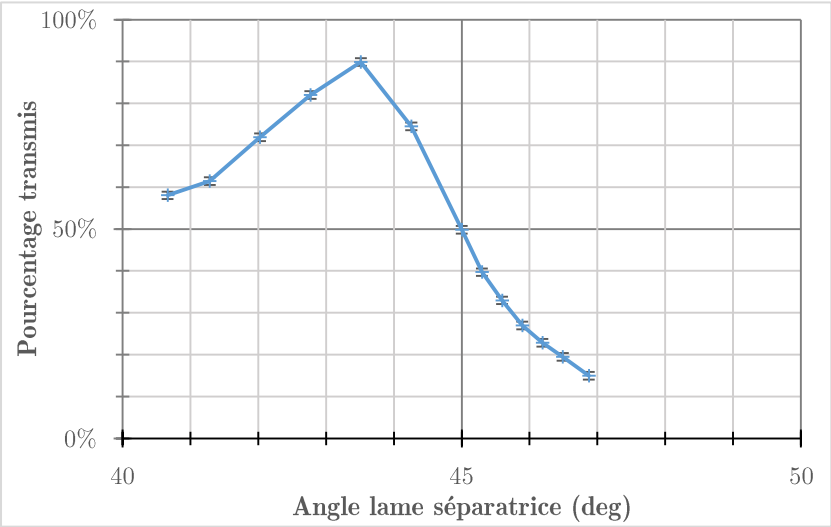


Figure V-11. Influence de l'angle d'incidence sur la transmission de la lame séparatrice.

Enfin, nous avons vérifié la gamme d'énergie pour laquelle la validité de l'hypothèse de faible excitation, c'est-à-dire de l'absence d'autres processus parasites tels que l'émission spontanée amplifiée (ASE). [67] Les résultats sont visibles en Figure V-12. Tant que l'énergie du laser est contenue sous le seuil de 0,5 mJ, la linéarité entre signal total de fluorescence et le carré de l'énergie est conservé.

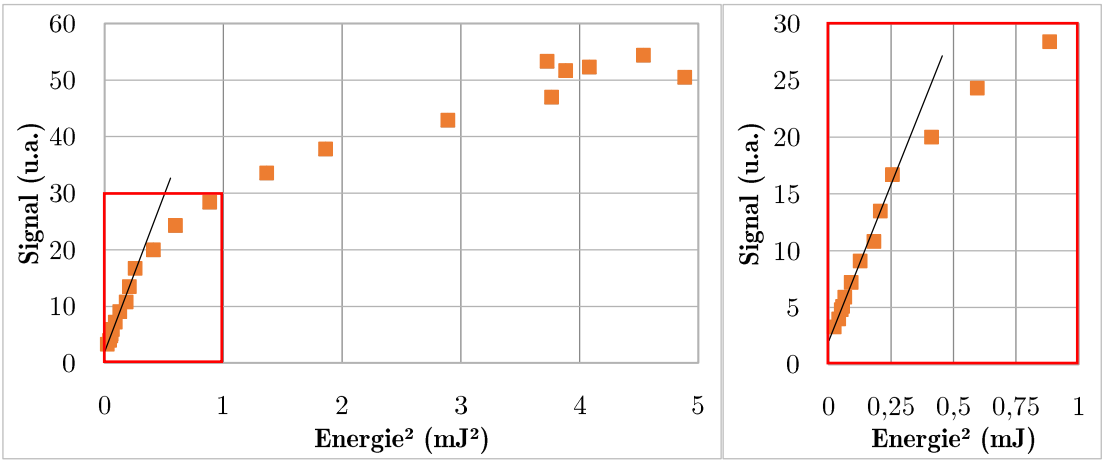


Figure V-12. Détermination du domaine de « faible excitation » : $E^2 < 0{,}25$ mJ².

V.2. Etalonnage : Mesure sur Xenon à température ambiante

Afin de pouvoir se débarrasser de certains facteurs expérimentaux, il est nécessaire de procéder à une campagne de mesure en suivant la même procédure que pour l'oxygène, mais dans une situation connue. Comme il serait difficile de sonder de l'oxygène atomique à température ambiante (pour des raisons évidentes d'absence d'une telle espèce dans ces conditions), il est usuel de procéder à un étalonnage au Xénon [65] car certaines transitions excitatrices partant du fondamental possèdent des écarts énergétiques très proches des transitions de l'oxygène. Parmi ces transitions, j'ai fait le choix de la transition $5p \xrightarrow{2\,x\,224{,}31} 6p'$ qui redescend ensuite sur 6s' en émettant à environ 834,9 nm, présentée sur le diagramme de droite de la Figure V-4. Vous noterez la similarité des écarts énergétiques des transitions d'excitation et de fluorescence avec celles de l'oxygène. Il est intéressant de noter qu'une autre transition à deux photons connue du xénon dispose d'une transition excitatrice encore plus proche des transitions de l'oxygène ($5p \xrightarrow{2\,x\,225{,}51} 7p$), mais le signal de fluorescence est alors produit dans le bleu (~462,6 nm) [65], ce qui est hors domaine de sensibilité de la caméra PI-MAX4 utilisée pour la collection du signal de l'oxygène ; c'est pour cela que notre choix s'est porté sur la transition 5p→6p'.

Dans notre cas, l'étalonnage a été effectué dans une cellule contenant uniquement du Xénon pur à 99,998% minimum (Xenon N48).

La première campagne vise à déterminer la fonction d'appareil lors de la thermométrie et consiste à procéder au même balayage en longueur d'onde d'excitation que celui décrit précédemment. En simulant la contribution à la largeur du spectre d'absorption venant de l'effet Doppler thermique à température ambiante de 300K, nous connaitrons la largeur liée à la fonction d'appareil (voire même sa forme en déconvoluant le signal ou en simulant une fonction d'appareil), permettant ainsi la thermométrie de O.

La seconde consiste donc à mesurer la quantité de signal de fluorescence récolté entre de petits intervalles de temps pour observe l'évolution temporelle du signal de fluorescence. Dans le cadre de la « faible excitation », le signal décroit exponentiellement et le taux de décroissance τ est alors piloté par le ratio $\frac{A_{21}^{Xe}}{A_{21}^{Xe}+Q_{21}^{Xe}} = A_{21}^{Xe}\,\tau$.

La mesure passée [65] [68] de l'influence de la pression sur le signal de fluorencence permet aussi d'estimer le rapport des sections efficaces $\frac{\sigma^{(2),Xe}}{\sigma^{(2),O}}$: nous retiendrons la valeur 0,36 [68].

Une fois ces paramètres déterminés, il reste à introduire la densité bien contrôlée du xénon dans la cellule dans le modèle et ainsi bien es paramètres seront levés.

V.3. Mesures de températures de translation du fondamental de O

L'un des premiers obstacles à la détermination de la température et la densité d'oxygène vient du profil d'absorption illustré en bleu dans la Figure V-5. Celui-ci, dans nos conditions expérimentales de hautes températures et basses pressions, a pour principales causes l'effet Doppler thermique et la fonction d'appareil. La seconde cause a été détaillée dans la section précédente concernant l'étalonnage au Xénon ; cette partie se concentrera sur l'élimination de la contribution thermique à l'élargissement du profil d'absorption.

V.3.1. Balayage en longueur d'onde d'excitation

Pour cela, il est possible d'ajuster progressivement la longueur d'onde du laser excitateur suite à chaque acquisition du signal total de fluorescence (c'est-à-dire intégré sur son profil spectral), de sorte à parcourir l'ensemble du profil d'absorption et le reconstituer dans ce qu'on appelle un spectre d'excitation. Il est important de noter que ce spectre d'excitation, qui est fonction du nombre d'onde de la transition excitatrice, est à distinguer du spectre formé par le signal de fluorescence lorsqu'il est diffracté par un réseau, qui lui est fonction du nombre d'onde de la transition émettrice de fluorescence.

En procédant à un premier scan rapide, nous pouvons estimer la largeur de la grille de scan et sa densité en points de mesures. Puis vient un balayage réel de mesures, durant lequel la longueur d'onde est ajustée, l'énergie laser mesurée et le signal de fluorescence récolté.

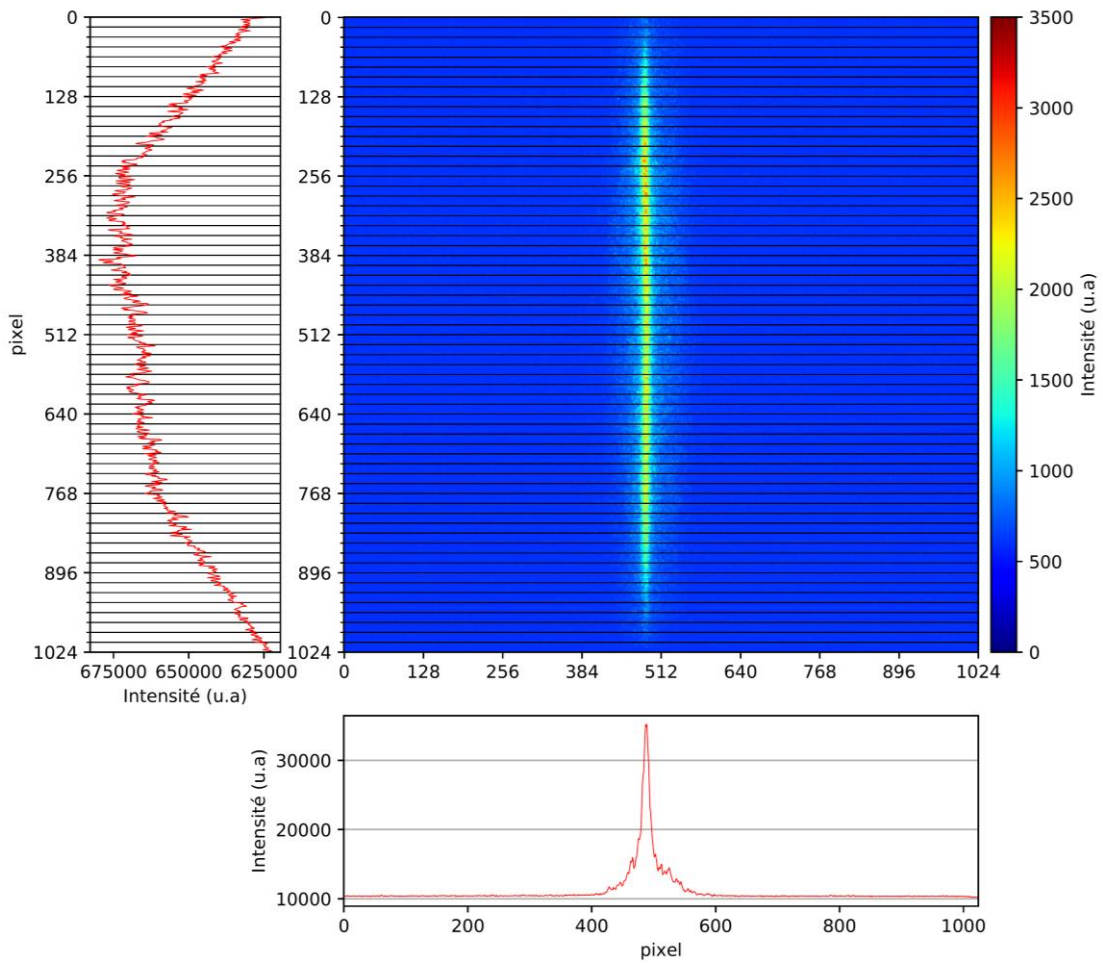


Figure V-13. Image brute de fluorescence et profils extraits (crédit figure : M.Lesage).

Un signal brut de fluorescence est illustré en Figure V-13 : l'axe vertical représente la coordonnée verticale spatiale (parcours du laser d'excitation), tandis que l'abscisse est proportionnelle la une longueur d'onde de fluorescence. L'image est encore ici encore affichée en numéro de pixel.

Une fois le balayage accompli, nous procédons à l'élimination du fond et à l'intégration du signal de fluorescence sur chaque ligne ou groupe de lignes (illustré par les tranches horizontales sur la Figure V-13). La valeur de chaque intégrale représentera donc un point $S(\lambda_{excitation}$, hauteur), formant un ensemble de spectres d'excitation, un spectre comme illustré en Figure V-14 par bande de hauteur z donnée. En déduire une température pour chaque hauteur z mènera à tracer son évolution avec z, illustrée en Figure V-15.

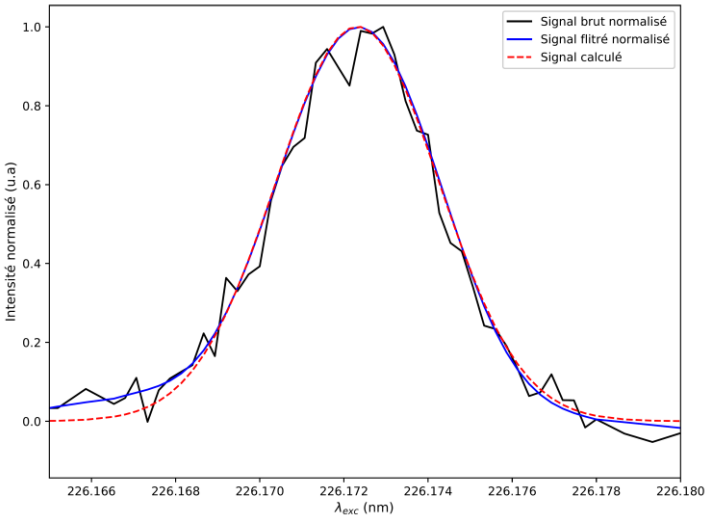


Figure V-14. Signal brut, filtré et simulé type des transitions partant de $^3P_0$. [69]

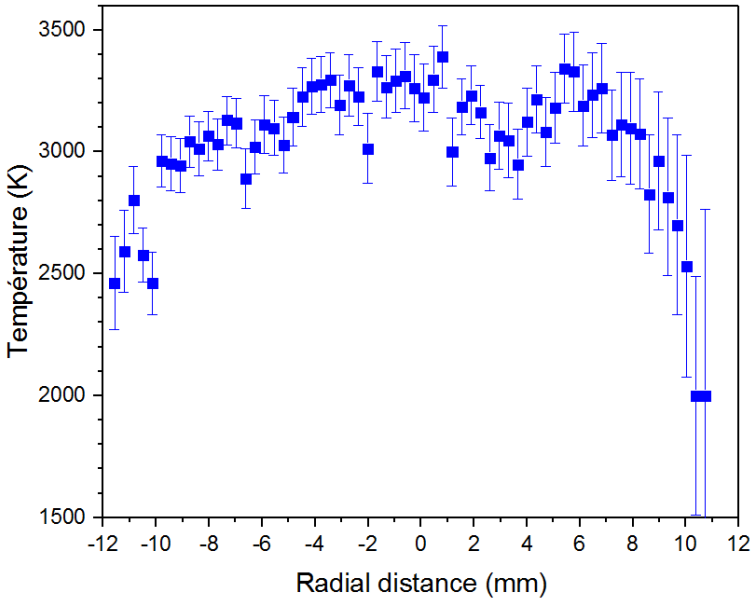


Figure V-15. Evolution de la température de translation de O avec la hauteur. [69]

V.3.2. Simulation des spectres théoriques et ajout de la fonction d'appareil, détermination de la température

Suite à cela, il est nécessaire de procéder à une simulation des spectres théoriques en prenant en compte, pour l'oxygène, la structure fine de ses transitions (chaque raie d'excitation est la somme de 2 ou trois transitions représentées par des gaussiennes,

dictées par la fonction d'appareil et l'effet Doppler thermique). L'étalonnage éliminant la fonction d'appareil du problème, nous pouvons alors a priori remonter à la température du milieu.

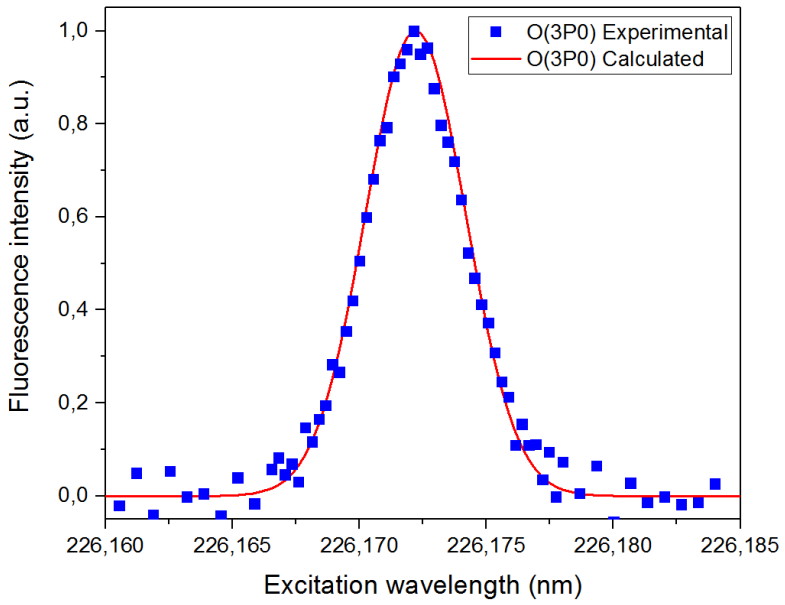


Figure V-16. Signal simulé type des transitions partant de $^3P_0$.

V.4. Mesures de densité du fondamental de O

V.4.1. Mesure de la décroissance de la fluorescence

Nous précédons globalement à la même méthode que pour le balayage en vue de la mesure de température, sauf qu'ici on procède à un balayage en instant de déclenchement de caméra. Un premier balayage grossier permet de déterminer l'échelle de temps explorée puis une échelle précise est déterminée pour capter la dynamique de croissance et décroissance de la fluorescence.

De la même manière, une fois le balayage accompli, nous procédons à l'élimination du fond et à l'intégration du signal de fluorescence sur chaque ligne ou groupe de lignes (illustré par les tranches horizontales sur la Figure V-13). La valeur de chaque intégrale représentera donc un point S($t_{\text{déclenchement}}$, hauteur), formant un ensemble de signaux intégrés de fluorescence, un graphe par bande de hauteur z donnée.

V.4.2. Détermination du quenching, mesure de densité

De la même manière, simuler l'évolution temporelle d'un tel signal en prenant en compte la forme du signal d'excitation, ainsi que diverses valeurs de τ et les valeurs de

A_{21} déjà tabulées, il est possible de remonter à ces valeurs pour les éliminer de l'équation (V-5). Il est alors possible de cartographier la densité en oxygène atomique fondamental le long de la hauteur de la zone de mesure, et par la suite relier ceci avec les autres densités estimées grâce aux autres techniques déployées pour tenter de confirmer ou d'opposer leurs résultats, que nous détaillerons dans le sixième et dernier chapitre.

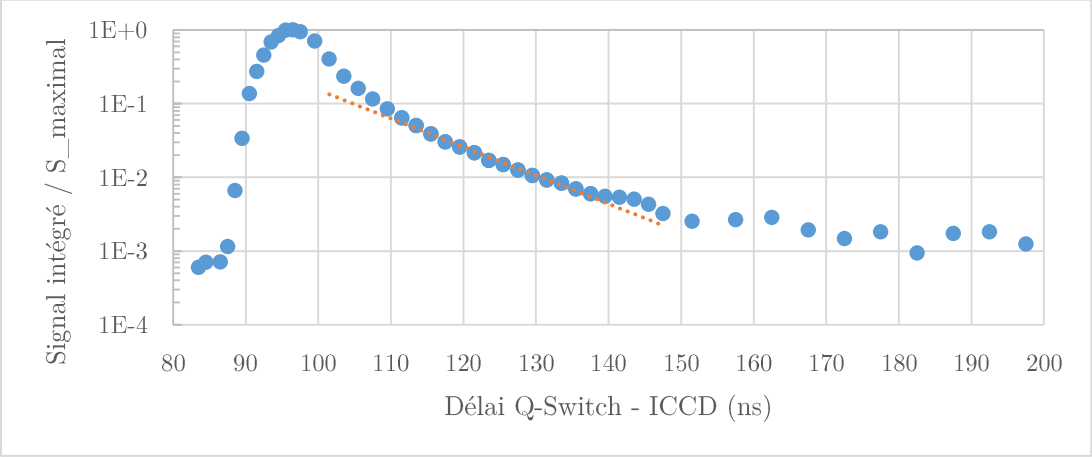


Figure V-17. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée. Ici $Q = 6{,}5.10^7\ s^{-1}$.

Chapitre VI. Résultats et discussion

Dans ce chapitre nous allons présenter les campagnes effectuées, présenter leurs résultats et les mettre en relation avec les autres résultats utilisables pour établir l'état du plasma de CO_2 pur et quantifier l'évolution de la recombinaison CO/CO_2.

VI.1. Spectres Raman

VI.1.1. Acquisition des signaux

Les spectres Raman du CO ont été acquis en 4 positions du laser dans le plasma, pour 2 pressions de fonctionnement données et 4 tensions d'alimentation correspondant à 4 enthalpies spécifiques.

- Pression : 6 et 9 kPa
- Enthalpie : 4 – 9 MJ/kg
- Positions laser :
  - 3 positions longitudinales sur l'axe de symétrie du jet libre :
    - « Amont », à 60 mm de la sortie de torche,
    - « Centre », à 75 mm,
    - « Aval », à 95 mm.
  - 1 position décalée latéralement de l'axe du plasma :
    - « Radial », à 75 mm de la sortie de torche et à 20 mm de l'axe.

La calibration pixel caméra a été effectuée grâce à des lampes spectrales (Princeton Instruments Intellical), la variation d'intensité du signal capté le long d'une ligne de pixels ainsi que le bruit est connue. De plus dans notre configuration de collection, pour un réseau de 600 tr/mm et des longueurs d'ondes autour de 580 nm, un pixel en colonne correspond à une bande de longueur d'onde de 17 pm de large ; nous obtenons ainsi sur le capteur d'une fenêtre spectrale totale de 17,4 nm.

Le temps d'une seule acquisition a été fixé à 20 minutes d'accumulations à 10 Hz : en effet, permettre plus d'accumulations de signal n'offre pas de gain de signal significatif, et moins d'accumulations engendrent une chute du rapport signal sur bruit. Un tel temps d'acquisition est possible grâce à la régularité de la source plasma ainsi que du laser. Il est à noter qu'il vaut mieux usuellement privilégier un long temps d'acquisition par rapport à une intensification élevée pour obtenir un meilleur rapport signal sur bruit. Cependant ici, la faiblesse du signal Raman nous a obligés à employer la valeur d'intensification maximale globale de 10 000 (gain 100 EM et gain 100 BI-CCD) pour

contenir le temps d'acquisition à ces 20 minutes ; en conséquence de cela, nous notons sur la Figure IV-15 la présence d'un fort bruit de capteur qu'il faut évaluer à chaque campagne pour l'éliminer de l'image. Pour cela il suffit d'acquérir un signal lorsque le laser est en polarisation parallèle (illustré en noir sur la Figure VI-1), permettant ainsi d'éliminer du résultat final tout autre signal lumineux en plus d'éliminer le niveau de fond. Convoluer le signal de fond avec une fonction de flou pour le lisser ne donne pas de résultats significatifs sur le bruit du signal utile traité.

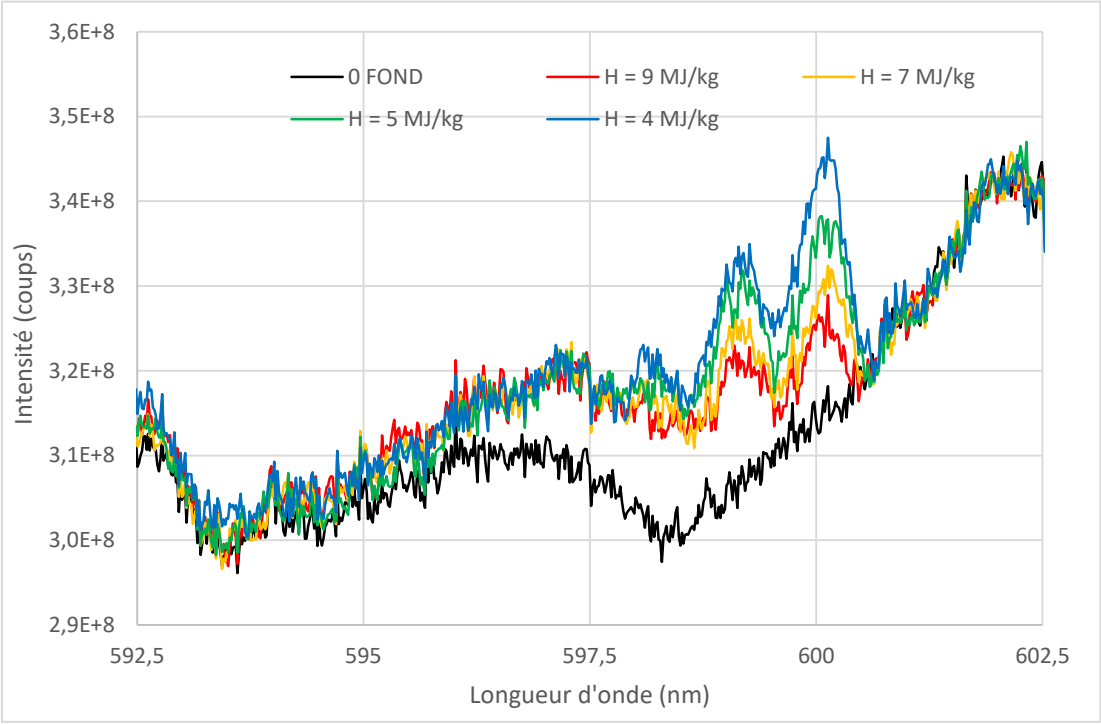


Figure VI-1. Comparaison de spectres Raman bruts (en couleur) avec le signal de fond (en noir) pour p = 6000 Pa.

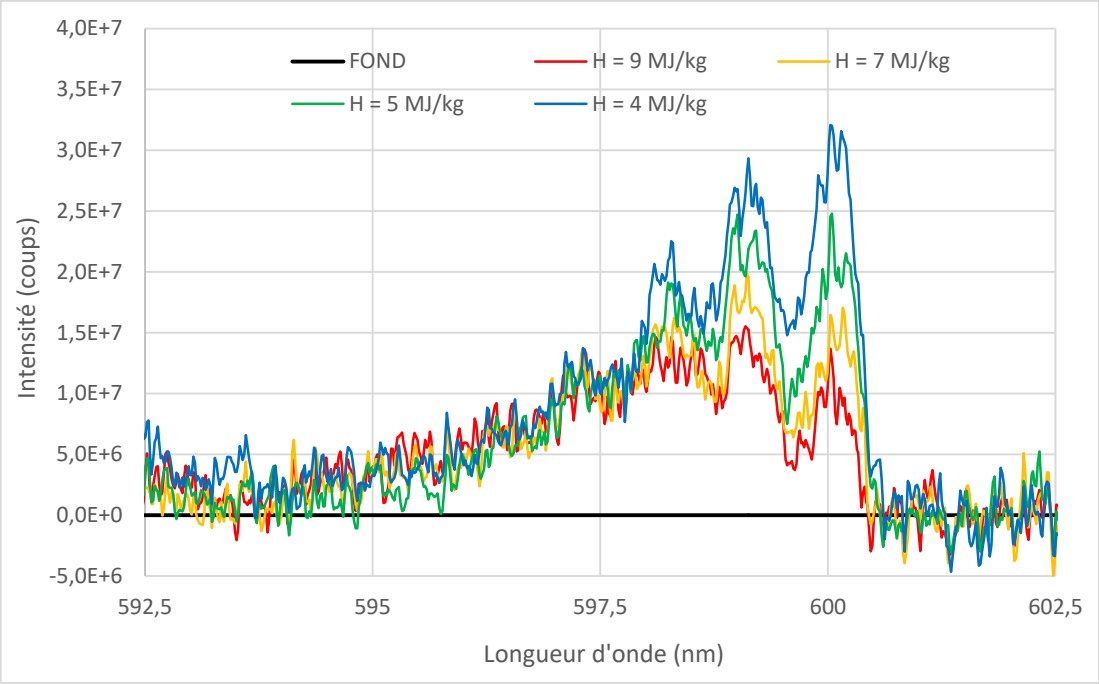


Figure VI-2. Signaux débarrassés du fond pour p = 6000 Pa.

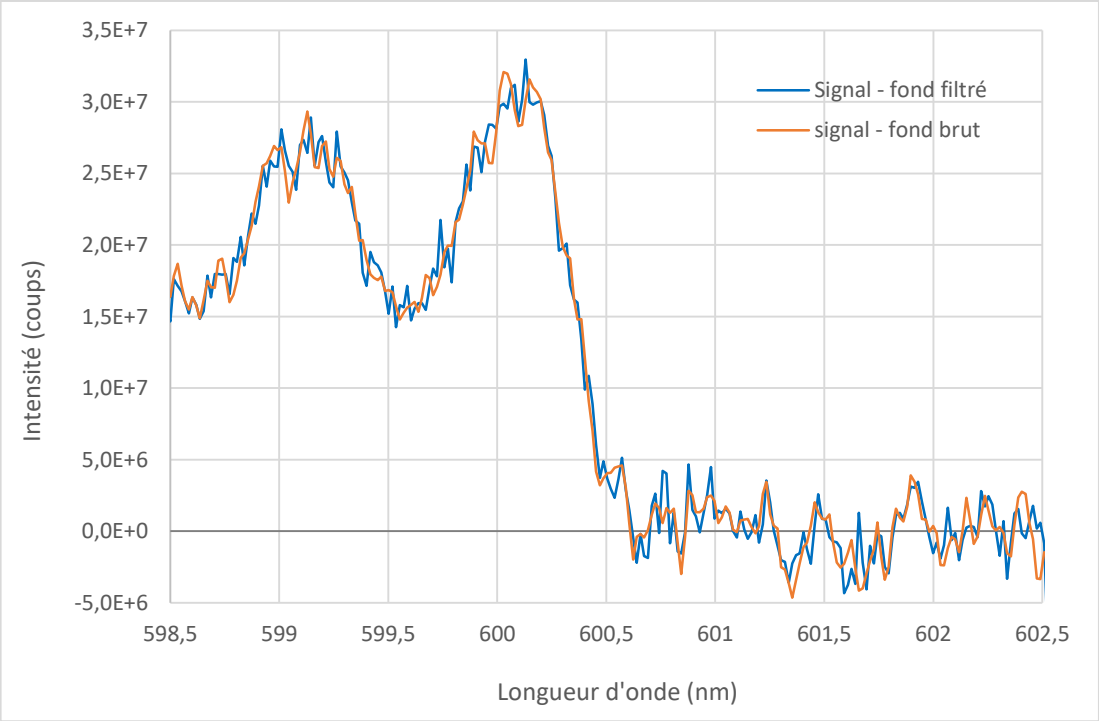


Figure VI-3. Comparaison du nettoyage par un signal de fond brut avec celui par un signal moyenné pour p = 6000 Pa.

Pour le programme de simulations de spectre Raman, nous avons implanté une fonction d'appareil issue d'une acquisition du spectre Rayleigh (Figure IV-13), et fait le

choix de prise en compte des niveaux rotationnels tels que J<200. La Figure VI-4 illustre l'influence du niveau de coupure sur la simulation d'un spectre à hautes températures. Lorsque la limite sur J est fixée à 50 (courbe orange), nous voyons clairement que les bandes vibrationnelles sont coupées prématurément, par la présence de points de rupture de courbure ; cela mène à une sous-estimation des intensités sur chaque queue de bande, qui modifie la forme du spectre global et à terme mène à une mauvaise estimation des températures, et par la suite des densités. Nous portons donc notre choix sur une valeur de coupure de J de 200 (en bleu sur la figure).

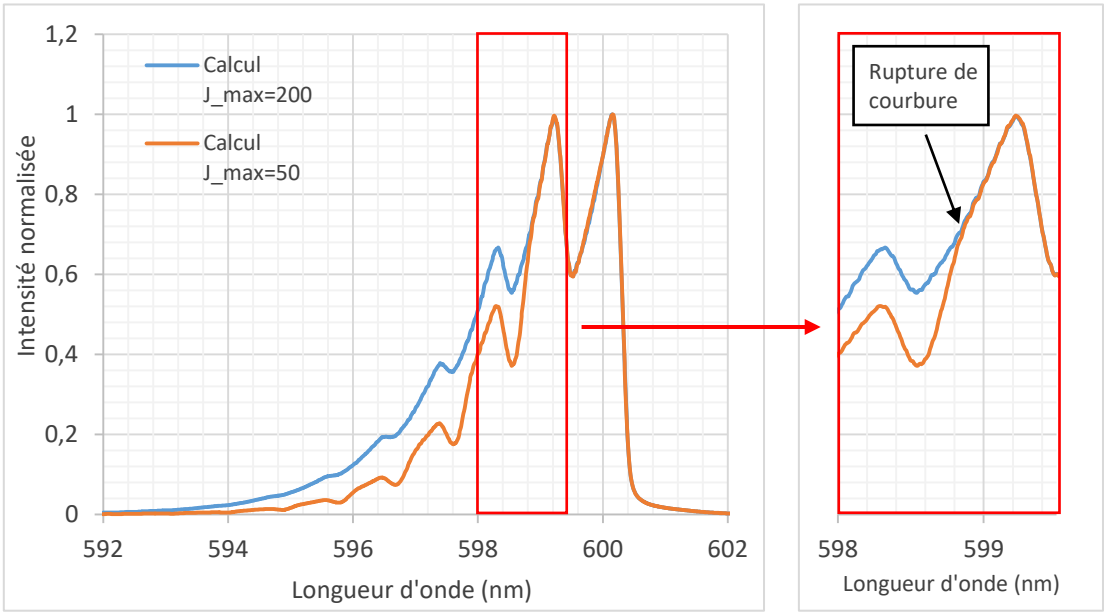


Figure VI-4. Influence du nombre rotationnel de coupure J_{max} pour un spectre Raman à l'équilibre T = 3000K.

Maintenant que nous avons présenté les derniers choix de paramètres pour l'acquisition et la simulation, nous pouvons commencer à présenter la comparaison des deux permettant l'estimation des températures et des densités.

VI.1.2. Thermométrie du CO

La Figure VI-5 présente un exemple de signal Raman acquis à une pression de 6000 Pa et une enthalpie de 4 MJ/kg, traité et comparé avec un spectre synthétique ; ceci nous permet d'estimer les températures vibrationnelles et rotationnelles du fondamental de CO respectivement à 3000 et 2900 K. Le rapport signal sur bruit entre 8 et 9 étant très bon et la forme du spectre synthétique très sensible aux températures, l'estimation sur ces températures est de l'ordre de ± 200 K. Cependant, il existe des conditions moins favorables où le rapport signal / bruit (SNR, pour *Signal-to-Noise Ratio*) s'effondre jusque approcher l'unité, comme nous pouvons l'observer dans les

Figures Figure VI-6 et Figure VI-7 : dans ce cas, il devient difficile d'estimer une forme convenable de signal avec certitude. Dans ce cas, nous nous concentrons souvent sur la comparaison des spectres synthétiques avec le spectre expérimental sur les trois premières bandes dont le motif est plus défini que les bandes suivantes qui s'effacent dans le bruit.

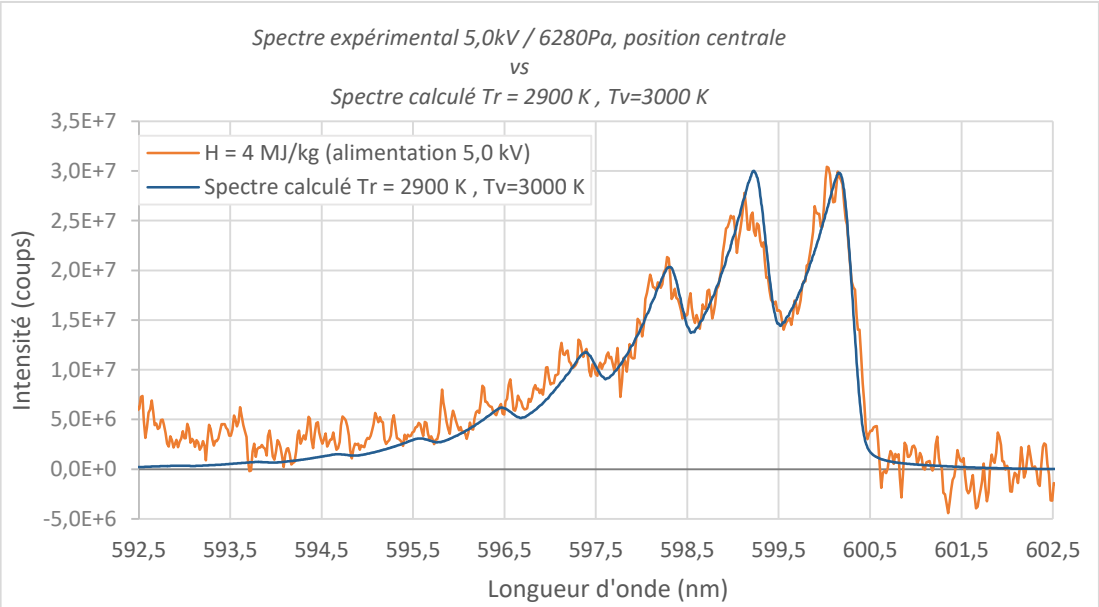


Figure VI-5. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit convenable (8,5).

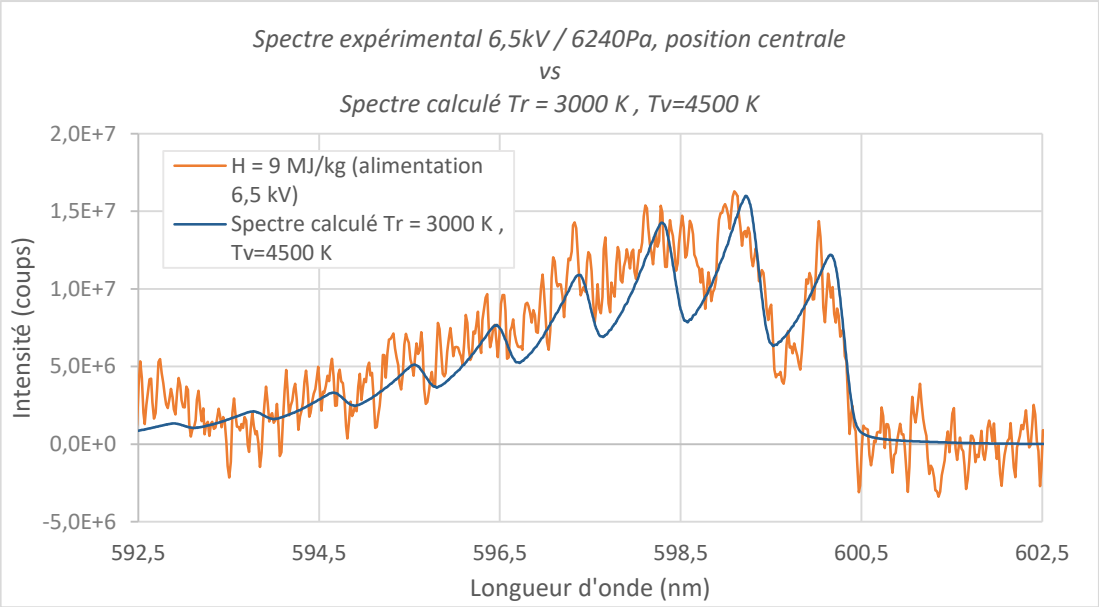


Figure VI-6. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit de 4.

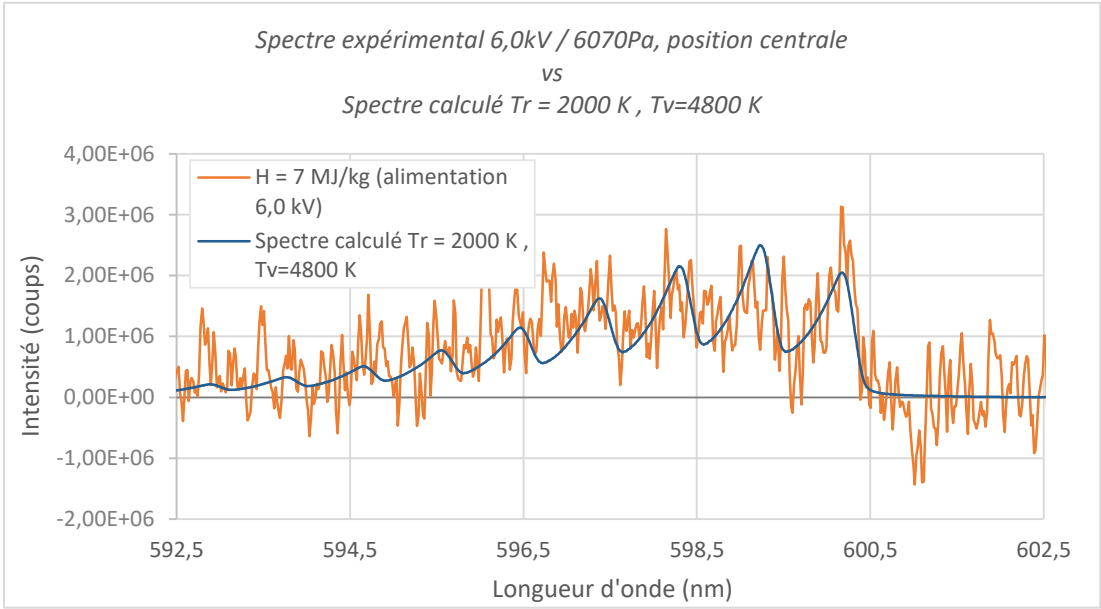


Figure VI-7. Comparaison du signal Raman expérimental avec un signal synthétique dans le cas d'un rapport signal/bruit très faible de 1,5.

Nous pouvons estimer l'erreur ΔT sur les températures (c'est-à-dire qu'on évalue T à ±ΔT près) en fonction du rapport signal / bruit comme illustrée sur la Figure VI-8. La fonction a été modélisée par la fonction exprimée en (VI-1) et ajustée expérimentalement sur trois points de référence (les trois points illustrés précédemment) et nous avons vérifié que l'écart en température est cohérent sur le reste des points.

$$\Delta T = \frac{a}{x} + \frac{b}{x^2} + \frac{c}{x^3} \qquad \text{(VI-1)}$$

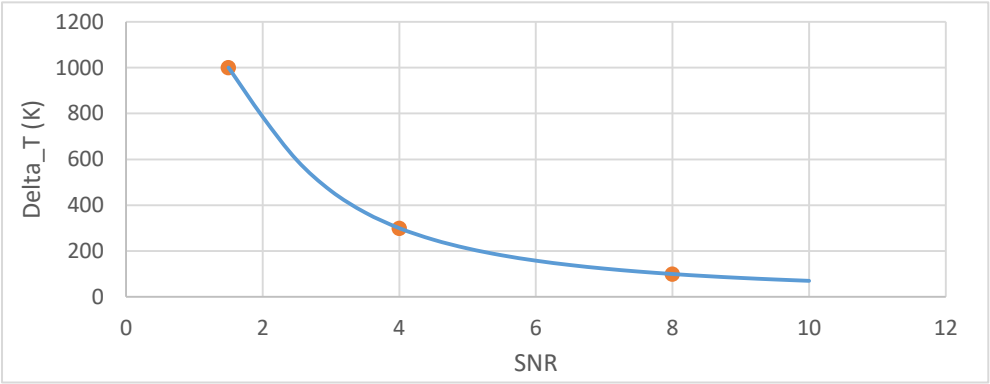
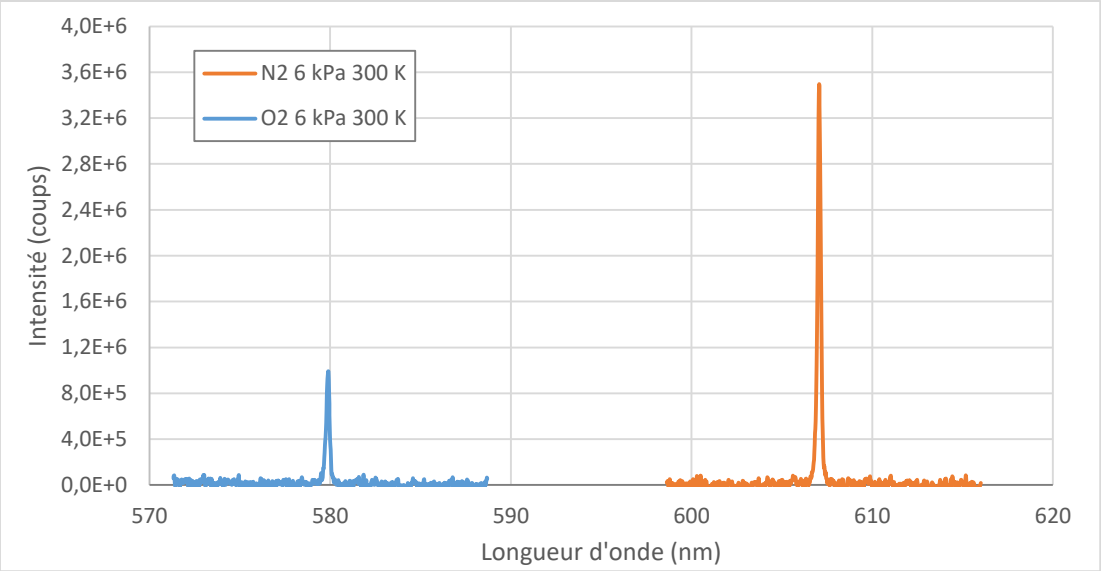


Figure VI-8. Evaluation de l'erreur d'évaluation de température en fonction du rapport signal sur bruit du spectre Raman (SNR).

VI.1.3. Densité du CO, fraction molaire

Suite à la détermination des températures, nous pouvons utiliser le spectre synthétique, l'ajuster en hauteur et calculer son intégrale. Afin d'éliminer les derniers paramètres expérimentaux de l'équation, il est nécessaire de relever à chaque campagne la pression dans la veine d'essai, la température ambiante, l'énergie laser, ainsi que procéder à une mesure de signal Raman de référence à froid. Nous avons choisi N_2 car étant majoritaire dans l'air à froid qui est nativement présent avant le démarrage de la soufflerie. Il est aussi possible de mesurer O_2, et en comparant les proportions des aires respectives entre N_2 et O_2 on retrouve quasiment la répartition molaire de l'air ambiant, comme illustré en Figure VI-9.



	Aire (Signal Raman)	Efficacité relative emICCD	Signal corrigé	Proportion	Proportion théorique
N_2	*2,55E+09*	0,825971	*3,09E+09*	75,9%	78%
O_2	*8,99E+08*	0,918056	*9,79E+08*	24,1%	21%

Figure VI-9. Comparaison de spectres à froid pour N2 et O2.

Grâce à l'aire du signal Raman de CO dans le plasma, l'aire du signal observé sur le N_2 à 300K, et l'équation (IV-4) nous pouvons remonter à la densité de CO fondamental, que l'on suppose quasiment équivalente à la densité totale de CO. Nous pouvons remonter ainsi à la fraction molaire de gaz total en CO.

VI.1.4. Résultats, premières remarques et discussions

Les résultats de des calculs et ceux de la sous-section précédente sont résumés dans les Tableaux Tableau VI-14 et Tableau VI-15.

Pression (Pa)	*6000*									
Position	**H (MJ/kg)**	**SNR**	**Trot (K)**	**Tvib (K)**	**ΔT (K)**	**n_{CO} (m^{-3})**	**Δn = n/SNR (m^{-3})**	**X : Fraction molaire**	**ΔX**	**(%)**
Amont -1,5 cm	4	2,67	2000	3000	546	1,8E+22	6,8E+21	0,08	0,03	38%
	5	1,50	2000	3300	1000	1,5E+22	1,0E+22	0,07	0,05	67%
	7	1,53	2000	4800	989	1,1E+22	7,2E+21	0,05	0,03	65%
	9	1,50	2000	6000	1000	9,2E+21	6,1E+21	0,04	0,03	67%
Centre 0 cm	4	8,57	2900	3000	90	1,0E+23	1,2E+22	0,68	0,08	12%
	5	7,14	2800	3300	120	8,4E+22	1,2E+22	0,56	0,08	14%
	7	5,71	2700	4000	171	6,4E+22	1,1E+22	0,39	0,07	18%
	9	4,29	3000	4500	269	5,0E+22	1,2E+22	0,33	0,08	23%
Aval +2 cm	4	5,71	2600	3100	171	9,8E+22	1,7E+22	0,36	0,06	18%
	5	5,00	2900	3400	211	5,8E+22	1,2E+22	0,39	0,08	20%
	7	4,00	3000	3900	300	5,2E+22	1,3E+22	0,35	0,09	25%
	9	3,43	2800	4500	380	4,0E+22	1,2E+22	0,25	0,07	29%
Radial +2 cm	4									
	5	4,38	2000	3000	261	4,8E+22	1,1E+22	0,22	0,05	23%
	7	4,38	2000	3300	261	4,6E+22	1,1E+22	0,21	0,05	23%
	9	3,75	2000	3800	331	3,7E+22	9,9E+21	0,17	0,05	27%

Tableau VI-14. Résumé des résultats de spectroscopie Raman pour P = 6000 Pa.

Un premier résultat concerne les températures de CO. Si les températures de rotation sont peu sensibles à l'enthalpie spécifique, la température de vibration en revanche y sont plus sensibles et croissent avec l'enthalpie. Dans les cas de différences visibles entre les deux températures, cela laisse supposer que l'excitation par impact électronique dans la zone de création, qui favorise l'excitation vibrationnelle, n'a pas été totalement relaxée via les collisions entre lourds.

Nous notons que les gradients longitudinaux de températures semblent coller à l'intuition d'un fluide qui se relaxe. J'ai en revanche plus de mal à émettre une hypothèse expliquant la différence de gradient radial de température entre la rotation et la vibration.

Concernant les densités de CO, celles–ci diminuent avec l'enthalpie ; il est alors intéressant de mettre ceci en rapport avec la spectroscopie d'émission illustrant une augmentation des raies atomiques (C,O) et des bandes C_2 Swan avec l'enthalpie (Annexe B), ainsi que l'aspect visuel du plasma laissant supposer que le « dard » du plasma s'étend plus loin lorsque l'enthalpie augmente.

Les gradients longitudinaux de densités de CO, croissants puis décroissants, pourraient être expliqués par une forte densité d'espèces atomiques et C_2 en amont, puis lors de la relaxation, création de CO (menant à une augmentation de la densité) et enfin

recombinaison dudit CO en CO_2 (réduction de la densité). Le gradient radial de densité de CO est à mettre en relief avec les températures déséquilibrées sur la position radiale. La densité de CO plus importante sur l'axe qu'en dehors peut par ainsi s'expliquer par le fait que le plasma est encore déséquilibré en périphérie, et comporte probablement plus d'espèces primaires qu'au centre.

Tous ces résultats préliminaires peuvent être renforcés par les mesures de thermométrie et de densités de O par TALIF.

Pression (Pa)	***9000***										
Position	**H (MJ/kg)**	**SNR**	**Trot (K)**	**Tvib (K)**	**ΔT (K)**	**(%)**	**n_{CO} (m^{-3})**	**Δn = n/SNR (m^{-3})**	**X : Fraction molaire**	**ΔX**	**(%)**
Amont -1,5 cm	4										
	5										
	7										
	9										
Centre 0 cm	4	5,00	2800	3100	211	7%	7,7E+22	1,5E+22	0,33	0,07	20%
	5	4,75	2800	4200	229	7%	6,5E+22	1,4E+22	0,28	0,06	21%
	7	3,60	2800	4800	353	9%	5,8E+22	1,6E+22	0,25	0,07	28%
	9	3,00	2300	6000	462	11%	5,0E+22	1,7E+22	0,17	0,06	33%
Aval +2 cm	4	9,00	2500	2800	83	3%	1,6E+23	1,8E+22	0,62	0,07	11%
	5	8,33	2400	3500	94	3%	1,0E+22	1,2E+21	0,38	0,05	12%
	7	5,33	2500	4200	191	6%	7,4E+22	1,4E+22	0,28	0,05	19%
	9	3,50	2300	5500	368	9%	2,3E+22	6,6E+21	0,19	0,05	29%
Radial +2 cm	4	5,78	2000	2900	168	0,1	1,0E+23	1,7E+22	0,314	0,05	17%
	5	5,75	2000	3500	169	6%	8,4E+22	1,5E+22	0,26	0,05	17%
	7	5,71	2000	3500	171	6%	7,8E+22	1,4E+22	0,024	0,00	18%
	9	5,50	2000	4000	182	6%	7,2E+22	1,3E+22	0,22	0,04	18%

Tableau VI-15. Résumé des résultats de spectroscopie Raman pour P = 9000 Pa.

VI.2. TALIF

VI.2.1. Acquisition des signaux, étalonnage Xenon

Les spectres TALIF ont été acquis dans deux positions de mesure « Centre » et « Aval », pour des pressions de 6 et 9 kPa ainsi que les 4 conditions d'enthalpie de 4, 5, 7 et 9 kPa, à l'exception du couple (6 kPa - 4 MJ/kg) car la veine rencontrait un problème d'extinction systématique du plasma lors de l'ensemble de la campagne TALIF.

Pour les balayages temporels, les images de TALIF ont été acquises sur une fenêtre de 5 ns, avec un balayage dense autour des premiers instants pour capturer la croissance initiale et la décroissance de la fluorescence, donnant ainsi 50 points à acquérir.

Suite à cela nous obtenons l'évolution temporelle du signal de TALIF comme illustré dans le chapitre 5 (Figure V-17, rappelée dans ce chapitre avec la Figure VI-10).

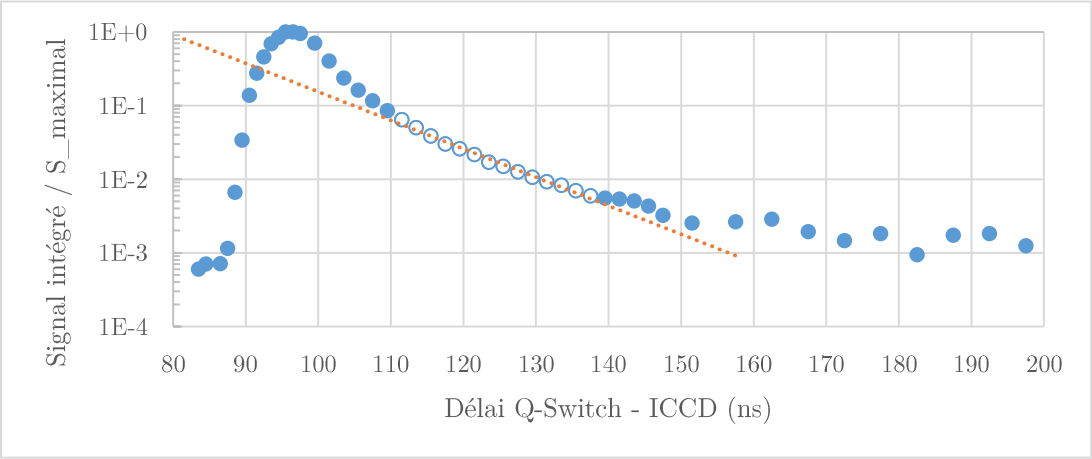


Figure VI-10. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée pour la position centrale avec p = 6,4 kPa et H = 7 MJ/kg.

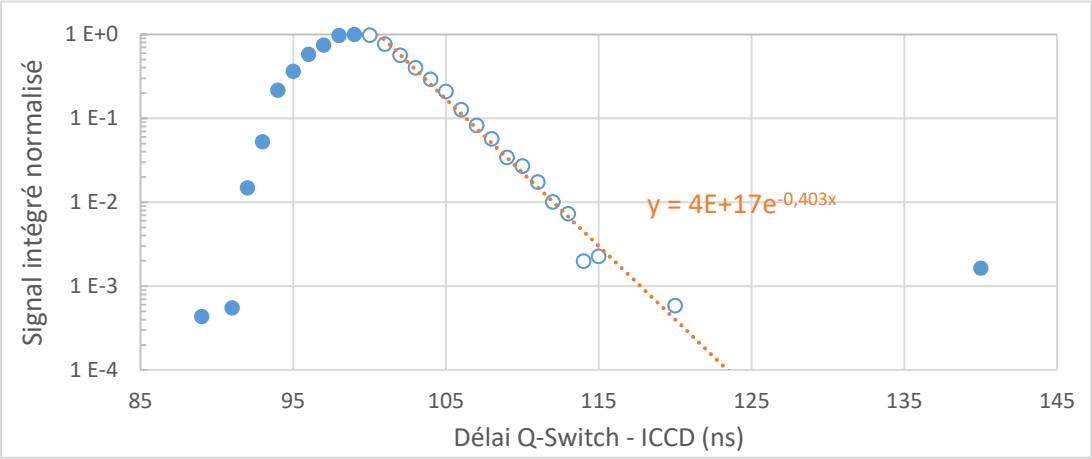


Figure VI-11. Décroissance temporelle de la fluorescence (largeur de la porte : 5 ns) sur une bande de hauteur donnée pour la position centrale avec p = 9 kPa et H = 4 MJ/kg.

Grâce à ce balayage temporel, nous faisons le choix pour l'acquisition des spectres d'excitation d'une fenêtre d'accumulation par image de 110 ns pour capturer l'ensemble du signal de fluorescence et maximiser la quantité de signal capturé. Le temps d'acquisition total a été fixé à une seconde pour une fréquence d'accumulation de 10 Hz. La grille de balayage en longueur d'onde a été choisie de sorte à disposer d'un domaine de largeur suffisante pour obtenir la chute complète des ailes du spectre d'excitation tout

en s'assurant que la dynamique de la raie d'excitation soit capturée, menant selon les transitions à l'acquisition de 65 à 80 points.

Des procédures identiques ont été répétées lors de l'étalonnage au xénon.

VI.2.2. Thermométrie de O (collaboration M. Lesage)

Cette partie comporte notamment trois aspects – automatisation de l'extraction des spectres, modélisation état-par-état pour la simulation des spectres, et détermination des températures – dont les efforts de développement sous Python, de détermination des modèles sont à mettre au crédit de Morgan Lesage [69] et ont été l'un des objets de son stage de Master. Nous avons eu de longues discussions sur les modèles choisis (nombre d'états pris en compte), les sections efficaces (par exemple concernant les abus de langage autour du produit $G^{(2)}\,\sigma^{(2)}$ parfois désigné comme la section efficace), ou d'autres paramètres pour s'assurer de la tangibilité des modèles. M.Lesage a également pris part à l'utilisation de ses codes pour extraire une partie des températures et des densités disponibles.

De premiers spectres intégrés sur l'ensemble de la hauteur du capteur sont illustrés en Figure VI-12. La modélisation des composantes de transition $2p^3P_J \rightarrow 3p^3P_{J'}$ est essentielle pour obtenir chaque spectre modélisé. Nous prenons alors en compte les sections efficaces relatives des transitions illustrées en Tableau VI-16. Le modèle pour chaque composante est une fonction de Voigt issue de la convolution de la gaussienne modélisant l'élargissement Doppler thermique et d'une lorentzienne représentant la fonction doublée d'élargissement spectral du laser.

La Figure VI-12 illustre la forme des spectres d'excitation des premières acquisitions, avec une grille d'échantillonnage peu définie et intégré sur la hauteur du capteur. Cela permet d'accéder à la forme moyenne des spectres sur la zone de mesure et de donner une première estimation des températures, et de comparer ces valeurs avec les mesures Raman qui sont également intégrées sur la zone de mesure. Nous avons ici, pour H = 7 MJ/kg et p = 6000 Pa, une estimation de température de 3200 K pour deux des spectres et 4000 K pour le spectre de l'excitation depuis le niveau $2p^3P_1$. La largeur des spectres simulés étant très sensible à la température, et le rapport signal / bruit étant de 20, nous obtenons une certaine assurance sur cette première évaluation, à ±50 K.

Niveau de départ→ ↓ Niveau d'arrivée	$2p^3P_0$	$2p^3P_1$	$2p^3P_2$
$3p^3P_0$	0,561	0 (interdite)	0,088
$3p^3P_1$	0 (interdite)	0,671	0,198
$3p^3P_2$	0,439	0,329	0,714

Tableau VI-16. Sections efficaces relatives des transitions TALIF pour O. [70]

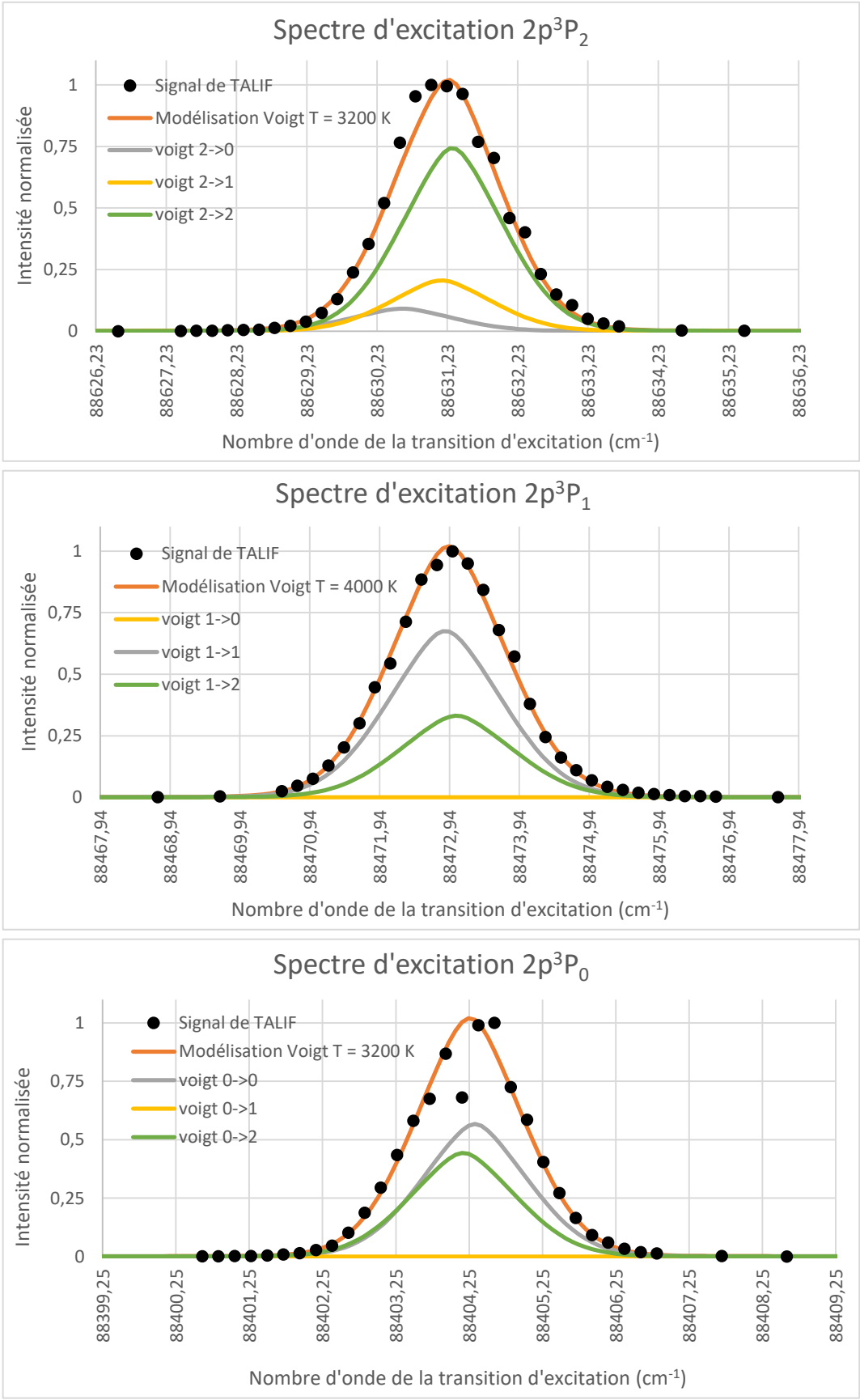


Figure VI-12. Spectres d'excitations intégrés sur la zone de mesure, en position centrale, pour H = 7 MJ/kg et p = 6000 Pa.

En revanche, nous travaillerons par la suite sur des spectres intégrés sur un certain nombre de lignes, définissant ainsi un ensemble de spectres distingués par leur position le long du trajet du laser d'excitation (rappelons qu'il est dirigé verticalement et vers le bas). Cette position spatiale est exprimable également par une distance relative à l'axe du plasma. Cette modélisation a été appliquée de manière automatisée sous Python pour les autres points de fonctionnement et en décomposant les images brutes en 64 zones de hauteur 16 pixels, représentant une hauteur relativement à l'axe plasma. Ces résultats sont résumés en Figure VI-13 et Figure VI-14.

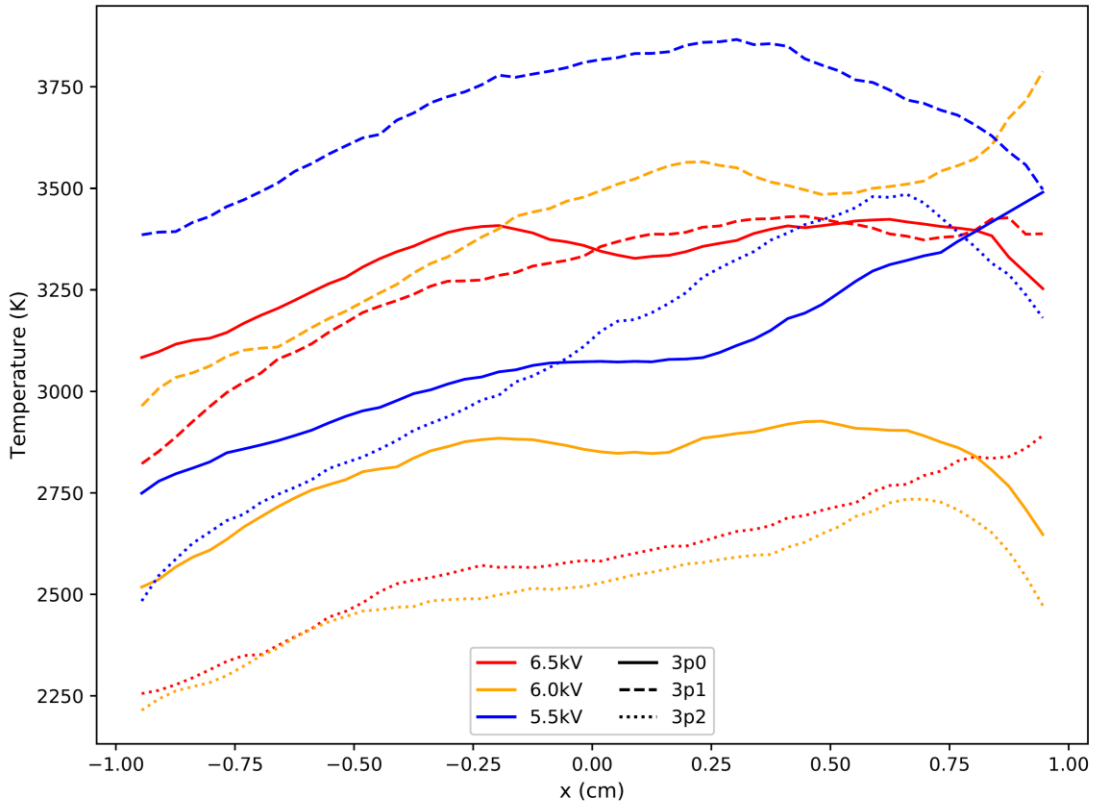


Figure VI-13. Evolution des températures de O [2p³P₁] avec la hauteur relative à l'axe du plasma pour les 3 points de fonctionnement en enthalpie et p = 6 kPa en position centrale. [69]

Les températures de O estimées à la pression de 6 kPa sont en bon accord avec les températures de rotation du CO résumées précédemment, ce qui n'entre pas en contradiction avec l'utilisation d'un modèle « 2 températures » pour le calcul du spectre Raman. En revanche cette situation ne se retrouve pas à 9000 Pa, probablement à cause des estimations de températures sur les spectres Raman qui manquent de précision.

A 9000 Pa, on remarque que les courbes d'une même couleur sont plus groupées, c'est-à-dire que les estimations de températures des 3 sous-niveaux du fondamental sont plus proches les unes des autres pour une même enthalpie lorsque la pression est plus élevée, laissant penser à une relaxation collisionnelle plus efficace à une telle pression.

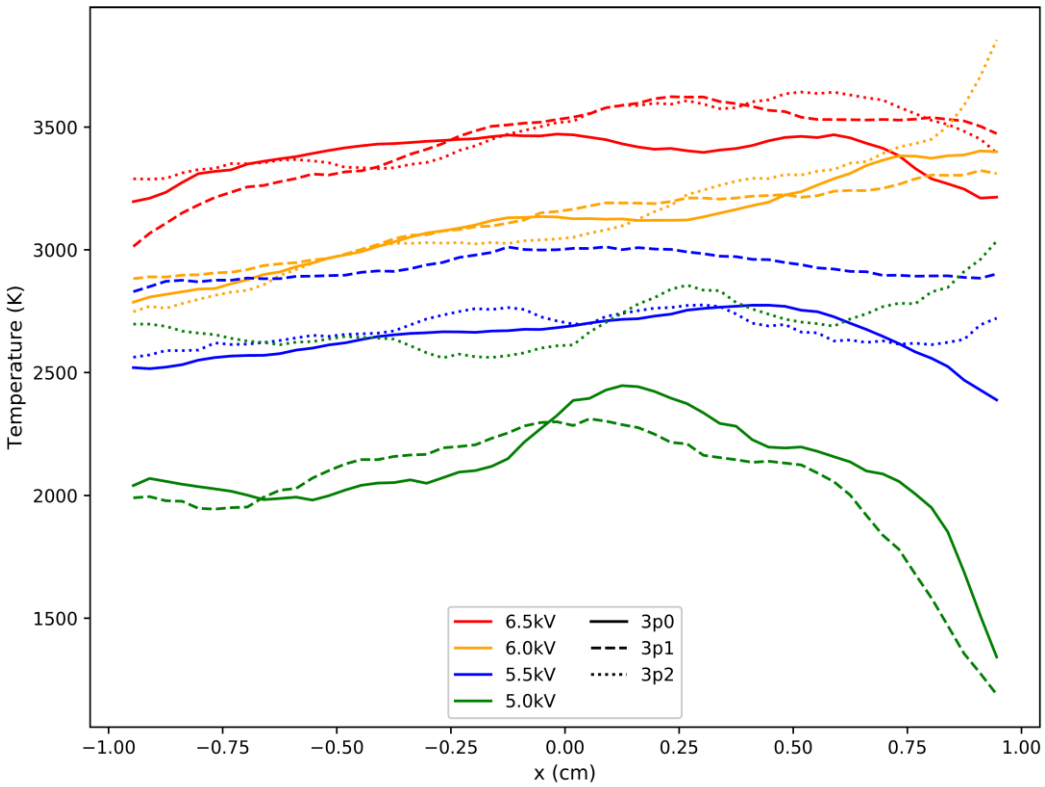


Figure VI-14. Evolution des températures de O [2p³P₂] avec la hauteur relative à l'axe du plasma pour les 4 points de fonctionnement en enthalpie et p = 9 kPa en position centrale. [69]

VI.2.3. Densité de O, fraction molaire

Le développement du modèle de bilan état-par-état des densités à la fois pour le xénon et l'oxygène est en cours de développement et s'est révélé plus complexe que prévu. Cela s'est notamment remarqué sur les images captées par la caméra lors des balayages TALIF (Figure VI-15). De premiers modèles menaient à une estimation erronée des densités d'oxygène de l'ordre de deux à trois fois la densité totale en particules. Actuellement un modèle à 7 niveaux pour l'oxygène est toujours utilisé, mais le modèle pour le xénon atteint actuellement 14 niveaux et doit être complété par les valeurs de quenching état-par-état. L'émission spontanée amplifiée (ASE) est ignorée mais devra probalement être modélisée ; en effet la forme initiale de la décroissance temporelle du signal de fluorescence (Figure VI-10) entre 100 et 114 ns laisse à suggérer que l'excitation du laser a mené à une excitation éxégérée du xénon permettant au à celui-ci d'agir comme un amplificateur pour la fluorescence émise.

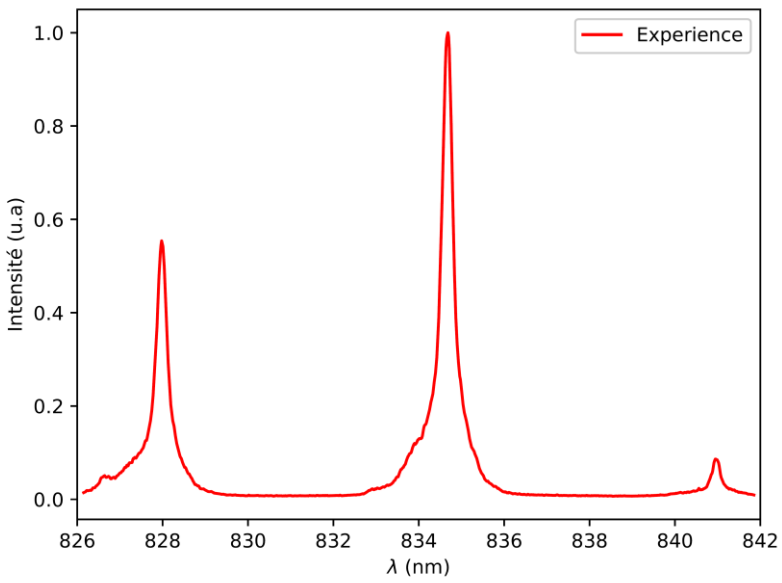


Figure VI-15. Exemple de spectre émis par le xénon (intégré sur la hauteur du capteur) lors des acquisitions à p = 6 kPa. [69]

Une autre possibilité consiste à ne considérer que la partie centrale du capteur pour simplifier le modèle de branchement après excitation.

Les processus de désexcitation collisionnelle de O étant pilotés par les densités des autres composants ainsi que la sienne, le problème nécessite que l'on pose une densité arbitraire pour les inconnues et que l'on utilise les densités de CO mesurées par la spectroscopie Raman. On implante ensuite la valeur de la densité de O calculée dans une nouvelle boucle de calcul pour converger vers une solution. La Figure VI-16 montre un exemple de calcul des densités de $O(2p^3P_J)$ et en illustre l'évolution le long de la hauteur du capteur CCD, qui équivaut à une hauteur dans le plasma centrée sur l'axe de symétrie de 22 mm de haut. La densité connaît une vairation de moins de 5 % entre le centre et le bord de l'image, et le rapport des densités des sous-niveaux du fondamental est bien piloté par leurs dégénerescences repsectives (g(J=2) = 5, g(J=1) = 3, g(J=0) = 1).

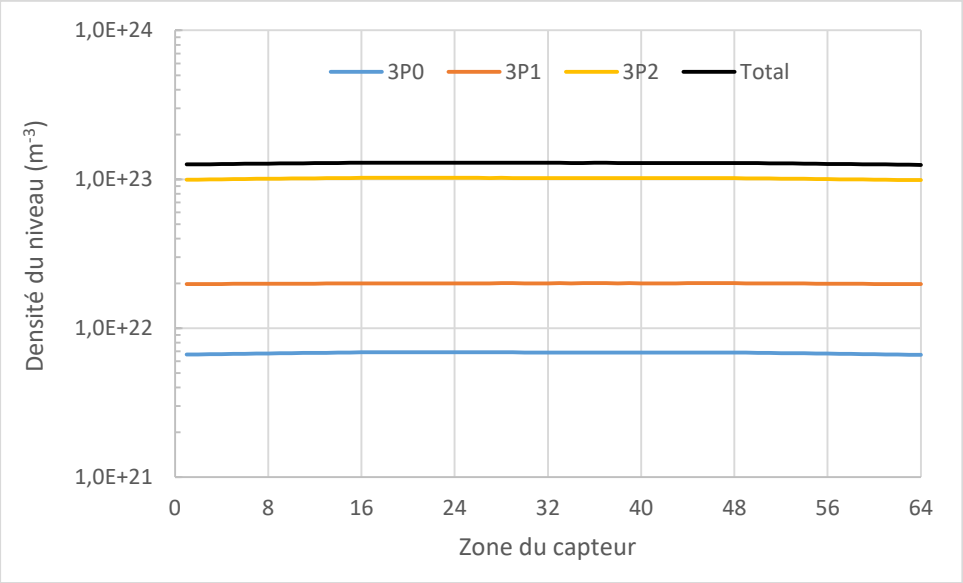


Figure VI-16. Evolution des densités le long du trajet du laser d'excitation de $O(2p^3P_J)$ pour p = 6 kPa et H = 5 MJ/kg.

P (kPa)	H (MJ/kg)	3p0	3p1	3p2	Total
6	4				
	5	6,878 E+21	2,004 E+22	1,020 E+23	1,289 E+23
	7	6,866 E+21	1,899 E+22	1,014 E+23	1,273 E+23
	9	6,456 E+21	1,839 E+22	1,035 E+23	1,284 E+23
9	4	6,594 E+21	1,954 E+22	1,181 E+23	1,443 E+23
	5	6,565E+21	1,932 E+22	1,171 E+23	1,430 E+23
	7	6,530 E+21	1,916 E+22	1,164 E+23	1,421 E+23
	9	6,527 E+21	1,913 E+22	8,965 E+22	1,153 E+23

(extinction plasma)

Tableau VI-17. Résumé des densités de O au centre du capteur et pour tous les points de fonctionnement centraux.

La seconde chose qui saute aux yeux au regard de la Figure VI-16 et du Tableau VI-17, c'est que la densité en oxygène estimée est très importante, jusqu'à composer une part largement majoritaire du mélange, indifféremment dans tous les points de fonctionnement. Cela est incompatible avec la densité de CO mesurée par la spectroscopie Raman, dont le taux d'erreur est estimé à 10 %, mais uniquement à la pression de 6 kPa. Cela laisse à penser qu'il faut affiner les paramètres des modèles pour le calcul des densités de l'oxygène.

En parallèle du développement de cette méthode de densitométrie, il est possible de déduire de la pente de la décroissance τ sur la Figure VI-10 une valeur de désexcitation

collisionnelle globale Q dans le plasma. Dans cette figure, la droite descend de deux décades en 50 ns, donc $\tau = 10$ ns. Or, ici $\tau = \frac{1}{A+Q}$. Sachant que $A = 2{,}89.10^7\ s^{-1}$ [71], cela nous donne une valeur de Q de $6{,}5.10^7\ s^{-1}$.

En supposant, en première hypothèse, que les densités des autres composés sont négligeables devant celles de CO_2, CO et O, nous pouvons poser

$$Q = k_{O-O}\,[O] + k_{O-CO}\,[CO] + k_{O-CO_2}\,[CO_2].$$

En s'appuyant sur la littérature [72] [73], nous avons :

$$k_{O-O} = 8{,}2.10^{-11}\ cm^3 s^{-1}$$
$$k_{O-CO} = 4{,}9.10^{-10}\ cm^3 s^{-1}$$
$$k_{O-CO_2} = 6{,}6.10^{-10}\ cm^3 s^{-1}$$

Nous partons d'une injection de CO_2 pur, donc au regard de l'hypothèse précédente le bilan de matière nous force à supposer que $[O] = [CO]$.

En partant de la valeur de $[CO] = 6{,}4.10^{22}\ m^{-3}$ issue de la spectroscopie Raman, nous pouvons déduire une valeur de concentration de CO_2 :

$$[CO_2] = \frac{Q - k_{O-O}\,[O] - k_{O-CO}\,[CO]}{k_{O-CO_2}}$$
$$[CO_2] = 5{,}23.10^{22}\ m^{-3}$$

Ce qui donnerait un taux de dissociation CO/CO_2 proche de 3.

Faisons désormais la somme de ces densités :

$$[O] + [CO] + [CO_2] = 1{,}80.10^{23}\ m^{-3}$$

La densité totale dans les conditions de la Figure VI-10 (p = 6400 Pa, T = 3000K) est de $1{,}55.10^{23}\ m^{-3}$. Nous rencontrons ainsi une contradiction avec la somme des densités calculées par le modèle. Différentes valeurs de k pour O sont disponibles dans la littérature [72] [73], mais le résultat sur les densités est sensiblement le même (la somme varie de $1{,}80.10^{23}$ à $1{,}82.10^{23}\ m^{-3}$).

Il est donc nécessaire d'étoffer les hypothèses du modèle. Nous résumons le modèle et un résultat type qui en découle dans le Tableau VI-18. Ce modèle-ci semble plus satisfaisant : la somme des densités des espèces supposées majoritaires n'excède pas la densité totale puisque c'est une condition imposée. Les fractions molaires estimées sont proches des valeurs à l'équilibre calculées par le code CEA de la NASA, excepté pour le CO_2.

Il est important ici de remarquer que ce raisonnement n'est en rien une validation des résultats de densités des espèces considérées, mais seulement une manière d'affirmer que ces hypothèses sont plausibles et donner des pistes de suggestion de valeurs de densités pour afffiner le modèle état-par-état de l'oxygène. Cela permet, en cas de validation, d'estimer également les densités de CO_2, ce qui est un bonus non négligeable dans la compréhension de la composition du plasma et le calcul du rayonnement infrarouge lors de la recombinaison, tant pour la reconstruction des signaux ICOTOM que pour l'analyse des plasmas produits dans SOUPLIN.

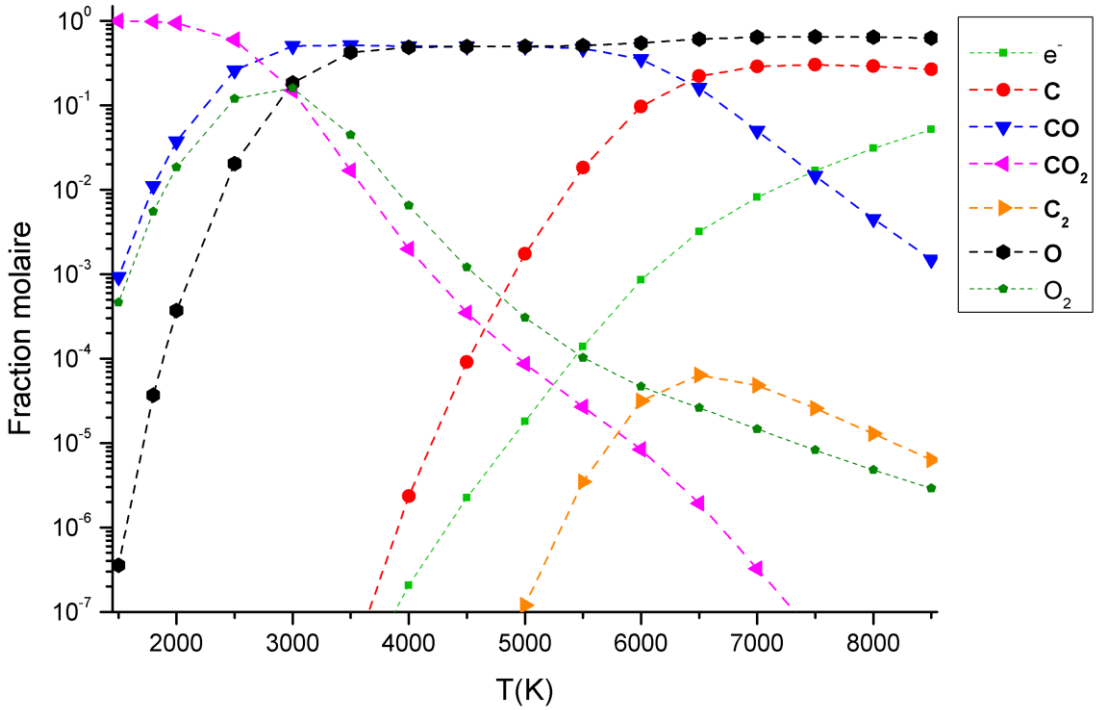


Figure VI-17. Calcul 0D à l'équilibre des densités au sein d'un plasma de CO_2 à p = 6 kPa [28] effectué avec le code CEA. [39]

Modèle 3 équations 3 inconnues
(4 composés majoritaires : CO_2, CO, O, O_2)
Données : pression, températures CO (Raman) & O (TALIF), densité de CO (Raman)
Equations : Q, pression totale et bilan de masse

$$Q = k_{O-O}[O] + k_{O-CO}[CO] + k_{O-CO_2}[CO_2]$$
$$\frac{p}{k_B T} = [O] + [CO] + [CO_2] + [O_2]$$
$$[CO] = [O] + 2[O_2]$$

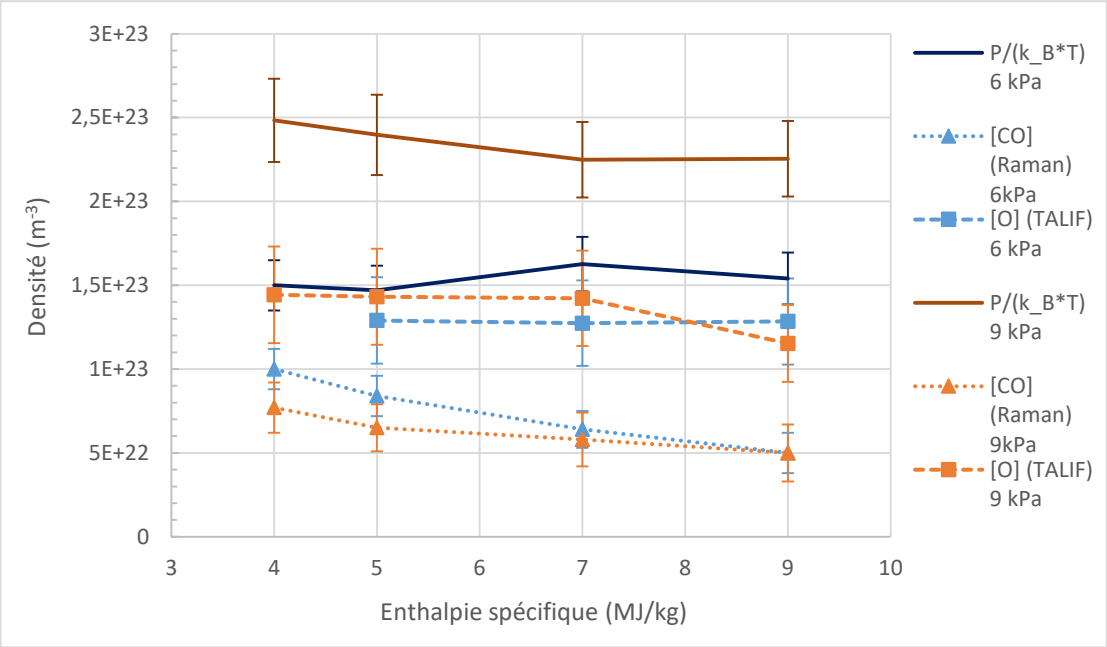
Résultats :

Densités		**Frac. mol. X**
[CO]	6,40E+22 m^{-3}	41,4%
[O]	3,28E+22 m^{-3}	21,2%
[CO_2]	4,22E+22 m^{-3}	27,3%
[O_2]	1,56E+22 m^{-3}	10,1%
Sommes de contrôle	**1,55E+23 m^{-3}**	100,0%

Tableau VI-18. Résumé du modèle d'estimation des densités complémentaires à CO et O et illustration de résultats pour p = 6400 Pa et H = 7MJ/kg.

VI.3. Compilation des résultats et discussion

Les Figures Figure VI-18 et Figure VI-19 permettent une comparaison directe des densités et des températures pour les deux espèces sondées sur la position « centrale » pour les points de fonctionnement testés.



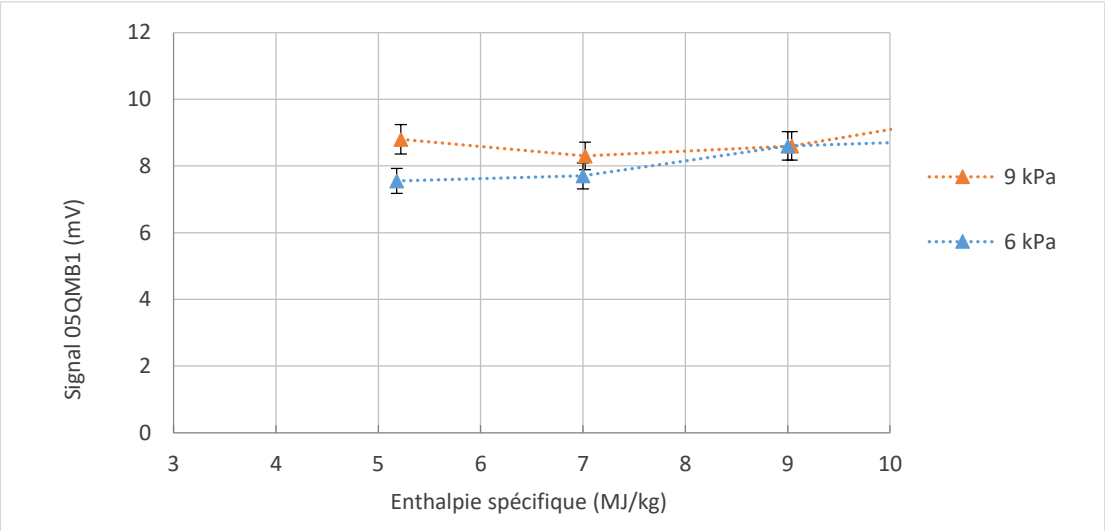


Figure VI-18. Evolution des densités des niveaux fondamentaux de CO et O avec l'enthalpie spécifique en position centrale ; p = 6 & 9 kPa ; comparaison avec les signaux ICOTOM dans les mêmes conditions sur la partie basse.

Cencernant les densités, plusieurs observations peuvent être faites. On retrouve la possible surestimation de la densité d'oxygène à 6 kPa. En revanche, un comportement intéressant est visible lorsque l'on compare les signaux des ICOTOM B1 (sensibles,

rappelons-le, à l'émission infrarouge de CO et CO_2) avec la densité mesurée de CO : l'influence de l'enthalpie y est très faible, et compte tenu des marges d'erreur, on y voit un comportement très similaire. Il parait ainsi intéressant de développer le calcul des densités de CO_2 avec le modèle précédent pour avoir une possibilité de comparaison rapide entre signal ICOTOM et densités combinées de CO et CO_2. Le résultat apparaît dans le Tableau VI-19. Nous observons alors deux comportements bien différents : à 6000 Pa, la monotonie du signal B1 est cohérente avec celle de la somme des densités de CO et CO_2. En revanche, le modèle donne des densités absurdes pour p = 9000 Pa, le modèle ne semble donc pas robuste lorsque Q devient trop élevé, il peut être nécessaire de prendre en compte d'autres composés avant de décomposer le calcul. En revanche piloter $[O_2]$ à zéro pour revenir à modèle piloté par la pression et la température ainsi que l'hypothèse [CO]=[O] permet de revenir à des densités qui ont un sens, et de retrouver un régime monotone pour [CO]+[CO2], proche de celui du signal B1. Il sera nécessaire soit d'améliorer les modèles état-par-état, soit la valeur de certains paramètres d'entrée (répartition des densités de population) pour que le calcul soit plus précis.

P (kPa)	T (K)	p/kt (m^{-3})	[CO] (Raman)	[O]	$[CO_2]$	$[O_2]$	$[CO]+[CO_2]$
6	2700	1,718E+23	1,00E+23	4,08E+22	1,35E+21	2,96E+22	1,01E+23
	2958	1,470E+23	8,40E+22	1,78E+22	1,21E+22	3,31E+22	9,61E+22
	2674	1,626E+23	6,40E+22	4,19E+22	4,57E+22	1,11E+22	1,10E+23
	2823	1,540E+23	5,00E+22	3,66E+22	6,07E+22	6,69E+21	1,11E+23
9	2626	2,483E+23	7,70E+22	-4,36E+23	3,51E+23	2,56E+23	4,28E+23
	2720	2,397E+23	6,50E+22	-4,42E+23	3,63E+23	2,53E+23	4,28E+23
	2900	2,249E+23	5,80E+22	-4,56E+23	3,66E+23	2,57E+23	4,24E+23
	2893	2,254E+23	5,00E+22	-4,53E+23	3,77E+23	2,52E+23	4,27E+23

Tableau VI-19. Estimation des densités complémentaires à CO et O.

P (kPa)	T (K)	p/kt (m^{-3})	[CO] (Raman)	[O]	$[CO_2]$	$[O_2]$	$[CO]+[CO_2]$
9	2626	2,483E+23	7,70E+22	7,70E+22	9,43E+22	0,00E+00	1,71E+23
	2720	2,397E+23	6,50E+22	6,50E+22	1,10E+23	0,00E+00	1,75E+23
	2900	2,249E+23	5,80E+22	5,80E+22	1,09E+23	0,00E+00	1,67E+23
	2893	2,254E+23	5,00E+22	5,00E+22	1,25E+23	0,00E+00	1,75E+23

Tableau VI-20. Estimation des densités complémentaires à CO et O en forçant $[O_2]$ à 0.

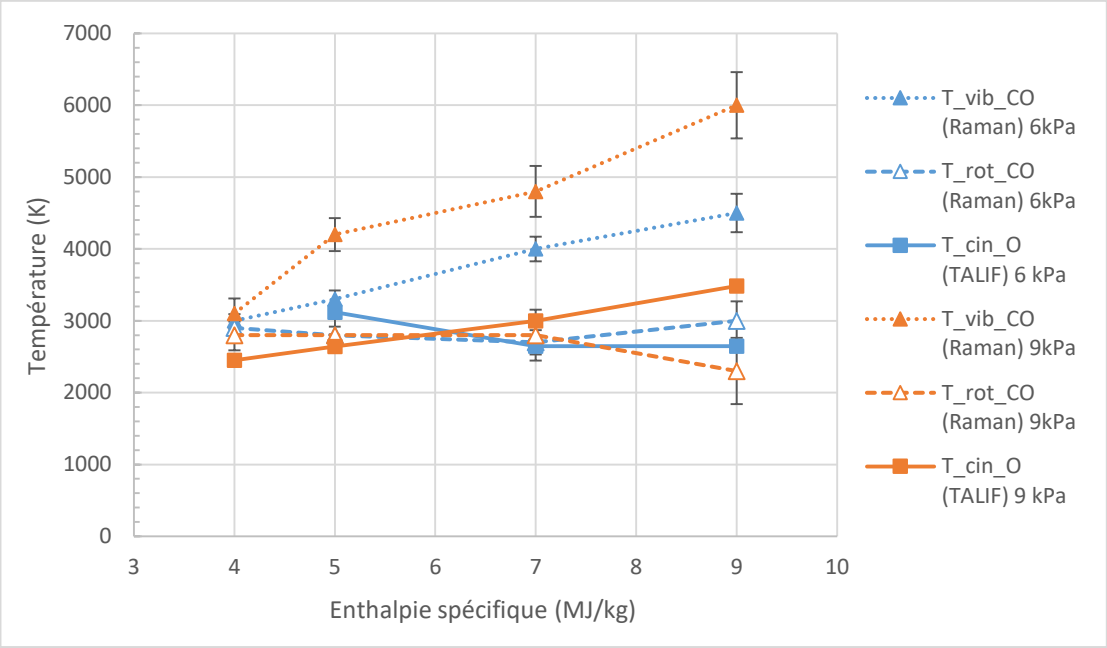


Figure VI-19. Evolution des températures de CO et O avec l'enthalpie spécifique en position centrale ; p = 6 & 9 kPa.

La comparaison des températures entre elles, illustrée en Figure VI-19, est très intéressante : là où ces températures sont sont toutes extrêmement proches les unes des autres à faible enthalpie, l'augmentation de l'enthalpie engendre un écartement desdites températures les unes des autres. On peut s'y attendre en supposant qu'augmenter l'excitation peut favoriser le déséquilibre plasma, et ainsi, lors de la détente, retarder le retour à l'équilibre, en temps de parcours du fluide donc en position spatiale. Notons l'importance des marges d'erreur grandissantes sur les températures de CO avec l'enthalpie, qui sont dues à la concommittance de la baisse de la densité et de l'étalement thermique du spectre qui réduisent le rapport signal sur bruit.

Tests Mélanges CO_2-N_2-Ar

Nous avons également testé la sensibilité des mesures TALIF et Raman à l'injection de diazote et d'argon. Pour cela trois mélanges ont été comparés sur un point de fonctionnement à un mélange témoin de CO_2 pur dont les proportions massiques sont données ci-dessous :

1) 95% CO_2 – 5,0% N_2 – 0,0% Ar ;
2) 95% CO_2 – 2,5% N_2 – 2,5% Ar ;
3) 95% CO_2 – 0,0% N_2 – 5,0% Ar .

Concernant la spectroscopie Raman, des mesures sur le point de fonctionnement p = 9 kPa – h = 5.5 MJ/kg (sélectionné pour son meilleur rapport signal/ bruit) ne révèle aucune modification du spectre résultant, tant en forme qu'en intensité.

Concernant la TALIF de O, des mesures ont été effectuées sur le point de fonctionnement p = 9 kPa – h = 9 MJ/kg et permettent d'obtenir les spectres d'excitation illustrés en Figure VI-20.

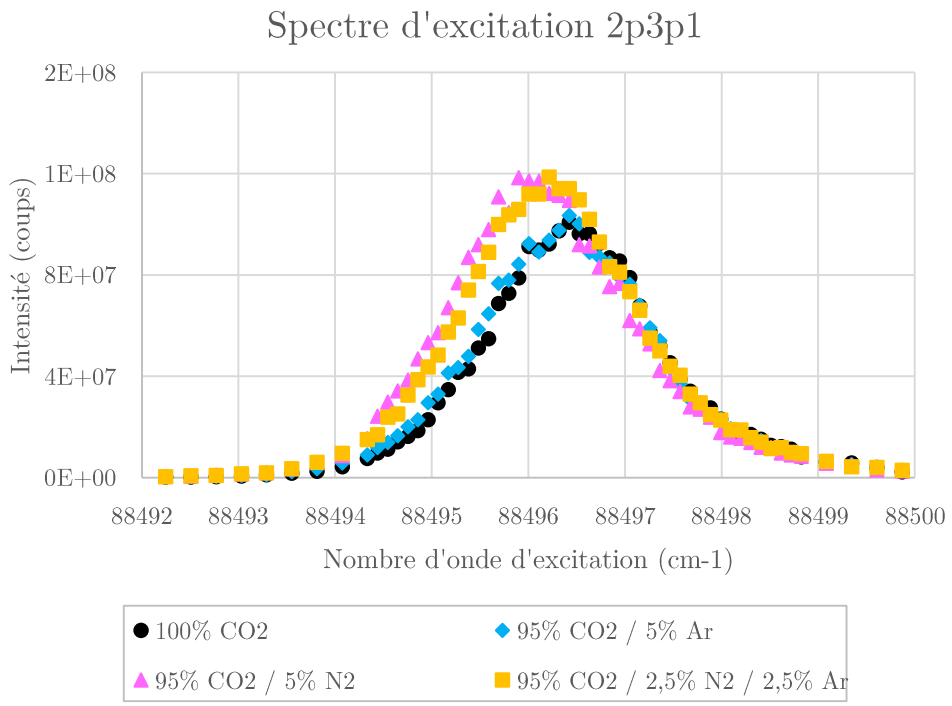


Figure VI-20. Influence de la dilution du CO_2 par une fraction de N_2 et/ou d'Ar sur un spectre d'excitation TALIF pour p = 9 kPa et h = 9 MJ/kg.

Nous observons ainsi un décalage inexpliqué du spectre suite à l'ajout de N2 ainsi qu'on élargissement, entraînant une mesure de température de O en augmentation, passant de 2000K à 2300K. En revanche les déductions sur la densité de O semblent peu sensibles à la dilution, comme illustré dans le Tableau VI-21.

3p1 pur	**3p1 2.5%N2-2.5%Ar**	**3p1 5%Ar**	**3p1 5%N2**
1,6238E+22	1,6216E+22	1,6225E+22	1,6213E+22

Tableau VI-21. Sections efficaces relatives des transitions TALIF pour O. [70]

Conclusion

Durant cette thèse, la détente d'un jet libre de plasma de CO_2 pur a été étudiée afin de permettre de quantifier les densités et les températures des espèces en présence lors de la recombinaison de CO_2 et leur rôle dans l'émission infrarouge propre à la réaction-type $CO + O \rightarrow CO_2^*$. Cette émission étant source de dégâts importants sur l'arrière-corps d'un engin spatial pénétrant dans l'atmosphère martienne, des radiomètres infrarouges ICOTOM avaient été développés par le CNES pour quantifier le rayonnement propre à CO et CO_2 qui parvenait sur le bouclier arrière du module Schiaparelli.

Pour cela, les radiomètres ont été calibrés devant un corps noir géométrique afin de permettre de déduire directement la densité de flux radiative parvenant en direction des capteurs. Ils ont ensuite été places en situation de plasma de laboratoire afin de caractériser la possibilité d'obtenir des informations sur les densités de CO et CO_2 en vol. Ces résultats ont été comparés avec ceux du DLR et de l'Institut Pascal, et transmis au CNES dans le cadre de leur collaboration avec le DLR.

Pour déterminer la situation du plasma observé par les ICOTOM, nous avons abordé plusieurs techniques de mesures de températures et de densités, grâce à la technique VENOM, basée sur la déformation d'une grille de fluorescence par l'écoulement, la spectroscopie Raman du CO et la TALIF sur O. La technique VENOM avait pour objectif de permettre d'apporter des éléments de réponse sur l'écoulement en vue d'une simulation Navier-Stokes de l'écoulement ; la spectroscopie Raman sur CO permettait d'être un complément de l'étude du système CO(4+) par Noémie Brémare [28] sur cette installation, en déterminant la densité du fondamental de CO et donc approcher la densité totale de CO. De même, la TALIF est également un complément de la mesure de spectroscopie d'émission accomplie par N.Brémare et permet de caractériser la densité totale de O ainsi que sa température. Ces données sont essentielles à la simulation de la chimie et du rayonnement du plasma.

La technique VENOM, si elle s'annonçait intéressante en combustion, s'est révélée inefficace devant un plasma en raison de la forte présence de NO déjà excité et de la faible détectabilité du NO excité par le laser.

Concernant la spectroscopie Raman, il a été démontré que le signal était détectable et observable et permet dans certaines conditions de fonctionnement d'avoir de bonnes estimations des températures de rotation et de vibration de CO entre 3000 et 5000K, ainsi que de la densité de son niveau fondamental, avec des précisions de 5 à 10% sur les températures et 10 à 20% les densités pour les points les plus favorables. En revanche, des conditions trop extrêmes d'enthalpie provoquent une trop faible quantité de signal malgré de longues accumulations sur 20 minutes, entraînant une chute drastique du rapport signal/bruit et provoquant des estimations peu précises (±30% sur les températures et ±40% sur les densités). Il est néanmoins possible d'améliorer le signal en

disposant d'accès optiques plus importants, ou en excitant le CO grâce à un laser UV, en s'arrangeant de ne pas voir ni le laser ni le rayonnement issu de la diffusion Raman être absorbés par le plasma, et en assemblant un montage de collection privé d'air.

L'étude de la fluorescence induite par l'absorption à deux photons sur O dispose de beaucoup plus de rapidité pour l'acquisition d'un signal. Les estimations de températures sur O permettent, en comparaison avec le Raman de déterminer l'état du plasma en termes d'équilibre des températures. En l'occurrence les points de faible enthalpie (4MJ/kg) voit la température cinétique de O concorder avec la température de rotation de CO, mais ces températures divergent ensuite à plus haute enthalpie. La température de vibration de CO augmentant fortement avec l'excitation, il semble que l'excitation électronique n'est pas totalement relaxée par les collisions entre les lourds. En cela les résultats de Raman dans la position amont rejoignent certaines mesures de température de N.Brémare, avec une zone de 70mm après la sortie de torche qui n'est pas à l'équilibre thermique. C'est utile pour déterminer également la position éventuelle d'un échantillon pour les études de catalycité et d'interaction plasma–objet selon les conditions désirées. En ce qui concerne les densités de O, celle-ci sont pour le moment incompatibles avec les mesures Raman sur CO, sachant que de grandes inconnues sont à éclaircir concernant les valeurs de désexcitation collisionnelles et les modèles nécessaires à la simulation de la fluorescence de éventuellement de l'ASE.

Par la suite, il sera possible de coupler ces résultats avec d'autres diagnostics tels que la spectroscopie d'émission (C, O, CO, C_2) et infrarouge (CO_2), et trouver des techniques pour sonder les fondamentaux de C (TALIF possible ?) et C_2…

Suite à ces efforts un travail doit d'effectuer sur la modélisation physico-chimique du milieu, notamment l'amélioration des modèles état-par-état tels que CoRaM-Mars, ainsi que les modèles de simulation du rayonnement à haute températures (CDSD-vib récemment présenté [74]) avec une meilleure prédiction du rayonnement des états de hautes énergies rovibrationnelles. Enfin, la simulation de l'écoulement dans SOUPLIN, ainsi qu'en situation de vol pour un atterrisseur, peut être couplée à ces modèles chimiques, à ces calculs de rayonnement ainsi que la méthode du tracé de rayons pour tenter à terme d'obtenir une simulation multi-physique de la situation et prédire de manière satisfaisante et dans des temps de calculs raisonnables le dimensionnement des matériaux de protection des engins spatiaux ou la dégradation des débris lors de leurs rentrées atmosphériques, mais aussi de caractériser pleinement la valeur des mesures effectuées par les ICOTOM. Ces avancements sont dejà en progression, notamment avec une collaboration entre le CNES et plusieurs laboratoires français [75].

Annexe A. Présentation des lasers

LASER est un acronyme anglophone, *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, qui signifie « amplification de la lumière par émission stimulée de rayonnement », et qui désigne à la fois l'effet d'amplification en question et les systèmes photoniques utilisant cet effet. Einstein, dès 1916 [Einstein1916][Einstein1917], émet l'hypothèse selon laquelle une particule – telle qu'un atome ou une molécule – soumise à un rayonnement peut se désexciter en émettant un rayonnement identique au rayonnent incident. C'est le processus inverse de l'absorption de lumière, appelée alors *émission stimulée*. Tout comme l'absorption, elle n'est possible que quand l'énergie du photon incident correspond à l'écart entre deux niveaux d'énergie de la particule ; tout comme l'absorption, elle est plus probable lorsque le rayonnement incident est important. Ainsi a germé l'idée qu'un ensemble donné de particules puisse servir d'amplificateur optique, et qu'en disposant cet amplificateur dans une cavité de propriétés géométriques et optiques bien définies, on obtienne une boucle d'amplification permettant d'obtenir un puissant faisceau cohérent, dont deux particularités clés sont sa longueur d'onde quasi monochromatique et son caractère très directionnel.

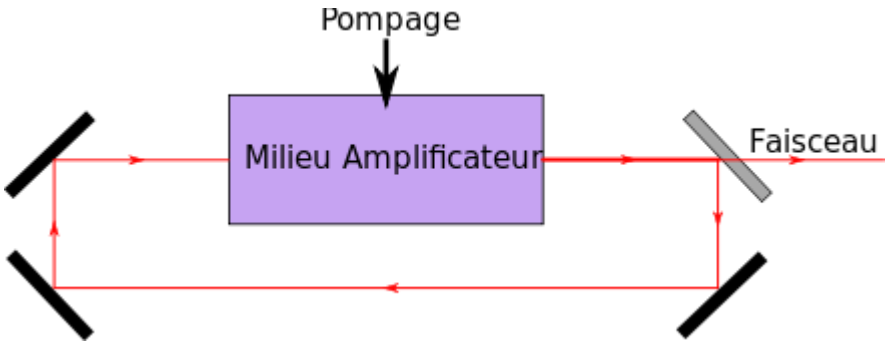


Figure A-21. Principe d'une cavité laser. [76]

La Figure A-1 présente le principe d'une telle cavité. Il est important de noter que l'amplification ne peut se maintenir que tant qu'il y a une *inversion de population* : tant que la population d'atomes sur le niveau haut est plus importante que celle sur le niveau bas, il y aura globalement plus de particules émettrices que de particules absorbantes ; ainsi le milieu amplifie donc correctement le rayonnement incident.

Considérons un modèle simple à deux niveaux (présenté en Figure A-2), disposant d'un niveau bas numéroté 1 et d'un niveau haut numéroté 2, caractérisés par leurs énergies respectives E_1 et E_2, et leurs populations respectives N_1 et N_2. Naturellement, une particule sur le niveau 2 peut émettre spontanément un photon d'énergie $h\nu_{12} = E_2 - E_1$ pour se désexciter et arriver sur le niveau 1. Einstein introduit pour ce processus d'*émission spontanée* un premier coefficient, A_{21}, ce qui permet d'exprimer le nombre de particules qui se désexcitent de cette manière chaque seconde par la quantité $A_{21}N_2$. La

proportionnalité de cette quantité avec la population du niveau haut est immédiate : plus le nombre de particules sur le niveau haut est élevé, plus le nombre de particules qui se désexcitent sera important. Le coefficient A_{21} est propre au type de particule et aux caractéristiques des niveaux 1 et 2. En termes de signification, on peut le rapprocher d'une probabilité pour une particule de se désexciter spontanément par unité de temps. De plus, en présence d'un rayonnement incident de photons d'énergie $h\nu_{12}$, une particule sur le niveau bas 1 peut absorber un photon et se retrouver sur le niveau haut 2. Einstein a alors également introduit un coefficient d'*absorption* B_{12} qui se rapproche d'une probabilité d'une particule d'absorber un photon par unité de temps et par unité de densité volumique et spectrique d'énergie lumineuse incidente. Cela permet d'exprimer la quantité de particules qui absorbent un photon $h\nu_{12}$ par unité de temps par $B_{12}\rho(\nu_{12})N_1$. En effet, plus l'intensité lumineuse est importante, et plus le nombre de photons sur le niveau bas est important, et plus grande est la probabilité d'obtenir des particules absorbantes. Avec un raisonnement similaire, Einstein prévoit le phénomène inverse : une particule sur le niveau haut 2 soumise à un rayonnement incident de photons d'énergie $h\nu_{12}$ peut émettre un photon de mêmes caractéristiques que les photons incidents. Cette *émission stimulée* ou *induite*, pour laquelle est introduit le coefficient d'Einstein B_{21}, est justement la notion clé des lasers. La quantité de particules qui sont induites à émettre un photon $h\nu_{12}$ par unité de temps est donnée par par $B_{21}\rho(\nu_{12})N_2$.

On peut alors établir un bilan de population :

$$\begin{cases} \dfrac{dN_1}{dt} = [A_{21} + B_{21}\rho(\nu_{12})]N_2 - B_{12}\rho(\nu_{12})N_1 \\ \dfrac{dN_2}{dt} = -\dfrac{dN_1}{dt} \end{cases}$$

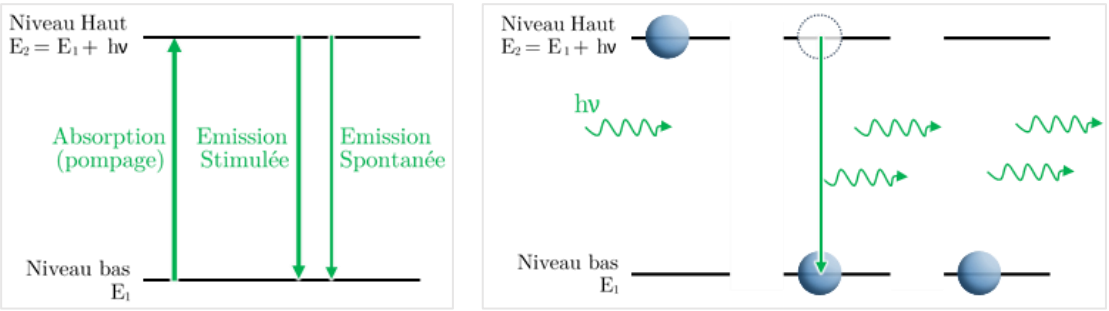


Figure A-22. Schéma du modèle à deux niveaux, à gauche ; Illustration séquentielle du principe de l'émission stimulée dans un modèle à deux niveaux, à droite.

En considérant que l'amplification optique a lieu si l'ensemble de particules a plus perdu d'énergie par émission qu'elle en a gagné par absorption, cela donne pour condition $\frac{dN_2}{dt} < 0$ soit $\frac{dN_1}{dt} > 0$. Si l'on sélectionne une transition 1⟷2 pour laquelle la probabilité d'émettre spontanément est négligeable devant l'émission induite par une densité d'énergie donnée, on a alors une condition pour que l'amplification ait lieu :

$$B_{21}\rho(\nu_{12})N_2 > B_{12}\rho(\nu_{12})N_1$$

Sachant que :

$$g_2 B_{21} = g_1 B_{12}$$

Avec g_i la dégénérescence du niveau i, on obtient alors pour condition nécessaire à l'obtention de l'amplification optique l'expression suivante :

$$N_2 > \frac{g_2}{g_1} N_1$$

C'est une *inversion de population*, condition peu usuellement atteinte naturellement et qui ne reste pas longtemps en place sans apport d'énergie extérieur. En effet si plus de particules émettent de l'énergie par émission stimulée que d'autres en absorbent, alors rapidement plus de particules seront retombées sur le niveau bas que de particules seront remontées sur le niveau haut. L'inversion de population est alors terminée. C'est la raison pour laquelle l'ensemble de particules doit être maintenu à l'état haut en y apportant de l'énergie : c'est ce processus que l'on appelle le *pompage* du milieu laser.

Historiquement le premier laser était un maser (*Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation*) car le rapport entre l'émission stimulée et spontanée $\frac{B_{21}}{A_{21}}$ était beaucoup plus favorable dans le domaine des micro-ondes que celui du spectre visible. Ensuite Maiman produit le premier laser solide à rubis en 1960 à 694.3nm, Javan présente le premier laser à gaz (Hélium-Néon) en 1961 à 1.153µm, les diodes lasers sont présentées en 1962, et le premier laser à colorant l'est en 1966 (laser à 755nm pompé par un laser à rubis). Par la suite, de plus en plus de sources possibles pour créer l'effet laser furent développées (Tableau A-1), permettant une utilisation tant scientifique qu'industrielle voire à des utilisations plus quotidiennes, comme l'invention du lecteur de code-barres (premier article scanné en 1974), les communications à fibre optiques (1977) ou le Compact Disc (1978)…

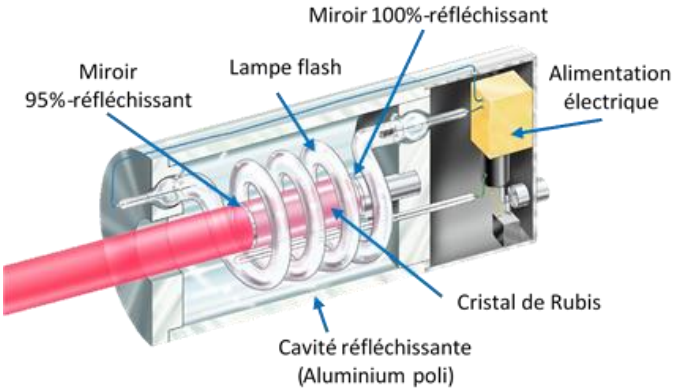


Figure A-23. Premier laser à rubis de Maiman (1960). [77]

Nous présentons dans la section I.3. du Chapitre I. les types de sources lasers utilisées lors des expériences présentées dans ce manuscrit, à savoir le laser cristallin et le laser à colorant. Il existe d'autres sources possibles comme les lasers à gaz (citons en

exemple les lasers CO_2 ou excimères), les lasers à fibre, les diodes lasers ou les lasers à électrons libres.

Caractéristique	Auteur [ref]	Date	λ (nm)	Valeur source	Unité source
Maser (NH_3)	Townes [78]	1954	0,01256	23870	Mc/s (mega-cycles per second) = MHz
Rubis	Maiman [79]	1960	694,3	6943	Å
He-Ne	Javan [80]	1961	1135	11350	Å
Diode GaAs	Hall [81]	1962	842	8420	Å
Diode $Ga(As_{1-x}P_x)$	Holonyak [82]	1962	710	7100	Å
Laser Raman	Eckhardt [83]	1962	767	7670	Å
Fibre	Koester, Snitzer [84]	1963	1060	1,06	µm
Nd:YAG	Geusic [85]	1964	1064,8	1,0648	µm
CO_2	Patel [86] [87]	1964	10408	960,8	cm^{-1}
			9400	1063,8	cm^{-1}
Chimique HCl	Kasper [88]	1965	3734	2678	cm^{-1}
			3771	2652	cm^{-1}
Colorant	Sorokin [36]	1966	755	0,755	µm
Colorants Polyméthines (ajustable)	Spaeth [37]	1966	750-790	750-790	nm
			745-750	745-750	nm
Excimer (Xe_2)	Basov [89]	1970	176	1760	Å
Laser à Atomes (Na)	Ketterle	1996			
Laser Vivant Unicellulaire	Gather, Yun [90]	2011	510-550	510-550	nm

Tableau A-22. Présentation de quelques sources lasers pionnières ou d'importance.

Annexe B. Spectroscopie d'émission

Cette annexe traite de l'utilisation du spectromètre MAYA à notre disposition, des premières mesures sur des corps connus jusqu'à son emploi sur la soufflerie.

Mesures préliminaires sur deux sources radiativement connues

Afin de pouvoir exploiter le spectromètre sur la veine d'essai, il est nécessaire d'établir d'abord la réponse spectrale de chacun des éléments du montage : à savoir la lentille de collection, la fibre optique (déjà présente en Annexe ??) ainsi que du spectromètre en lui-même. Pour cela, nous avons utilisé deux lampes dont les caractéristiques spectrales sont connues :

- Une lampe incandescente à ruban de tungstène dont l'étalonnage en température de luminance a déjà été effectué par l'équipe Plasmas du CORIA, car l'émissivité du tungstène est connue dans le domaine 350-1120 nm.
- Une lampe à arc au deutérium qui a été caractérisée en éclairement par le fabricant entre 200 et 400 nm.

Ainsi en recoupant les résultats des deux sources lumineuses, il sera possible de reconstruire une réponse spectrale sur l'ensemble du domaine d'acquisition [200-1120 nm].

La Figure B-24 montre le montage typique d'acquisition du signal. Chacun d'entre eux a été effectué sur un banc mobile en translation et gradué pour pouvoir connaître les distances entre la source et le cible, ainsi qu'un diaphragme pour connaître l'ouverture, éviter les rayonnements parasites tels que des réflexions et éviter une surexposition du capteur du spectromètre.

Figure B-24. Dispositif type de mesures d'étalonnage du spectromètre MAYA.

Afin de séparer les réponses de chaque composant du montage, trois spectres ont été acquis : le premier avec le montage complet, le second une fois la lentille ôtée, et le dernier avec le spectromètre seul. Ainsi, même si les zones lumineuses acquises ne sont pas identiques, on peut aisément obtenir des réponses spectrales non calibrées. Sur la figure 1 on peut voir les trois spectres acquis lorsque le lampe à ruban de tungstène était alimentée par un courant stabilisé à 14 A : en bleu, le spectre acquis avec le montage complet, en turquoise le spectre acquis lentille ôtée, puis en vert le spectre acquis avec uniquement le spectromètre. Les temps d'acquisition et les zones contribuant à l'éclairement du capteur n'étant pas les mêmes, une première technique pour retravailler les spectres a été simplement de chercher le maximum du rapport entre un spectre et le spectre "adjacent" et diviser le spectre qui est censé être inférieur à l'autre par ce rapport. On s'assure ainsi que l'on n'ait pas de transmittivité supérieure à 1. Sur le graphe j'ai également modélisé la loi de Planck en rouge pour rendre compte de la différence de forme entre les spectres expérimentaux et le spectre théorique.

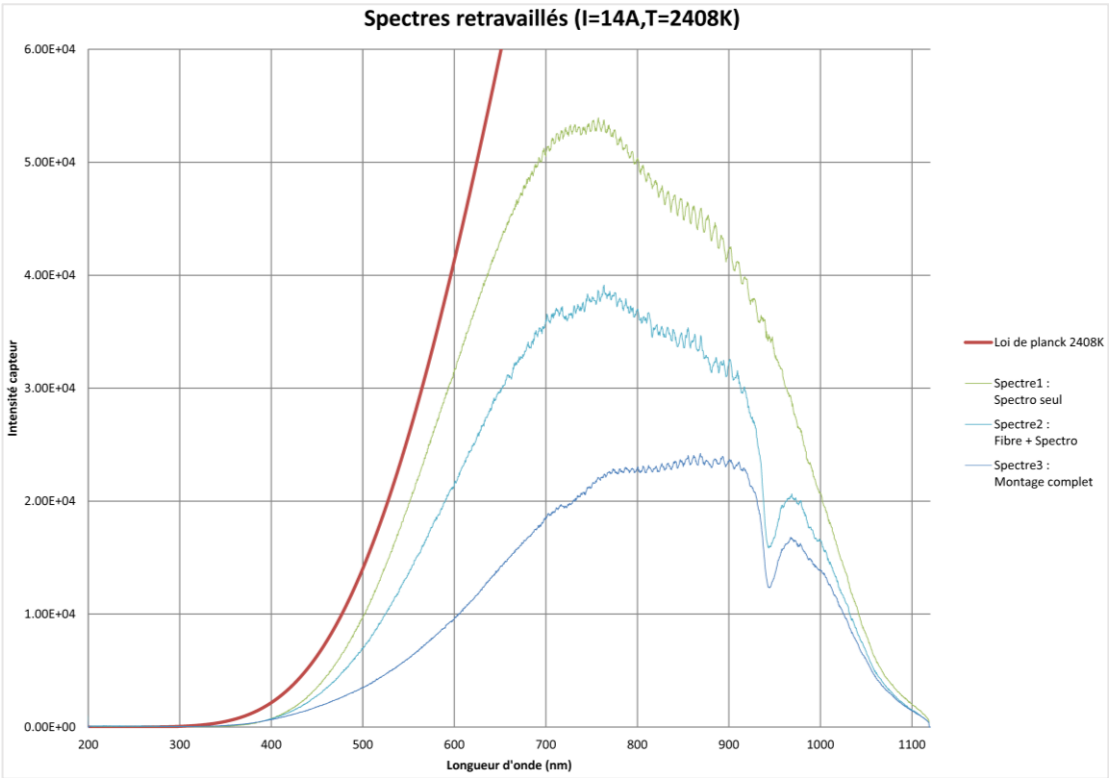


Figure B-25. Spectres du tungstène acquis par MAYA, et retravaillés.

Après avoir effectué la même expérience sur la lampe au deutérium, nous obtenons deux réponses du spectromètre, non calibrées. Un zoom sur la zone de recouvrement des deux réponses est illustré en Figure B-25. On y voit que les signaux y sont semblables, même si la présence d'un fort bruit subsiste. Pour fusionner les deux signaux, j'ai donc sélectionné la zone [365-375 nm], zone où les deux spectres présentent un bruit minimal.

J'ai ensuite ajusté le spectre au deutérium pour que les signaux se chevauchent parfaitement (Figure B-26), et ai reconstitué le signal final présenté en Figure B-27 comme suit :

- 200-365 nm : réponse au deutérium ;
- 365-375 nm : moyenne des deux signaux ;
- 375-1120 nm : réponse au tungstène.

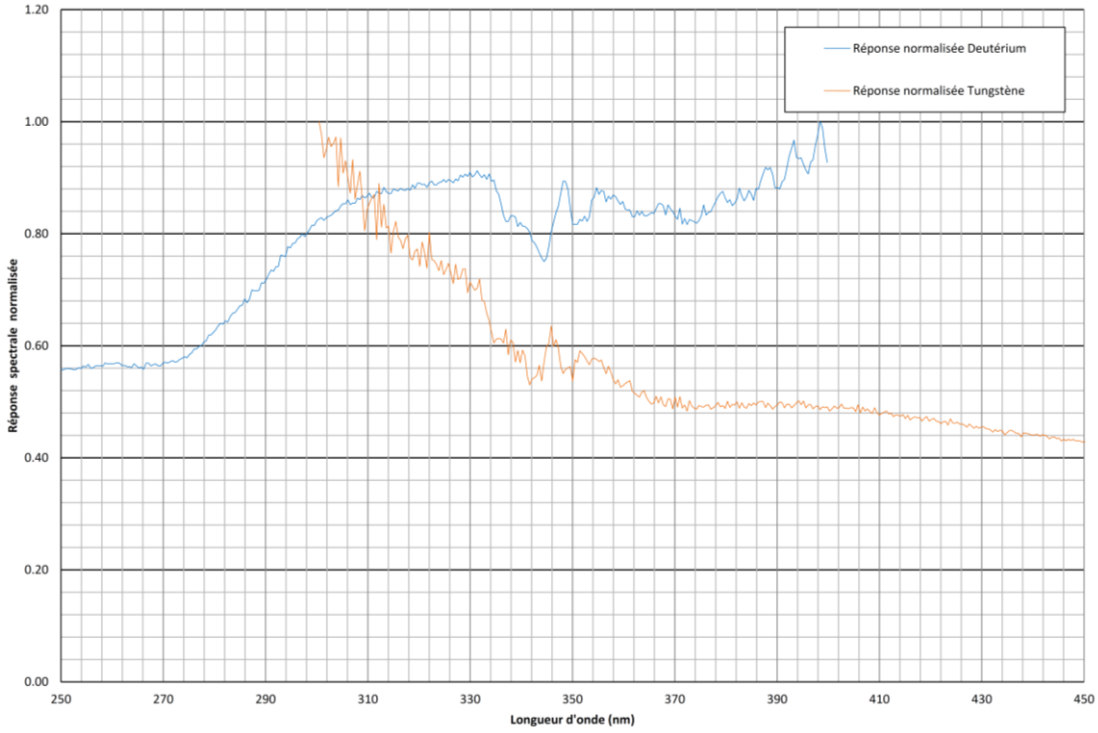


Figure B-26. Réponses non calibrées du spectromètre, avant fusion. Zoom effectué sur la zone de chevauchement [300-400 nm].

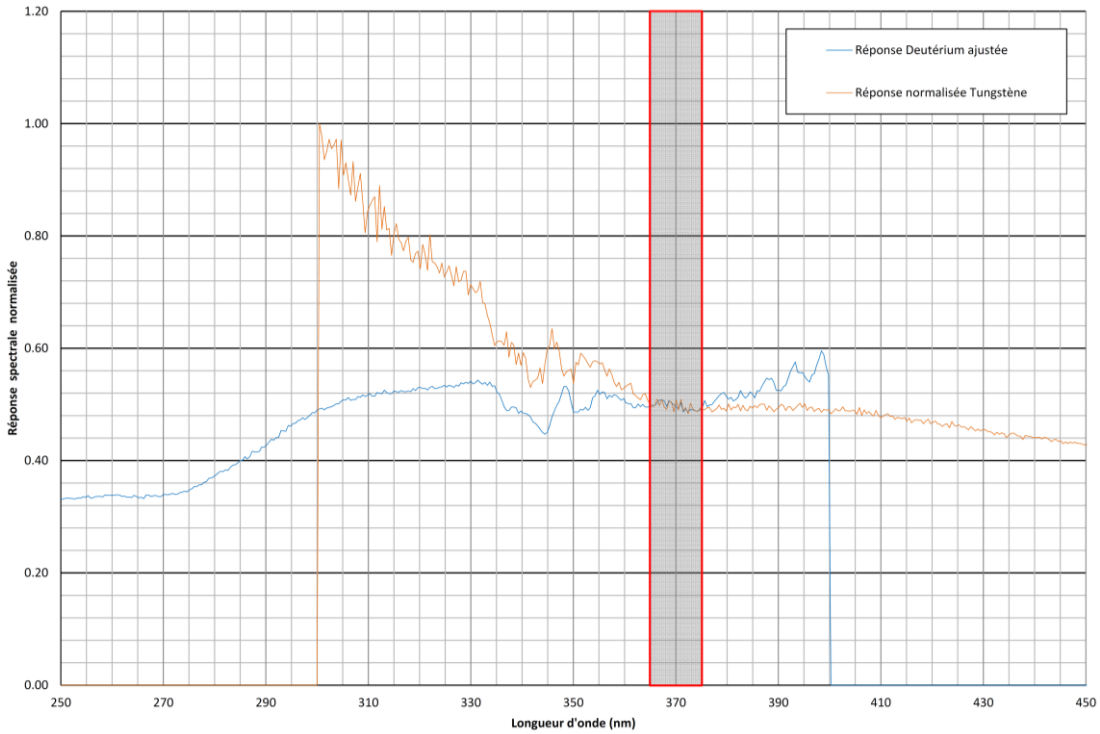


Figure B-27. Ajustement de la réponse au deutérium. La zone grisée correspond à la zone sélectionnée pour la fusion.

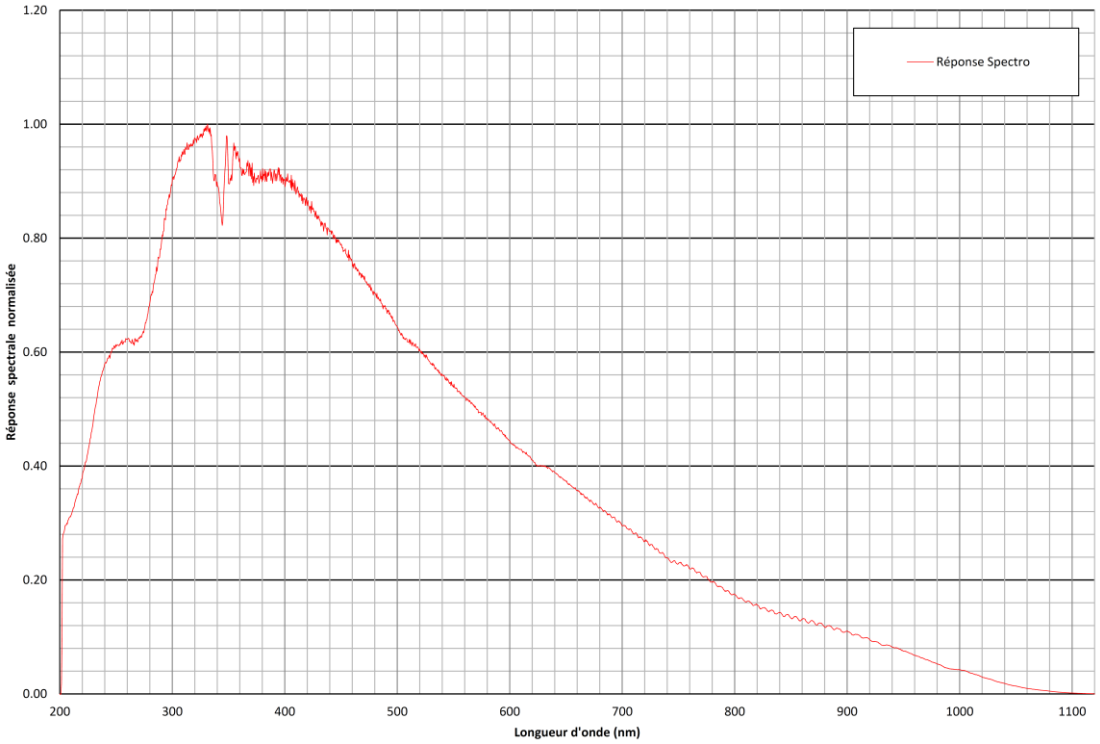


Figure B-28. Réponse spectrale fusionnée du spectromètre, normalisée.

On note cependant un problème sur la réponse de la fibre (visible sur la Figure B-25) : là où la fibre possède un large pic d'absorption autour de 944 nm, le constructeur ne place ce pic qu'à 900 nm. Cependant un autre type de fibre du constructeur présente une telle réponse, une fibre prévue pour le domaine 300–1100nm... Il faudra donc effectuer des mesures plus précises pour quantifier la réponse réelle de la fibre, pour traiter cette réponse dans l'exploitation future des résultats acquis avec cette fibre. Cependant les dernières campagnes ayant été effectuées avec le spectromètre uniquement, l'importance de cette réponse est moindre par rapport à celle dudit spectromètre.

Troisième campagne de mesures sur IPWT3

Lors de cette campagne de mesures, des mesures locales de spectroscopie d'émission one été entreprises, en conjuguant directement la fente d'entrée du spectromètre avec un point du centre du plasma grâce à un miroir sphérique. J'ai choisi de bénéficier du poids et de l'encombrement très réduit du spectromètre pour l'incliner vers le haut au lieu de classiquement le faire pivoter sur son plan vertical, permettant ainsi de minimiser l'angle de déviation du miroir nécessaire pour amener la lumière vers le spectromètre. Ceci a été notamment rendu possible grâce à la conception d'un support inclinable avec l'atelier du laboratoire. Les positions du miroir et du spectromètre sont réglables en translation grâce à des éléments de déplacement millimétriques sur les deux axes horizontaux, réglables verticalement en translation, et réglables en inclinaison. Le réglage a été effectué grâce à une diode laser placée de l'autre côté de la veine de sorte à créer un axe optique de référence, et la mise au point grâce à une lampe-crayon placée sur l'intersection entre l'axe optique et l'axe du jet.

Figure B-29. Positionnement de la lampe crayon pour le réglage du montage spectroscopique.

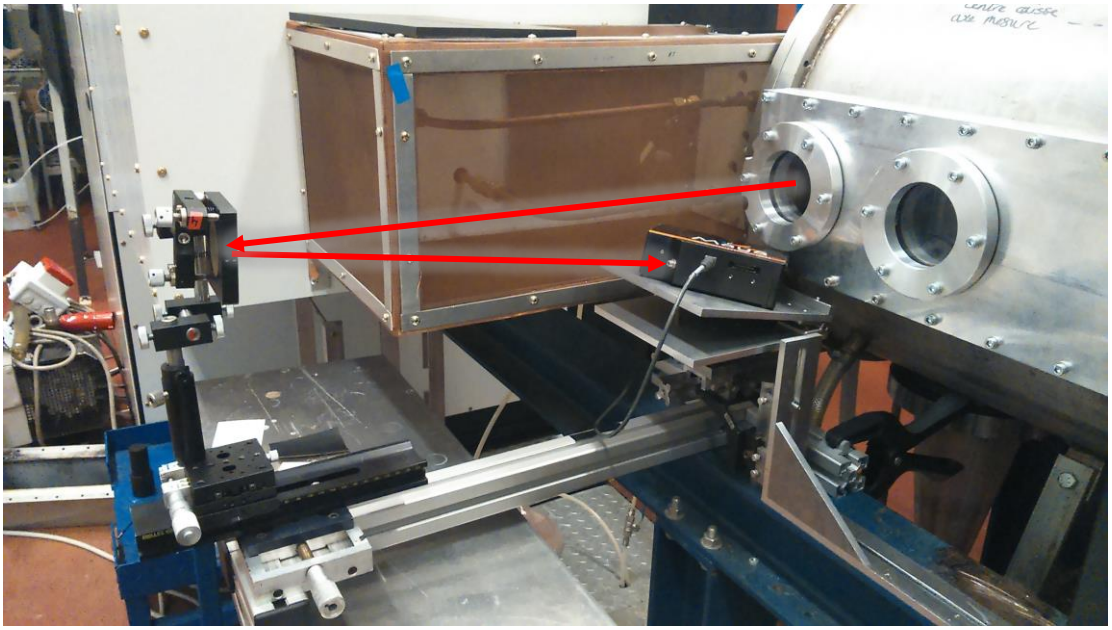


Figure B-30. Montage spectroscopique utilisé lors de la seconde campagne de mesures.

La première image de la Figure B-6 présente le positionnement de la lampe-crayon grâce aux réflexions des lasers de réglage : en effet centrer les tâches de réflexion sur les hublots ainsi que sur le tube de sortie du plasma permet de s'assurer du positionnement horizontal de la lampe. La Figure B-7 présente le montage final d'acquisition de spectres locaux.

Lors de l'identification des systèmes atomiques et moléculaires présents, nous avons noté :

- des raies atomiques du carbone ;
- des raies atomiques de l'oxygène ;
- des raies atomiques du silicium, trahissant sur certains points de mesure une pollution du plasma due à une dégradation des tubes en quartz ;
- le système de bandes de Swan de C_2 ;

Ainsi que la présence d'un fond de signal pas encore attribué, peut-être un continuum de recombinaison (par exemple CO+O).

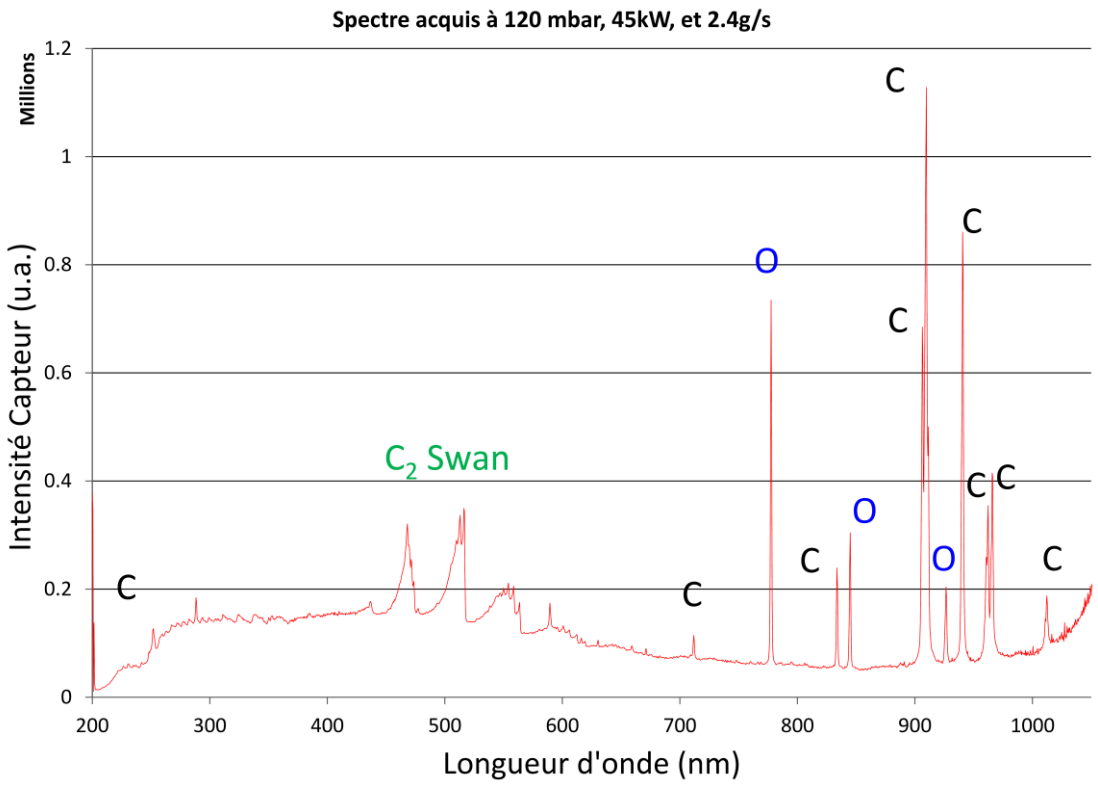


Figure B-31. Identification des bandes et raies d'émission sur un spectre corrigé grâce à la réponse spectrale établie plus haut.

Afin d'améliorer le traitement des spectres, j'ai établi un programme FORTRAN permettant de diviser les valeurs de spectres acquis par leur temps d'intégration, puis de les concaténer dans un unique ficher texte de sortie.

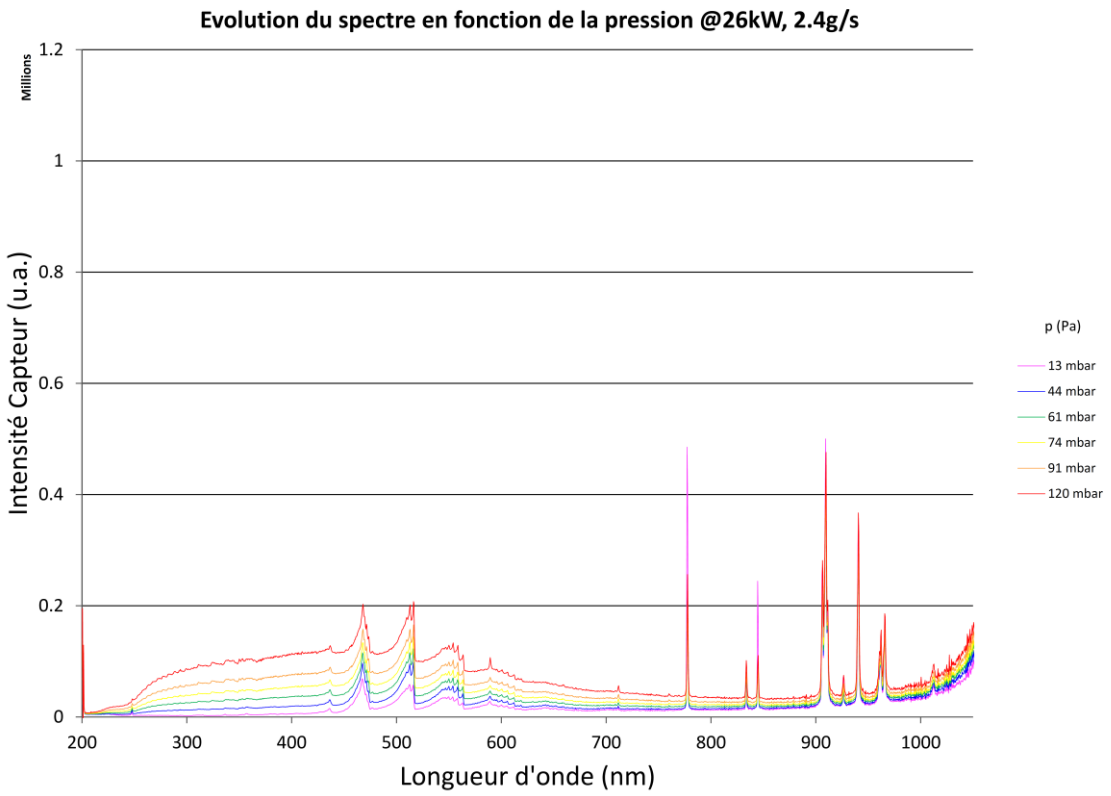


Figure B-32. Spectres corrigés (P=26kW).

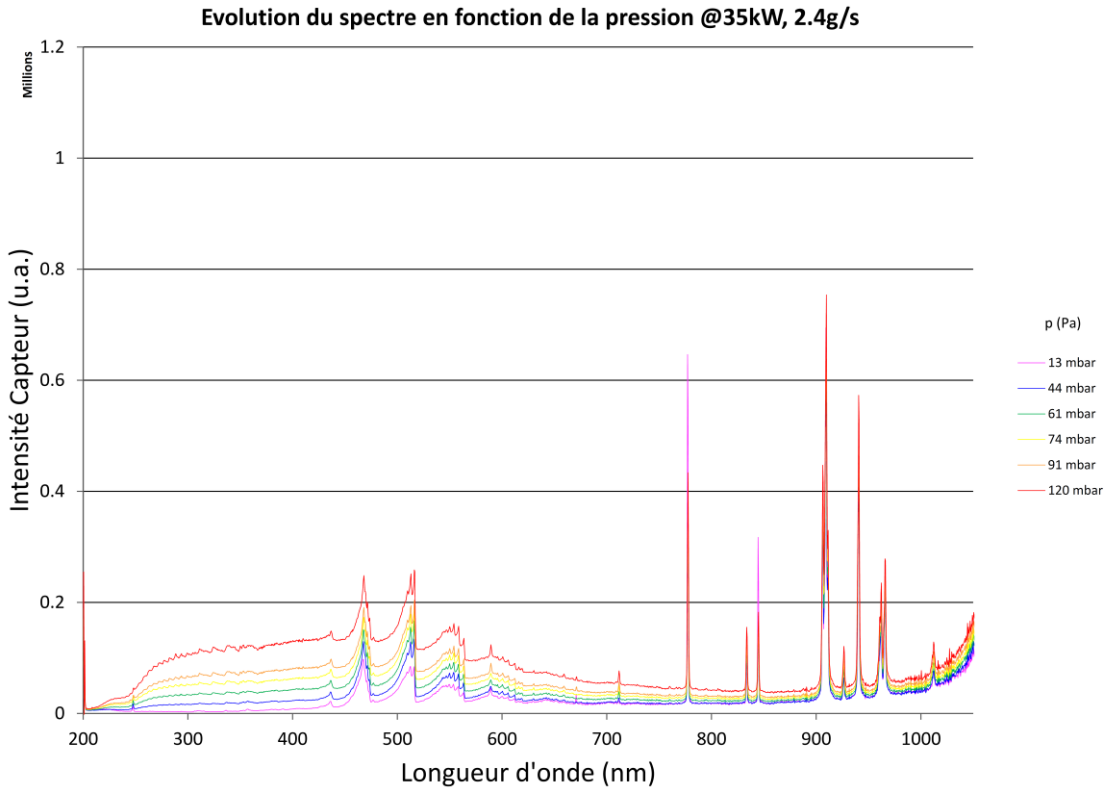


Figure B-33. Spectres corrigés (P=35kW).

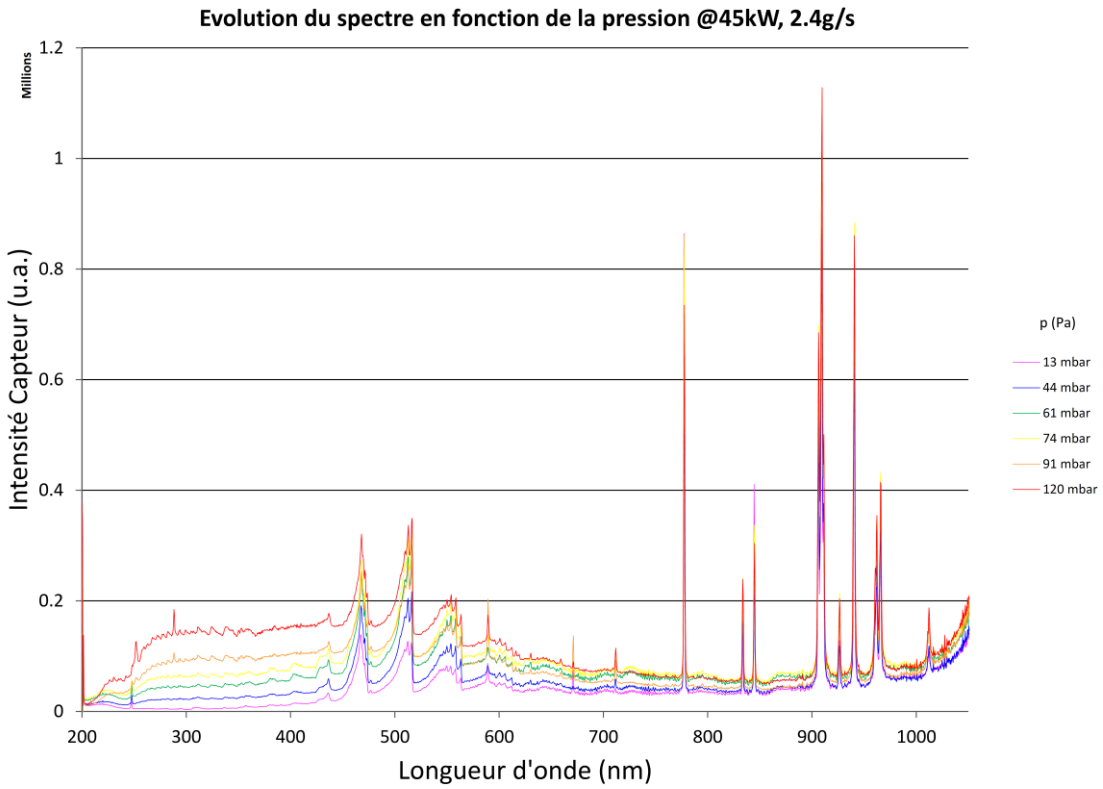


Figure B-34. Spectres corrigés (P=45kW).

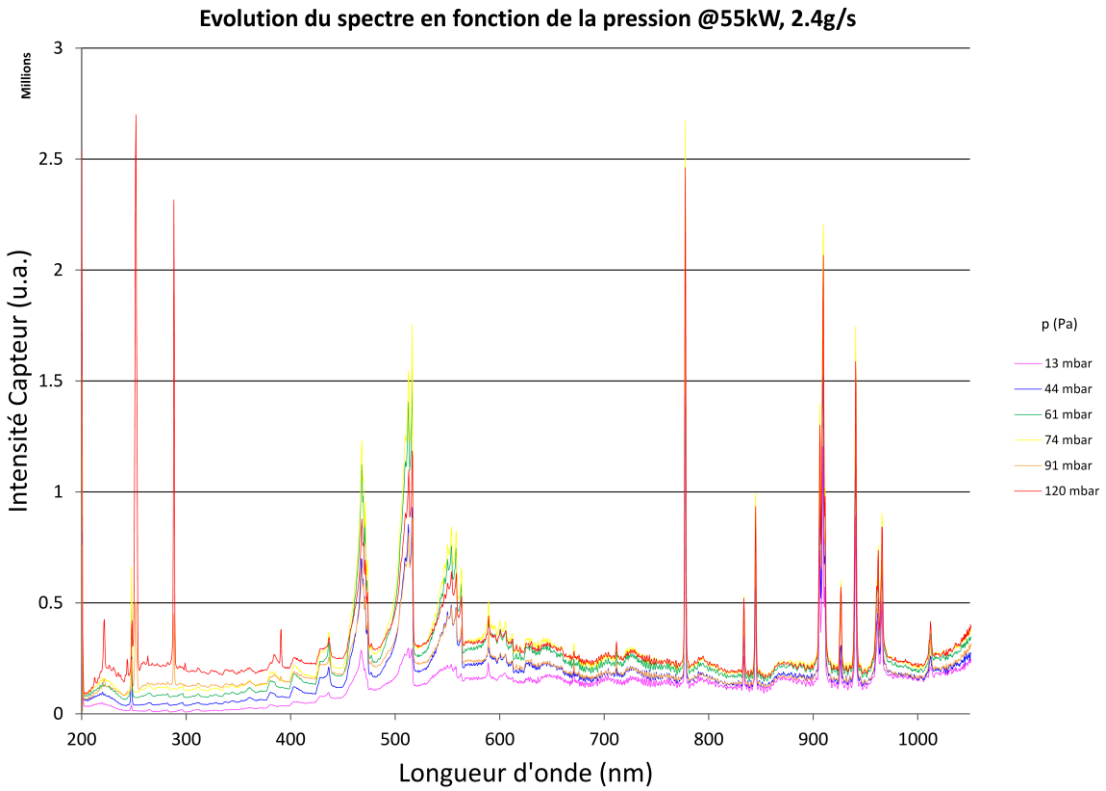


Figure B-35. Spectres corrigés (P=55kW). Notons la forte présence de raies du silicium dans l'intervalle 250-300nm.

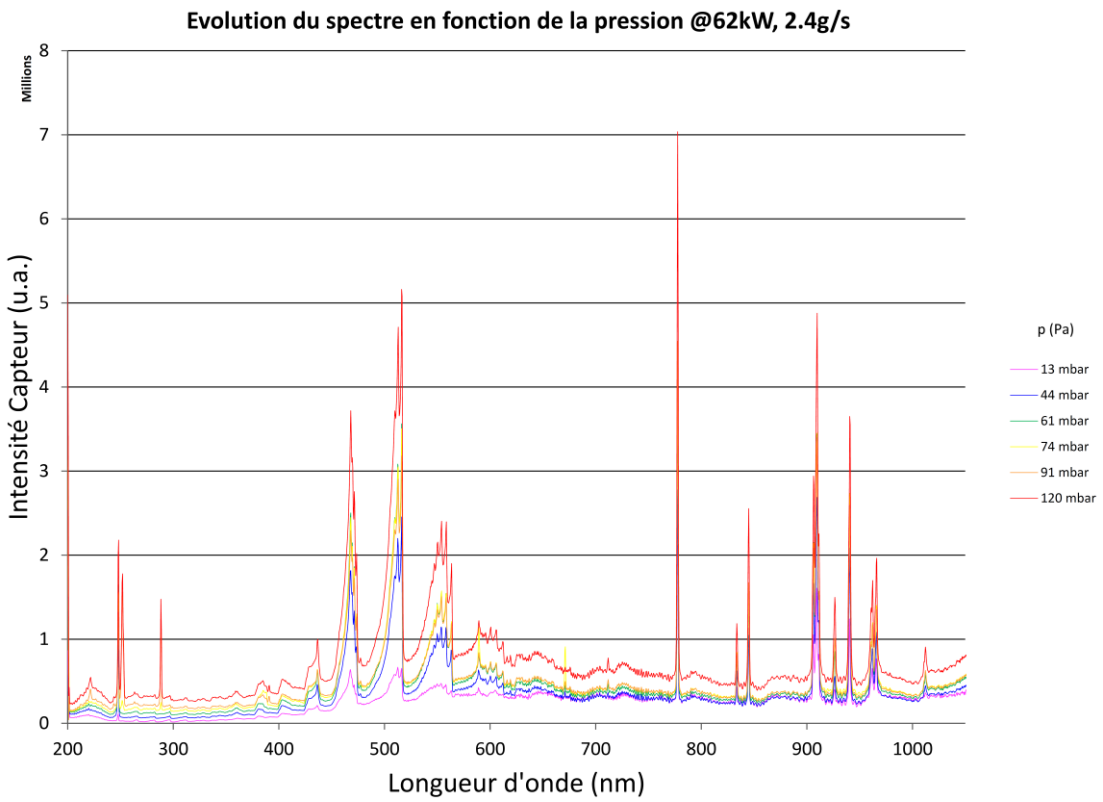


Figure B-36. Spectres corrigés (P=62kW). Notons la présence de raies du silicium dans l'intervalle 250-300nm.

Les Figures B-9 à B-13 montrent des groupes de spectres à différentes pressions et à puissance injectée commune. S'il l'on peut noter qu'augmenter la puissance injectée et la pression fait croître l'intensité globale des spectres et de ses composantes, il semble surtout qu'entre 45 et 55kW, une transition de comportement s'opère : on passe d'un spectre présentant de faibles bandes de C_2, et des raies du carbone plus importantes que les raies de l'oxygène, à un spectre où les bandes de Swan sont très présentes et où les raies de l'oxygène ont gagné en importance par rapport aux raies du carbone. Il semble donc qu'il y ait plus de CO dissocié en C+O, voire en C_2, C et O... La présence de C_2 à l'équilibre n'étant marquante qu'entre 4000 et 8000K à de telles pressions, cela nous permet d'avoir un ordre de grandeur des énergies dans la zone visée ; en effet même si le jet n'est pas à l'équilibre, il n'en demeure pas très éloigné. Il faut noter qu'établir trop de conclusions est inadapté sans s'éclairer du reste des mesures et sans compléter l'ensemble des résultats avec des simulations, les déductions ne servent ici que de pistes pour les discussions.

Il est également important de noter que de la spectroscopie d'émission sur quelques raies de O et C a été acquise avec succès grâce au montage de collection illustré dans les chapitres Raman et TALIF, mais non exploitée au moment de l'écriture de ce manuscrit.

Bibliographie

[1] L. Barka, «Etude de la survivabilité des débris spatiaux en phase de rentrée atmosphérique (oxydation et émissivité),» 2018.

[2] P. Omaly et M. Spel, «DEBRISK, a Tool for Re-Entry Risk Analysis,» chez *A Safer Space for Safer World*, 2012.

[3] R. Durand-Carrier, «Débris spatiaux, quel régime uniforme de responsabilité mettre en place ?,» 2018.

[4] K. Bray et N. Pratt, «Conditions for significant gasdynamically induced vibration-recombination coupling,» chez *Symposium (International) on Combustion*, 1967.

[5] A. Gülhan, T. Thiele, F. Siebe, R. Kronen et T. Schleutker, «Aerothermal Measurements from the ExoMars Schiaparelli Capsule Entry,» *Journal of Spacecraft and Rockets,* vol. 56, pp. 68-81, 2018.

[6] J. Annaloro, P. Boubert, A. Bultel, M.-C. Druguet, E. Duffour, M. Jacquot, V. Lago, S. Menecier, F. Perisse, N. Rembaut et others, «Rebuilding of ICOTOM radiometer data during the Schiaparelli Martian entry,» 2019.

[7] D. Williams, *NASA Mars Fact Sheet.*

[8] R. Perry, «The Longshot type of high-Reynolds number hypersonic tunnel,» chez *Third hypervelocity techniques symposium, Advanced experimental techniques for study of hypervelocity flight*, Denver, 1964.

[9] W. H. Beck, G. Eitelberg, T. J. McIntyre, J. P. Baird, J. Lacey et H. Simon, «The high enthalpy shock tunnel in Göttingen (HEG),» chez *Shock Waves*, Springer, 1992, pp. 677-682.

[10] M. Lino Da Silva et B. Carvalho, «High-Pressure H2/He/O2 Combustion Experiments for the Design of the ESTHER Shock-Tube Driver,» chez *46th AIAA Thermophysics Conference*, 2016.

[11] M. McGilvray, L. J. Doherty, A. J. Neely, R. Pearce et P. Ireland, «The Oxford High Density Tunnel,» chez *20th AIAA International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference*, 2015.

[12] M. McGilvray, L. J. Doherty, R. G. Morgan, D. Gildfind, P. Jacobs et P. Ireland, «T6: The Oxford University Stalker Tunnel,» chez *20th AIAA International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference*, 2015.

[13] K. Itoh, S. Ueda, T. Komuro, K. Sato, H. Tanno et M. Takahashi, «Hypervelocity aerothermodynamic and propulsion research using a high enthalpy shock tunnel HIEST,» chez *9th International Space Planes and Hypersonic Systems and Technologies Conference*.

[14] M. Scott, R. Morgan et P. Jacobs, «A new single stage driver for the X2 expansion tube,» chez *43rd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, 2005.

[15] G. Jourdan, L. Houas, L. Schwaederlé, G. Layes, R. Carrey et F. Diaz, «A new variable inclination shock tube for multiple investigations,» *Shock Waves,* vol. 13, pp. 501-504, 2004.

[16] *NASA Ames Research Center - Arc Jet Complex.*

[17] S. Boldyrev, V. Brazhko, A. Vaganov, R. Davletkildeev et S. Zadonsky, «T-117 TsAGI Hypersonic Wind Tunnel,» 2002.

[18] S. Caristia, F. De Filippis, A. Del Vecchio et E. Graps, «Scirocco PWT facility for high temperature material assembly testing,» chez *54 th International Astronautical Congress*, 2003.

[19] M. Auweter-Kurtz et T. Wegmann, «Overview of IRS plasma wind tunnel facilities,» 2000.

[20] M. Büscher, B. Esser, K. Kindler et V. List, «Developments at the arc heated facility LBK of DLR,» chez *Aerothermodynamics for space vehicles*, 1995.

[21] G. François, A. Masson et J.-P. Ledy, «ONERA- F 4 high enthalpy wind-tunnel,» chez *Supersonic Tunnel Association, Meeting, 82 nd, USAF, Wright-Patterson AFB, OH, Oct. 16-18, 1994, ONERA, TP*, 1994.

[22] V. Lago, R. Joussot et J. D. Parisse, «PHEDRA: A HIGH ENTHALPY WIND TUNNEL FOR ATMOSPHERIC ENTRY SIMULATIONS».

[23] «Wikipedia - Inductively Coupled Plasma,» Wikipedia, [En ligne]. Available: https://en.wikipedia.org/wiki/Inductively_coupled_plasma.

[24] A. N. Gordeev, «Overview of characteristics and experiments in IPM plasmatrons,» 2000.

[25] V. Morel, «Dynamique de la création d'un plasma d'aluminium induit par laser: Elaboration et validation d'un modèle collisionnel-radiatif.,» 2011.

[26] B. Pérès, V. Morel, A. Bultel, A. Benyagoub, I. Monnet, E. Gardès, G. Godard, C. Gobin, C. Jouen, A. Hideur et others, «Experimental characterization of the excitation state of picosecond laser-induced Tungsten plasmas,» chez *Journal of Physics: Conference Series*, 2014.

[27] D. Studer, «Analyse quantitative d'un plasma d'air subsonique simulant la rentrée atmosphérique terrestre,» 2008.

[28] N. Bremare, «Etude experimentale du rayonnement d'un plasma hyperenthalpique de dioxyde de carbone et de l'interaction plasma-surface.,» 2014.

[29] V. Mareschi, «Requirements on Modelling and Simulation,» *SACOMAR deliverable D,* vol. 4, 2011.

[30] E. Snitzer, «Optical maser action of Nd+ 3 in a barium crown glass,» *Physical Review Letters,* vol. 7, p. 444, 1961.

[31] L. M. Osterink et J. D. Foster, «A Mode-Locked Nd: YAG Laser,» *Journal of Applied Physics,* vol. 39, pp. 4163-4165, 1968.

[32] M. Ostermeyer, P. Kappe et R. Menzel, «Principles and operation of a mode locked Nd: YAG laser using a nonlinear mirror based on stimulated Brillouin scattering,» chez *2005 Pacific Rim Conference on Lasers & Electro-Optics*, 2005.

[33] J. Thévenin, M. Vallet et M. Brunel, «Dual-polarization mode-locked Nd: YAG laser,» *Optics letters,* vol. 37, pp. 2859-2861, 2012.

[34] Y. K. Yap, M. Inagaki, S. Nakajima, Y. Mori et T. Sasaki, «High-power fourth- and fifth-harmonic generation of a Nd: YAG laser by means of a CsLiB 6 O 10,» *Optics letters,* vol. 21, pp. 1348-1350, 1996.

[35] G. Cléon, «Diffusion Raman spontanée pour l'étude de flammes cryotechniques haute pression,» 2007.

[36] P. P. Sorokin et J. R. Lankard, «Stimulated emission observed from an organic dye, chloro-aluminum phthalocyanine,» *IBM Journal of Research and Development,* vol. 10, pp. 162-163, 1966.

[37] M. L. Spaeth et D. P. Bortfeld, «Stimulated emission from polymethine dyes,» *Applied Physics Letters,* vol. 9, pp. 179-181, 1966.

[38] B. Chéron, Transferts thermiques: résumé de cours, problèmes corrigés, Ellipses Marketing, 1999.

[39] N. A. S. A. CEA et others, «NASA computer program for calculating of the Chemical Equilibrium with Applications,» *NASA Glenn Research Center, Cleveland, OH,* 2015.

[40] J. M. Hollas, «Spectroscopie: cours et exercices,» Dunod, 2003, pp. 121-173.

[41] S. A. Tashkun, V. I. Perevalov, J. L. Teffo, L. S. Rothman et V. G. Tyuterev, «Global fitting of 12C16O2 vibrational--rotational line positions using the effective Hamiltonian approach,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 60, pp. 785-801, 1998.

[42] J. M. Hollas, Modern spectroscopy, John Wiley & Sons, 2004.

[43] *Fermi Resonance Wikipedia page.*

[44] P. Boubert et C. Rond, «Nonequilibrium radiation in shocked martian mixtures,» *Journal of Thermophysics and Heat Transfer,* vol. 24, pp. 40-49, 2010.

[45] P. Rivière, A. Soufiani et M.-Y. Perrin, «Line by line and statistical narrow-band calculations of radiative transfer in some atmospheric entry problems,» chez *Radiation of High Temperature Gases in Atmospheric Entry*, 2003.

[46] D. Scutaru, L. Rosenmann et J. Taine, «Approximate intensities of CO2 hot bands at 2.7, 4.3, and 12 microns for high temperature and medium resolution applications,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 52, pp. 765-781, 12 1994.

[47] R. A. McClatchey, W. S. Benedict, S. A. Clough, D. E. Burch et R. F. Calfee, «AFCRL atmospheric absorption line parameters compilation,» 1973.

[48] L. S. Rothman, C. P. Rinsland, A. Goldman, S. T. Massie, D. P. Edwards, J. M. Flaud, A. Perrin, C. Camy-Peyret, V. Dana, J.-Y. Mandin et others, «The HITRAN molecular spectroscopic database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 edition,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 60, pp. 665-710, 1998.

[49] L. S. Rothman, I. E. Gordon, Y. Babikov, A. Barbe, D. C. Benner, P. F. Bernath, M. Birk, L. Bizzocchi, V. Boudon, L. R. Brown, A. Campargue, K. Chance, E. A. Cohen, L. H. Coudert, V. M. Devi, B. J. Drouin, A. Fayt, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, J. J. Harrison, J.-M. Hartmann, C. Hill, J. T. Hodges, D. Jacquemart, A. Jolly, J. Lamouroux, R. J. L. Roy, G. Li, D. A. Long, O. M. Lyulin, C. J. Mackie, S. T. Massie, S. Mikhailenko, H. S. P. Miller, O. V. Naumenko, A. V.

Nikitin, J. Orphal, V. Perevalov, A. Perrin, E. R. Polovtseva, C. Richard, M. A. H. Smith, E. Starikova, K. Sung, S. Tashkun, J. Tennyson, G. C. Toon, V. G. Tyuterev et G. Wagner, «The {HITRAN2012} molecular spectroscopic database,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer ,* vol. 130, pp. 4-50, 2013.

[50] L. S. Rothman, I. E. Gordon, R. J. Barber, H. Dothe, R. R. Gamache, A. Goldman, V. I. Perevalov, S. A. Tashkun et J. Tennyson, «HITEMP, the high-temperature molecular spectroscopic database,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 111, pp. 2139-2150, 2010.

[51] S. A. Tashkun, V. I. Perevalov, J.-L. Teffo, A. D. Bykov et N. N. Lavrentieva, «CDSD-1000, the high-temperature carbon dioxide spectroscopic databank,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 82, pp. 165-196, 2003.

[52] S. A. Tashkun et V. I. Perevalov, «CDSD-4000: High-resolution, high-temperature carbon dioxide spectroscopic databank,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 112, pp. 1403-1410, 2011.

[53] E. E. Whiting, «An empirical approximation to the Voigt profile,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 8, pp. 1379-1384, 1968.

[54] J. J. Olivero et R. L. Longbothum, «Empirical fits to the Voigt line width: a brief review,» *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer,* vol. 17, pp. 233-236, 1977.

[55] M.-Y. Perrin, P. Rivière et A. Soufiani, «Radiation Database for Earth and Mars Entry,» chez *RTO-EN-AVT-162 Non-Equilibrium Gas Dynamics - From Physical Models to Hypersonic Flights*, B. Papers presented during the AVT-162 RTO AVT/VKI Lecture Series held at the von Karman Institute, Éd., NATO Research and Technology Organisation, 2008, pp. 8.1,8.40.

[56] R. Sánchez-González, R. Srinivasan, R. D. W. Bowersox et S. W. North, «Simultaneous velocity and temperature measurements in gaseous flow fields using the VENOM technique,» *Optics letters,* vol. 36, pp. 196-198, 2011.

[57] R. Sánchez-González, R. D. W. Bowersox et S. W. North, «Vibrationally excited NO tagging by NO (A 2 Σ+) fluorescence and quenching for simultaneous velocimetry and thermometry in gaseous flows,» *Optics letters,* vol. 39, pp. 2771-2774, 2014.

[58] B. Maheu, «Généralisation de la théorie de Lorenz-Mie et applications,» 1987.

[59] A. C. Eckbreth, Laser diagnostics for combustion temperature and species, vol. 3, CRC Press, 1996.

[60] A. Lo, «Diffusion Raman spontanée pour la combustion turbulente et les plasmas,» 2012.

[61] H. Ajrouche, «Thermographie et mesures de concentrations multi-espèces par diffusion Raman spontanée pour la combustion turbulente,» 2016.

[62] F. Guichard, «Mesures 1D mono-coups multi-espèces de température et de concentration par ajustement de spectres de diffusion Raman spontanée : application dans les flammes aérobies et les oxyflammes turbulentes,» 2018.

[63] F. Berthillier, «Développement de la spectroscopie DRASC femtoseconde à sonde à dérive de fréquence pour la thermométrie haute cadence dans les milieux gazeux réactifs,» 2017.

[64] C. E. Treanor, J. W. Rich et R. G. Rehm, «Vibrational relaxation of anharmonic oscillators with exchange-dominated collisions,» *The Journal of Chemical Physics,* vol. 48, pp. 1798-1807, 1968.

[65] A. Goehlich, T. Kawetzki et H. F. Döbele, «On absolute calibration with xenon of laser diagnostic methods based on two-photon absorption,» *The Journal of chemical physics,* vol. 108, pp. 9362-9370, 1998.

[66] R. Loudon, «Quantum theory of combined first order/second order optical interference experiments,» *Optics Communications,* vol. 45, n° %16, pp. 631-366, 1983.

[67] K. Niemi, V. Schulz-Von Der Gathen et H. F. Döbele, «Absolute atomic oxygen density measurements by two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy in an RF-excited atmospheric pressure plasma jet,» *Plasma Sources Science and Technology,* vol. 14, p. 375, 2005.

[68] K. Niemi, V. Schulz-Von Der Gathen et H. F. Döbele, «Absolute calibration of atomic density measurements by laser-induced fluorescence spectroscopy with two-photon excitation,» *Journal of Physics D: Applied Physics,* vol. 34, p. 2330, 2001.

[69] M. Lesage, «MESURES DE L'OXYGÈNE ATOMIQUE DANS DES PLASMAS SIMULANT DES Mesures de l'oxygène atomique dans des plasmas simulant des rentrées atmosphériques,» 2019.

[70] R. P. Saxon et J. Eichler, «Theoretical calculation of two-photon absorption cross sections in atomic oxygen,» *Physical Review A,* vol. 34, p. 199, 1986.

[71] T. Marynowski, S. Löhle et S. Fasoulas, «Two-photon absorption laser-induced fluorescence investigation of CO 2 plasmas for mars entry,» *Journal of Thermophysics and Heat Transfer,* vol. 28, pp. 394-400, 2014.

[72] G. Dilecce, M. Vigliotti et S. De Benedictis, «A TALIF calibration method for quantitative oxygen atom density measurement in plasma jets,» *Journal of Physics D: Applied Physics,* vol. 33, p. 53, 2000.

[73] J. Bittner, K. Kohse-Höinghaus, U. Meier et T. Just, «Quenching of two-photon-excited H (3s, 3d) and O (3p 3P2, 1, 0) atoms by rare gases and small molecules,» *Chemical Physics Letters,* vol. 143, pp. 571-576, 1988.

[74] J. F. Vargas, B. Lopez, M. Panesi et M. Lino Da Silva, «Refitting of Ro-Vibrational Specific CO2 Radiation Database to Vibrationally Specific,» chez *AIAA Scitech 2019 Forum*, 2019.

[75] J. Annaloro, P. Boubert, A. Bultel, M. Jacquot, M. Lesage, M. C. Druguet, D. Vacher, S. Ménecier, E. Duffour, F. Perisse, V. Lago, N. Rembaut, A. Soufiani, P. Rivière, M. Spel, S. T. Surzhikov et D. Yatsukhno, «Rebuilding of ICOTOM radiometer data during SCHIAPERELLI martian entry.,» chez *8th International Workshop on Radiation of High Temperature Gases for Space Missions*, 2019.

[76] ELucas, *Principe de fonctionnement d'un laser,* 2011.

[77] E. M. Campbell, «Laser Programs, the first 25 years, 1972-1997,» 1998.

[78] J. P. Gordon, H. J. Zeiger et C. H. Townes, «The maser—new type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer,» *Physical Review,* vol. 99, p. 1264, 1955.

[79] T. H. Maiman et others, «Stimulated optical radiation in ruby,» 1960.

[80] A. Javan, W. R. Bennett Jr et D. R. Herriott, «Population inversion and continuous optical maser oscillation in a gas discharge containing a He-Ne mixture,» *Physical Review Letters,* vol. 6, p. 106, 1961.

[81] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys et R. O. Carlson, «Coherent light emission from GaAs junctions,» *Physical Review Letters,* vol. 9, p. 366, 1962.

[82] N. Holonyak Jr et S. F. Bevacqua, «Coherent (visible) light emission from Ga (As1- x P x) junctions,» *Applied Physics Letters,* vol. 1, pp. 82-83, 1962.

[83] G. Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner et E. J. Woodbury, «Stimulated Raman scattering from organic liquids,» *Physical Review Letters,* vol. 9, p. 455, 1962.

[84] C. J. Koester et E. Snitzer, «Fiber laser as a light amplifier,» chez *Journal of the Optical Society of America*, 1963.

[85] J. E. Geusic, H. M. Marcos et L. Van Uitert, «Laser oscillations in Nd-doped yttrium aluminum, yttrium gallium and gadolinium garnets,» *Applied Physics Letters,* vol. 4, pp. 182-184, 1964.

[86] C. K. N. Patel, «Interpretation of C O 2 Optical Maser Experiments,» *Physical Review Letters,* vol. 12, p. 588, 1964.

[87] C. K. N. Patel, «Continuous-wave laser action on vibrational-rotational transitions of C O 2,» *Physical review,* vol. 136, p. A1187, 1964.

[88] J. V. V. Kasper et G. C. Pimentel, «HCl chemical laser,» *Physical Review Letters,* vol. 14, p. 352, 1965.

[89] N. G. Basov, V. A. Danilychev, Y. M. Popov et D. D. Khodkevich, «Laser operating in vacuum region of spectrum by excitation of liquid xenon with an electron beam,» *JETP Letters,* vol. 12, pp. 329-331, 1970.

[90] M. C. Gather et S. H. Yun, «Single-cell biological lasers,» *Nature Photonics,* vol. 5, p. 406, 2011.

[91] J. R. Lakowicz, Principles of Fluorescence Spectroscopy, Springer US, 2006.

[92] B. E. Richards et K. R. Enkenhus, «Richards, B. E., & Enkenhus, K. R. (1970). Hypersonic testing in the VKI Longshot free-piston tunnel,» *AIAA Journal,* vol. 8, n° %16, pp. 1020-1025, 1970.

Résumé

Lors de l'entrée dans l'atmosphère de Mars d'un objet à vitesse hypersonique, il se crée une onde de choc détachée en amont de l'objet ainsi qu'un plasma hors équilibre à enthalpie importante et à haute intensité radiative. Si de nombreuses études ont été menées sur la protection nécessaire à apporter à l'objet pour résister à ces conditions physico-chimiques, les phénomènes chimiques liés à la recombinaison du CO_2 en arrière de l'objet sont moins bien maîtrisés ; les quantités prévues de rayonnement découlant de cette recombinaison dispose donc de larges marges d'erreur. C'est en particulier le cas dans l'infrarouge, et la raison pour laquelle le CNES a développé deux radiomètres destinés à la mesure de ces flux émis par CO et CO_2 en vol martien. Il convient donc d'étalonner ces capteurs pour la mesure des flux radiatifs en vol et d'étudier cette recombinaison sur un jet libre de plasma de CO_2 pur en laboratoire. L'étalonnage des radiomètres est fait devant une source de type corps noir ; concernant l'état du plasma de laboratoire issu d'une torche à plasma inductive, l'étude de la diffusion Raman spontanée induite par laser sur CO et de la fluorescence à deux photons induite par laser sur O permettent d'estimer les températures et densités des espèces respectivement sondées, et ainsi de jauger de l'état de recombinaison du plasma.

Mots-clés : Plasmas, Entrées atmosphériques martiennes, Spectroscopie Raman, Fluorescence induite par laser à deux photons, dissociation CO/CO_2

Abstract

When an object is entering the atmosphere of Mars at hypersonic speeds, a detached shock layer is forming in front of said object accompanied by a high-enthalpy non-equilibrium plasma with high radiative intensity. Several studies have already been conducted about the necessary protective layer for the object to withstand such physico-chemical conditions, however the chemical phenomena concerning CO_2 recombination around the back of the object are not too well known ; the radiative quantities coming from this recombination are often given with large error margins because of this. It is particularly the case in the infrared, that is why the French Space Agency developed two radiometers designed for mesuring radiative heat fluxes emitted by CO and CO_2 during a martian flight. It seems relevant to calibrate these sensors for quantitative measurements of radiative heat fluxes in flight conditions and to study the recombination of a pure CO2 plasma in laboratory conditions. The radiometers have been calibrated in front of a blackbody source ; concerning the state of the laboratory plasma created by an inductive plasma torch, a study of the laser-induced spontaneous Raman scattering on CO and of two-photon absorption laser-induced fluorescence on O have been conducted, enabling evaluation of both temperatures and densities of the probed species, and so give an estimate on the plasma recombination state.

Keywords : Plasmas, Martian atmospheric entries, Raman spectroscopy, Two-photon laser induced fluorescence, CO/CO_2 dissociation