
Caractérisation des particules de suie dans les flammes par LII

En complémentarité des mesures de profils de fraction molaires d'espèce aromatiques par LIF en jet supersonique, nous avons mis en place un dispositif expérimental de mesure de fraction volumique de suie. Il existe tout un ensemble de méthodes d'analyse (gravimétrie, diffusion Rayleigh, absorption/extinction, Cavity Ring down Spectroscopy (CRDS), Laser Induced Incandescence (LII), ...) permettant de quantifier et de caractériser les suies produites dans une flamme. Le descriptif détaillé de ces techniques est d'ailleurs disponible dans plusieurs thèses issues de notre laboratoire [SchoemaekerMoreau2002], [Bouvier2006], [Delhay2007], [Lemaire2008]. Dans le cadre de cette thèse, la caractérisation des particules de suie dans nos flammes a été effectuée par utilisation de la technique d'Incandescence Induite par Laser (Laser Induced Fluorescence (LII)). Dans ce chapitre, nous décrirons tout d'abord brièvement le principe de fonctionnement de cette technique. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental développé pour la mesure des profils de fraction volumique de suies par LII dans nos conditions de flamme.

I Principe de l'Incandescence Induite par laser (LII)

Le phénomène d'Incandescence Induite par Laser a été mis en évidence pour la première fois par Eckbreth en 1977 [Eckbreth1977], l'émission d'incandescence est alors interprétée comme un signal parasite apparaissant lors de la mesure d'espèces par diffusion Raman dans une flamme suitée. Ce n'est qu'en 1984 que Melton [Melton1984a] démontre que le signal d'incandescence induite par laser est proportionnel à la fraction volumique de suie. Il a également mis en équation le phénomène de LII et a pu montrer entre autre que la durée du signal d'incandescence peut être reliée à la taille de la particule de suie. Cette technique s'est largement développée depuis ces vingt dernières années pour la mesure de fraction volumique de suie dans les flammes et les moteurs du fait de son extrême sensibilité (de l'ordre de $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en émission (source : www.artium.com)), de son caractère non intrusif (absence de sonde de prélèvement) et de sa relative simplicité de mise en œuvre. Le principe

d'incandescence a été largement étudié dans la littérature. On peut citer à titre d'exemple les travaux de [Melton1984a], [Shaddix1996], [DeIuliis2007] et [Hadeef2010].

Le principe de la LII consiste à porter à très haute température des particules de suies présentes dans une flamme sous l'action d'un rayonnement laser. Les particules de suie se comportant comme un corps gris, celles-ci vont absorber le flux de photons incidents et atteindre des températures proches de leur température de sublimation ($\cong 4000\text{K}$). Les particules de suie ayant accumulé l'énergie laser sous forme de chaleur, se refroidissent par trois types de transfert thermique (Figure V.1) :

- La conduction de chaleur qui correspond à l'échange d'énergie sous forme de chaleur avec les molécules et particules environnantes.
- La sublimation qui correspond au changement d'état de la matière de la particule chauffée (transformation solide $\rightarrow$ gaz).
- Le rayonnement thermique qui correspond au phénomène d'incandescence.

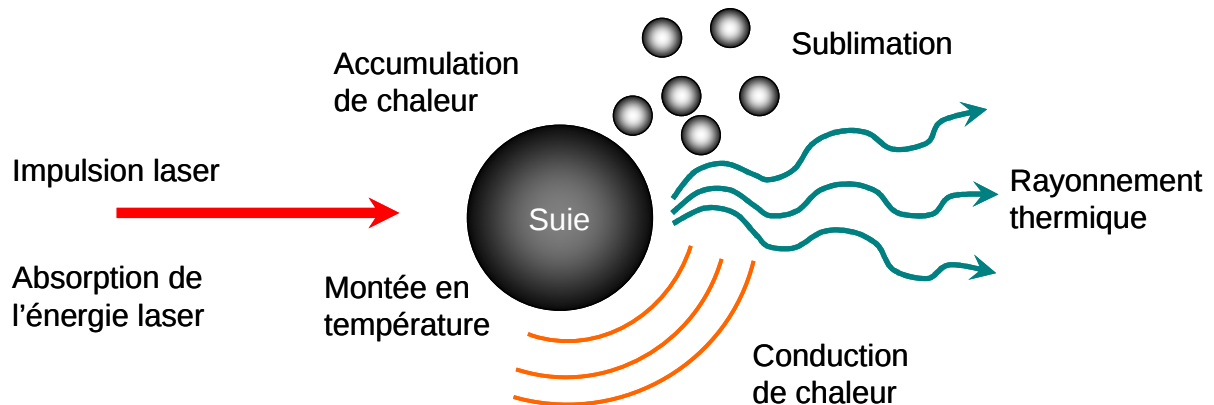


Figure V.1 : Principe de l'échange d'énergie lors de l'interaction laser-particule

I.1.1 Mise en équation du phénomène d'incandescence

Le développement qui suit s'appuie sur la présentation détaillée du phénomène LII dans la thèse de R. Lemaire [Lemaire2008]. Considérant tout d'abord que les particules de suie sont assimilables à des corps noirs, le signal LII peut s'exprimer selon la loi de Planck relative à l'émission thermique d'un corps noir dans laquelle interviennent le nombre de particules, le diamètre des particules ainsi que leurs propriétés optiques. Un corps noir est

défini comme un corps ayant la propriété d'absorber et de réémettre la totalité de l'énergie incidente sans perte par réflexion ou transmission. La puissance rayonnée par unité de surface $E(\Delta\lambda_{em}, T)$ à la température T sur une gamme spectrale d'émission $\Delta\lambda_{em}$ s'obtient à partir de la loi de Planck intégrée sur la gamme spectrale d'émission $[\lambda, \lambda + \Delta\lambda_{em}]$:

$$E(\Delta\lambda_{em}, T) = \int_{\lambda}^{\lambda + \Delta\lambda_{em}} \frac{2 \pi h c^2}{\lambda_{em}^5} \left[\exp\left(\frac{h c}{\lambda_{em} k_b T}\right) - 1 \right]^{-1} d\lambda \quad \text{équation V-1}$$

avec $E(\Delta\lambda_{em}, T)$: la puissance rayonnée ou émittance ($W.m^{-2}$)

$\Delta\lambda_{em}$: la gamme spectrale d'émission (m)

T : la température du corps noir (K)

h : la constante de Planck ($6,62.10^{-34}$ J.s)

k_b : La constante de Boltzmann ($1,38.10^{-23}$ J.K⁻¹)

c : la vitesse de la lumière (3.10^8 m.s⁻¹)

Le signal LII peut être déduit de la loi de Planck en considérant que les particules de suie sont des corps noirs dont la température $T_p(t)$ varie au cours du temps. L'autre approximation est que les particules de suie sont supposées de forme sphérique de rayon $r_p(t)$ ayant une surface émettrice de $4 \pi r_p^2(t)$. Le diamètre et la surface sont fonction du temps car le phénomène de sublimation de la particule engendre une réduction de son diamètre. Considérant un nombre N_p de particules sphériques présentes au niveau du milieu sondé, le signal d'incandescence $S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T_p(t))$ dans le cadre de l'hypothèse du corps noir peut donc s'écrire sous la forme suivante :

$$S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T_p(t)) = \int_{\lambda}^{\lambda + \Delta\lambda_{em}} N_p \frac{2 \pi h c^2}{\lambda_{em}^5} \left[\exp\left(\frac{h c}{\lambda_{em} k_b T_p(t)}\right) - 1 \right]^{-1} 4 \pi r_p^2(t) d\lambda \quad \text{équation V-2}$$

En réalité, les particules de suie se comportent comme des corps gris sous l'effet d'une impulsion laser à savoir que seulement une partie de l'énergie lumineuse absorbée est réémise sous forme de rayonnement thermique. Il faut donc intégrer dans l'équation ci-dessus leur émissivité $Q_{em}(t)$ ayant une valeur comprise entre 0 et 1. L'expression du signal LII devient alors :

$$S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T) = \int_{\lambda}^{\lambda+\Delta\lambda} Q_{em}(t) N_p \frac{2 \pi h c^2}{\lambda_{em}^5} \left[\exp\left(\frac{h c}{\lambda_{em} k_b T_p(t)}\right) - 1 \right]^{-1} 4 \pi r_p^2(t) d\lambda$$

équation V-3

L'expression de l'émissivité peut être déterminée par application de la loi de Kirchhoff qui précise que les particules sont en équilibre thermique avec le rayonnement électromagnétique. Dans ce cas, l'émissivité $Q_{em}(t)$ est égale à l'efficacité d'absorption $Q_{abs}(t)$. Lorsque la particule de suie est de dimension nanométrique (typiquement de quelques dizaines de nanomètre), l'approximation de Rayleigh spécifiant que la longueur d'onde est grande devant le rayon de la particule ($2 \pi r_p / \lambda \ll 1$) est respectée. Ainsi, le coefficient d'absorption est exprimé d'après la théorie de Rayleigh-Debye-Gans relative aux agrégats fractaux polydisperse de la manière suivante :

$$Q_{abs}(t) = \frac{4 E(m)}{\lambda_{abs}} 2 \pi r_p(t) = \frac{4 E(m)}{\lambda_{em}} 2 \pi r_p(t) = Q_{em}(t) \quad \text{équation V-4}$$

avec $E(m)$: une fonction de l'indice de réfraction des suies représentative de la morphologie des suies. $E(m)$ est défini par la relation $E(m) = -\text{Im}[(m^2 - 1)/(m + 2)]$, m étant l'indice de réfraction complexe des particules de suie.

λ_{abs} : la longueur d'onde du rayonnement absorbé (m)

λ_{em} : la longueur d'onde du rayonnement émis (m)

Le signal LII peut donc se réécrire sous cette forme :

$$S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T) = \int_{\lambda}^{\lambda+\Delta\lambda_{em}} 64 E(m) \frac{\pi^3 h c^2}{\lambda_{em}^6} \left[\exp\left(\frac{h c}{\lambda_{em} k_b T_p(t)}\right) - 1 \right]^{-1} N_p r_p^3(t) d\lambda$$

équation V-5

En introduisant l'expression de la fraction volumique de suie en fonction du rayon et du nombre de particules $f_v = \frac{4}{3} \pi N_p r_p^3$ (cf. chapitre I), l'expression du signal LII devient :

$$S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T) = \int_{\lambda}^{\lambda+\Delta\lambda} 48.E(m). \frac{\pi^2 . h.c^2}{\lambda_{em}^6} . \left[\exp\left(\frac{h.c}{\lambda_{em}.k_b.T_p(t)} \right) - 1 \right]^{-1} f_v(t).d\lambda \quad \text{équation V-6}$$

Le signal LII dépend donc de différents paramètres : T_p , $E(m)$, λ_{em} et f_v . La température atteinte par les suies T_p dépend du coefficient d'absorption des particules à la longueur d'onde considérée et de l'irradiante du faisceau laser. En effet, la puissance absorbée par les particules de suie est donnée par la relation :

$$H_a(t) = Q_{abs}(t). \pi . r_p^2(t). q(t) \quad \text{équation V-7}$$

avec $H_a(t)$: la puissance absorbée par les particules (W)

$q(t)$: l'irradiance du faisceau laser ($W.m^{-2}$)

I.1.2 Caractéristiques spectrales du signal d'incandescence

La représentation des courbes de Planck d'un corps noir présentée pour différentes températures sur la Figure V.2 montre la forte dépendance en température de l'émittance spectrale d'un corps noir. Le signal LII émis par les particules de suie est donc lui aussi directement fonction de la température atteinte par les particules. Sous l'effet de l'impulsion laser, les suies s'échauffent fortement et peuvent atteindre des températures bien supérieures à la température du milieu environnant, typiquement aux alentours de 4000K [DeIulio2007]. On peut d'ailleurs noter que ces valeurs de température sont proches de la température minimale de sublimation du carbone graphite à pression atmosphérique qui est de 3915K [Eckbreth1977]. Comme le montrent les courbes d'émittance d'un corps noir sur la Figure V.2, l'émission d'incandescence des particules de suie est très large spectralement. Par conséquent, la détection du signal LII peut se faire sur une gamme de longueur d'onde étendue allant du visible au proche infrarouge. Les détecteurs couramment utilisés (Photomultiplicateur, caméra ICCD) ayant une sensibilité dans le domaine du visible, permettent la détection de l'incandescence induite par laser des suies.

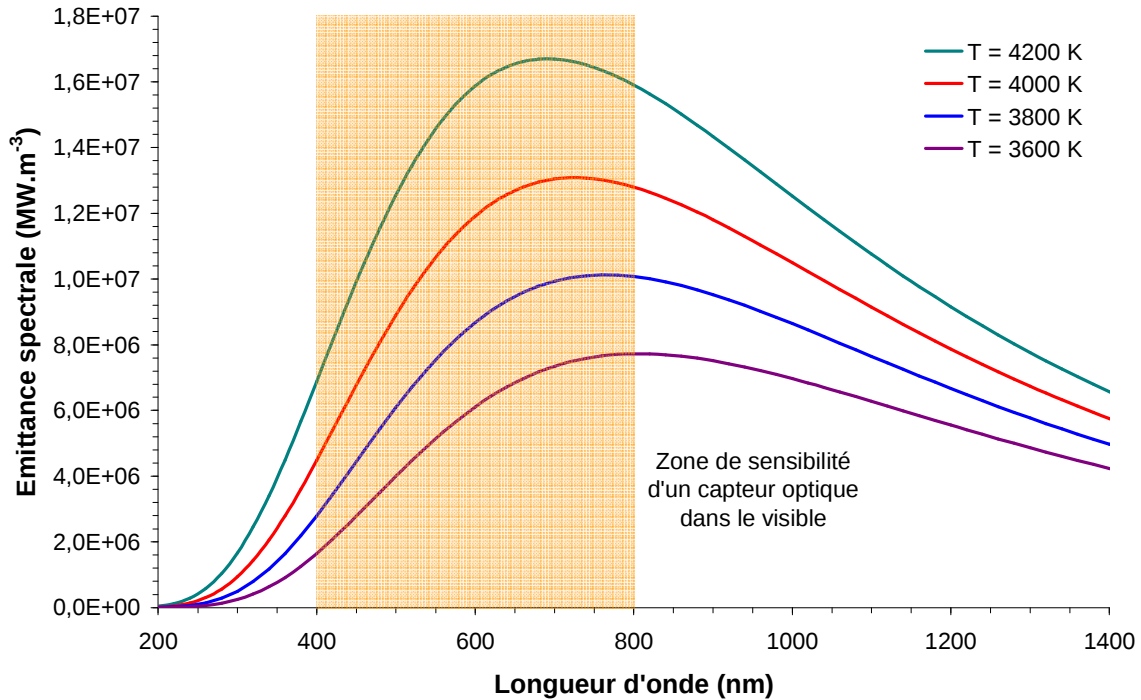


Figure V.2 : Représentation graphique de la loi de Planck pour différentes températures

Concernant l'excitation laser, celle-ci peut être réalisée sur une large gamme de longueurs d'onde à condition que l'absorption de l'impulsion laser par les particules suie soit suffisamment efficace pour émettre un rayonnement thermique. Le flux d'énergie laser employé pour chauffer les particules de suie peut être variable s'étalant sur une vaste gamme allant de $0,01 \text{ J/cm}^2$ à plus de 1 J/cm^2 (selon la longueur d'onde d'excitation). Plusieurs sources laser pulsées ou continues peuvent être utilisées pour l'excitation des particules de suie. Des sources lasers pulsées de type Nd :YAG et leurs harmoniques sont souvent utilisées pour exciter les particules de suie à $\lambda = 1064 \text{ nm}$ [Therssen2007], à $\lambda = 532 \text{ nm}$ [Appel1996], [Axelsson2000] ou à $\lambda = 266 \text{ nm}$ [Lemaire2008]. L'utilisation de rayonnement laser dans le visible peut engendrer l'apparition de signaux d'interférence provoqués par l'émission de fluorescence des HAP (importante dans le cas de flamme riche pour une excitation laser dans l'UV-visible)) ou encore des bandes de Swan de C_2 (espèce présente dans la flamme ou générée par sublimation des suies) [SchoemaekerMoreau2004]. C'est pour cette raison qu'il est recommandé de travailler dans l'infrarouge, par exemple à l'aide un laser Nd : YAG à sa longueur d'onde fondamentale ($\lambda = 1064 \text{ nm}$) de manière à éviter ces perturbations.

I.1.3 Caractéristiques temporelles du signal d'incandescence

Le signal d'incandescence mesuré par un détecteur est associé au rayonnement thermique de la particule pendant et après l'impulsion laser. Le signal LII se présente sous la forme d'une impulsion temporelle dont la durée peut atteindre plusieurs centaines de nanosecondes. La durée dépend de la température atteinte par les suies, de leurs distributions de tailles ainsi que de leurs propriétés optiques. La Figure V.3 illustre un exemple de décroissance temporelle de signal LII obtenue dans une flamme de diffusion pour différents combustibles [VanderWal1999]. La forme du signal débute avec une augmentation rapide de l'intensité du signal LII correspondant à l'augmentation de la température des particules de suie sous l'effet du pulse laser, puis d'une décroissance plus ou moins rapide du signal LII qui correspond au refroidissement des particules de suie.

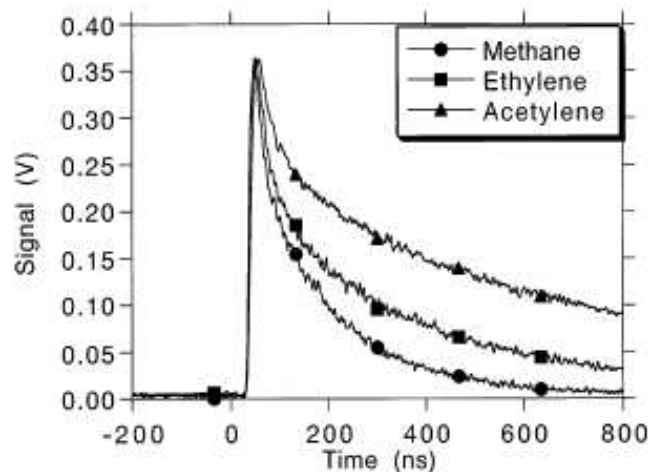


Figure V.3 : Exemple de signal temporel LII provenant de l'émission de particules de suie pour différents combustibles dans une flamme de diffusion [VanderWal1999]

La durée de la décroissance est représentative de la taille de la particule. En effet, la vitesse de refroidissement de la particule étant fonction du rapport surface/volume, une particule de suie de gros diamètre possède un temps de refroidissement plus long qu'une petite particule. C'est pour cette raison qu'il est préconisé de réaliser les mesures LII au pic de l'impulsion laser, plutôt que décalé temporellement, afin que le signal LII ne soit pas affecté par la distribution de tailles des particules de suie (et par leur refroidissement différent). Notons que ce décalage peut s'avérer nécessaire dans le cas d'un échauffement des particules dans le domaine de l'UV et du visible afin de s'affranchir de la fluorescence induite par laser

de certaines molécules présentes dans le milieu (par exemple les HAP). Dans ce cas, une prise en compte de la distribution de taille des particules de suie doit être réalisée.

II Présentation du dispositif expérimental de mesure de fraction volumique de suie par LII

Pour des raisons de commodité, les mesures de fraction volumique de suie ont été réalisées sur une réplique du brûleur basse pression identique à celui utilisé pour la mesure des espèces aromatiques par LIF en jet froid. Le dispositif expérimental de mesure de fraction volumique de suies, représenté sur la Figure V.4, est principalement constitué de 3 parties :

- Le brûleur et son enceinte pour la stabilisation des flammes
- La source laser et son dispositif optique
- Le système de collection de l'incandescence

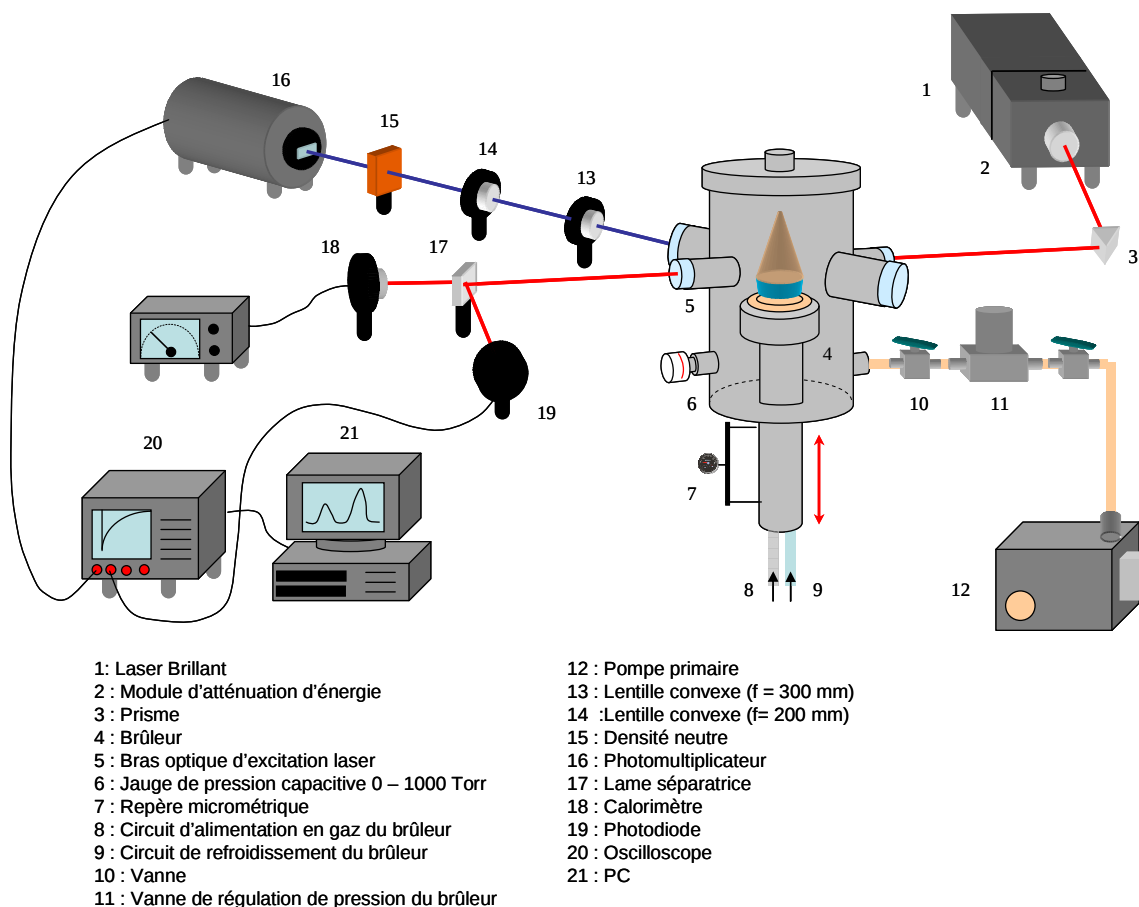


Figure V.4 : Schéma général du dispositif expérimental de mesure de fractions volumiques de suies

II.1 Le brûleur et son enceinte

Le brûleur et son enceinte possèdent les mêmes caractéristiques (dimension de l'enceinte, type de poreux, système d'injection des gaz et refroidissement du brûleur) que le dispositif utilisé dans le cadre de la mesure des HAP (cf. chapitre IV). La seule modification apportée concerne les accès optiques de l'enceinte du brûleur pour le passage du faisceau laser. Nous nous sommes aperçus de la présence de phénomènes de dépôts de particules de suie à la surface des hublots pendant les phases de mesure provoquant non seulement une perte d'énergie laser mais également une usure irréversible des hublots due au piquage sous l'effet de l'impulsion laser. Pour remédier à ce problème, chaque bras optique est équipé d'une ligne d'azote de manière à maintenir un flux d'azote devant les hublots. Ce flux isole la surface des hublots des gaz de combustion permettant ainsi de limiter le dépôt de suie à leur surface. Le flux d'azote des deux hublots est contrôlé par un régulateur de débit massique Tylan 3 slpm N₂. Le flux total passant dans les deux bras est fixée à 2 L/min pour l'ensemble des expériences.

II.2 Le système d'excitation

II.2.1 La source laser

La source laser utilisée est un laser Nd : YAG (Quantel brillant) qui génère un faisceau laser cadencé à 10 Hz à une longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm pour un diamètre de faisceau $d = 6$ mm avec une répartition en énergie de type gaussien. La puissance du laser à 1064 nm est de 400 mJ/pulse pour une durée d'impulsion de 6 ns. Celui-ci est équipé d'un atténuateur d'énergie permettant de réduire et d'ajuster l'intensité du faisceau laser en sortie. La gamme d'énergie utilisée pour les expérimentations est comprise entre 8 et 200 mJ/pulse.

II.2.2 Le dispositif optique d'excitation

Le faisceau laser d'excitation est envoyé sans focalisation au centre du brûleur, le réglage se faisant simplement à l'aide d'un prisme. En sortie de l'enceinte, le faisceau est divisé en deux par une lame séparatrice de manière à récupérer simultanément le faisceau

sur une photodiode et sur un calorimètre. La photodiode (Hamamatsu SR 220) synchronise le déclenchement de la mesure du signal LII au niveau de l'oscilloscope alors que le calorimètre (Gentec TPM-310) permet le contrôle de l'énergie laser (Figure V.4).

II.3 Le système de détection

II.3.1 Le dispositif optique de collection

La détection du signal LII s'effectue perpendiculairement au faisceau laser. Pour focaliser les signaux sur le photomultiplicateur, nous utilisons un système optique constitué de deux lentilles plan-convexe de diamètre 50 mm et de focale $f_1 = 200$ mm et $f_2 = 300$ mm (cf. Figure V.5). La première lentille est placée de manière à ce que son plan focal se situe au centre du brûleur alors que la deuxième lentille est positionnée de sorte que son plan focal se situe sur la fente d'entrée horizontale placée à l'entrée du photomultiplicateur.

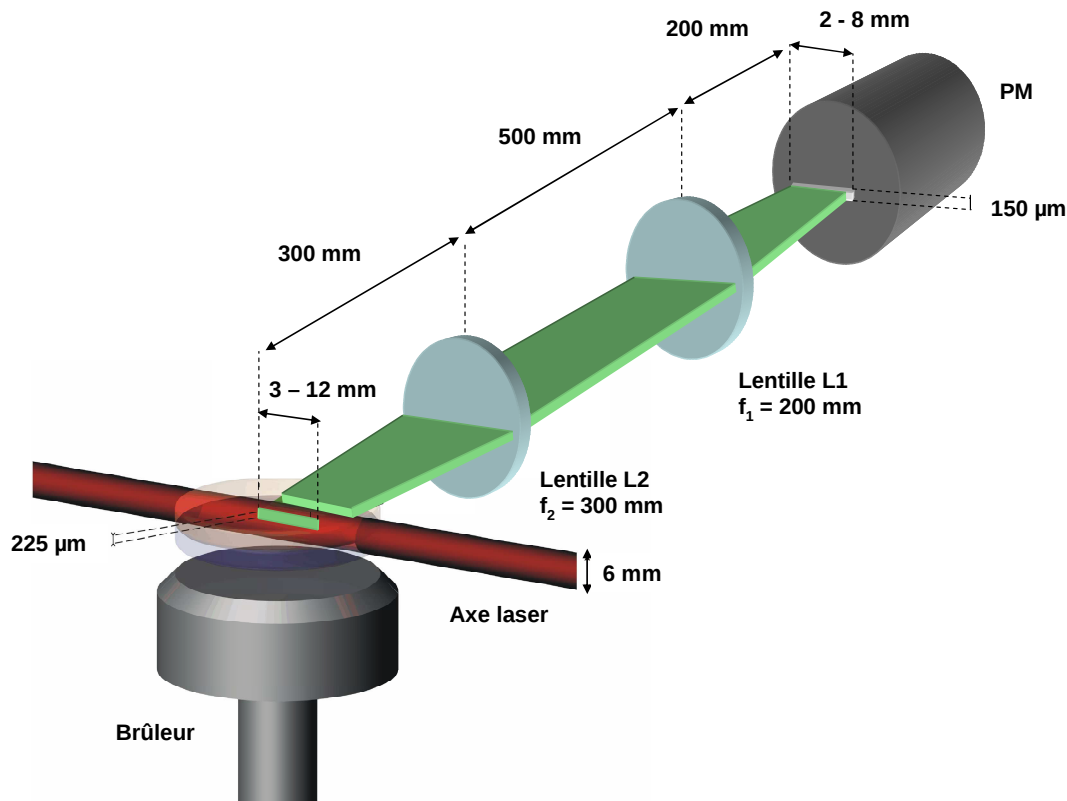


Figure V.5 : Schéma du système de focalisation

Compte tenu de la configuration du système de focalisation, le grandissement linéaire G lié à l'utilisation de ce système est donnée par la relation $G = f_2/f_1$. Dans le cadre de notre étude, le grandissement linéaire est fixe et égal à 1,50.

II.3.2 Le photomultiplicateur

La détection du signal d'incandescence des suies se fait à l'aide d'un photomultiplicateur (Photonis XP 2237B). Une fente micrométrique ajustable en largeur et hauteur est installée en entrée du photomultiplicateur parallèlement à l'axe laser de manière à limiter le volume de collection du signal d'incandescence. Dans le cadre des mesures dans la flamme de référence, la largeur de fente a été fixée à $l = 150 \mu\text{m}$ pour une hauteur de fente $h = 2 \text{ mm}$, ces paramètres étant choisis de manière à optimiser la résolution spatiale verticale tout en gardant une sensibilité suffisante pour les mesures. La profondeur de champ est quant à elle limitée par le diamètre du faisceau laser, soit $d_{\text{laser}} = 6 \text{ mm}$. Connaissant la hauteur et la largeur de fente, le diamètre du faisceau laser et le grandissement du système de focalisation, on peut estimer le volume de mesure $V = (G \times l) \times (G \times h) \times d_{\text{laser}} \cong 4,05 \text{ mm}^3$. Nous avons choisi une hauteur de fente relativement petite de manière à limiter les possibles inhomogénéités de fraction volumique de suie le long du diamètre de la flamme [Migliorini2008].

Dans le cadre de l'étude en pression et en richesse, la collection du signal d'incandescence pour de faibles pressions ou richesses a nécessité quelques changements au niveau de la collection pour compenser le manque de sensibilité du dispositif expérimental. Tout d'abord, nous avons opté pour un élargissement de la hauteur de fente à 8 mm au lieu de 2 mm, ce qui permet d'augmenter le volume de collection à environ $16,20 \text{ mm}^3$ le long du diamètre de la flamme sans dégrader la résolution spatiale verticale du dispositif.

Par ailleurs, en fonction des conditions de pression et de richesse du mélange et de la sensibilité requise par l'expérience, la tension du photomultiplicateur pouvait être ajustée entre 1400 et 2200 Volts. La linéarité du gain du photomultiplicateur en fonction de la tension appliquée a été vérifiée pour cette gamme de tension en mesurant l'évolution du signal LII dans la flamme de référence à une hauteur donnée. Celle-ci est représentée sur la Figure V.6. Le gain en signal du photomultiplicateur dans nos conditions expérimentales est de 1,7 pour

une augmentation de tension de 100 Volts dans cette gamme de travail. Enfin, pour les études aux pressions et richesses les plus élevées, des densités neutres pouvaient être ajoutées de manière à atténuer le signal d'incandescence sans changer la gamme spectrale de collection du signal d'incandescence.

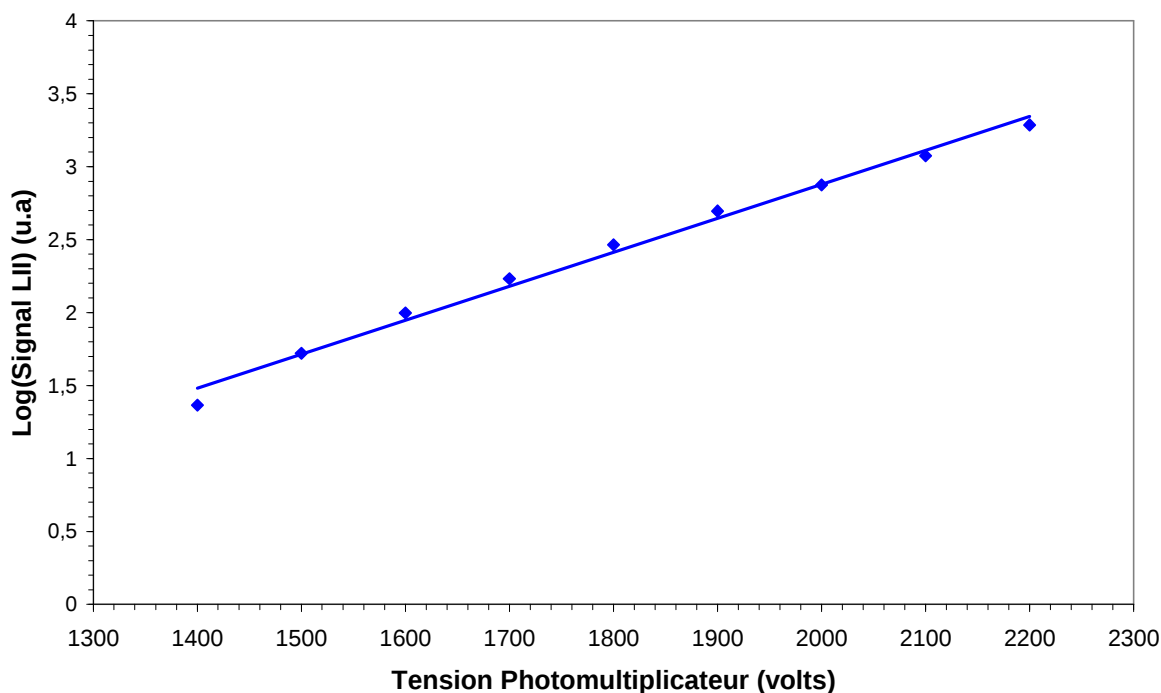


Figure V.6 : Courbe de gain du photomultiplicateur Photonis XP 2237B mesurée à partir du signal LII dans la flamme de référence.

II.3.3 Acquisition des signaux d'incandescence

La tension délivrée par le photomultiplicateur est digitalisée par un oscilloscope numérique (LeCroy WaveRunner 6050 AM : 500MHz, fréquence d'échantillonnage 5 Giga Échantillons/s) qui permet l'acquisition des signaux temporels d'incandescence. Le déclenchement de l'acquisition des signaux se fait par le biais d'une photodiode. Typiquement, une mesure nécessite un moyennage de 500 tirs laser. L'évolution du signal LII et donc de la fraction volumique de suie se fait en suivant l'évolution du pic du signal d'incandescence. Ce choix se justifie par le fait que le temps de décroissance de l'incandescence étant dépendant du temps de refroidissement des particules et en conséquence

de leur taille, une mesure intégrée sur l'aire du signal de décroissance pourrait biaiser la valeur du signal d'incandescence.

II.4 Choix de conditions expérimentales

Il existe très peu d'études de mesure de fraction volumique de suie par LII dans des flammes à basse pression dans la littérature [Appel1996]. La mise en place du système de mesure LII a donc fait l'objet d'un travail préliminaire dans la flamme de référence ($\Phi = 2.32$, $P = 200$ Torr (26.6 kPa), $Q_t = 4.35$ L.min⁻¹ et $\alpha(N_2) = 14$ %) afin de définir les conditions expérimentales (choix de l'énergie laser, de la gamme spectrale de collection du signal LII, ...) les plus adéquates pour cette étude.

II.4.1 Conditions d'excitation laser

Toutes les mesures relatives à l'analyse des particules de suie ont été effectuées en utilisant un laser pulsé ayant une distribution spatiale d'irradiance de type gaussienne à une longueur d'onde de 1064 nm. Concernant la longueur d'onde d'excitation, l'analyse des HAP par LIF révèle que ces espèces sont présentes dans les mêmes régions de la flamme que les particules de suie (cf. chapitre VII). En conséquence, nous avons opté pour une excitation dans l'infrarouge à 1064 nm afin d'éviter les interférences liées à l'émission de fluorescence des HAP apparaissant dans le cas d'excitation des suies par des sources laser dans le domaine de l'UV-visible. En absence d'interférence avec les HAP, la détection temporelle du signal LII s'effectue au pic de son intensité (prompt LII) de manière à limiter l'influence de la distribution de taille des particules sur le signal LII.

II.4.2 Choix de la gamme spectrale de collection

Considérant l'évolution des courbes d'émission de type corps noir issues de la loi de Planck (cf. Figure V.2), le spectre du rayonnement thermique d'incandescence induite par laser s'étend sur une vaste gamme spectrale de 250 nm jusqu'à plus de 4 μ m dans le cas où les particules de suie atteignent une température de 4000 K. Le maximum de rayonnement thermique des suies se situe dans le domaine du visible et du proche infrarouge

essentiellement. Considérant cela, la collection du signal a été réalisée par le biais d'un photomultiplicateur Photonis XP 2237B puisque celui-ci a une sensibilité maximale dans une gamme spectrale allant de 250 à 900 nm. L'utilisation de ce type de photomultiplicateur permet donc une mesure du rayonnement thermique des particules de suie avec une sensibilité suffisante pour notre étude. Nous avons porté une attention particulière aux sources possibles d'interférences avec la mesure du signal LII. Il apparaît que la principale source d'interférences possibles avec les signaux LII est l'émission propre des flammes provenant de la désexcitation radiative des radicaux carbonés et de l'incandescence naturelle des particules de suie. Pour palier ce problème, un profil d'émission propre de la flamme a été réalisé pour chaque condition de pression et de richesse. La tension appliquée au photomultiplicateur a ainsi été ajustée pour chaque condition de flamme de manière à ce que le signal LII ne soit pas affecté par l'émission propre de la flamme.

II.4.3 Choix de l'intensité de l'excitation laser

Le choix de l'énergie laser utilisée pour l'obtention du signal LII est un paramètre important pour la mesure de profil de fraction volumique de suie dans une flamme. Dans la littérature, la dépendance du signal LII à l'énergie laser incidente est présentée sous la forme de courbe de fluence liant le signal LII à la densité d'énergie laser ou fluence (J.m^{-2}). Dans le cas d'un faisceau laser dont la distribution spatiale d'irradiance est de type créneau ou top hat [Zizak1996], la fluence est facilement calculable connaissant l'énergie totale servant à l'échauffement des particules. Dans le cas d'un faisceau laser de type gaussien, l'énergie totale de l'impulsion est par convention divisée par la section du faisceau mesuré à $1/e^2$ de son pic d'irradiance. Dans notre cas, l'énergie laser utile est délimitée par l'image de la fente au sein de l'impulsion laser non mis en forme en aval du brûleur (cf. Figure V.5). Par souci de simplification, nous avons fait le choix d'indiquer l'énergie laser totale par pulse. Le choix de l'énergie laser dépend de la réponse LII à une impulsion laser. La Figure V.7 présente la réponse du signal LII à l'énergie laser pour différentes hauteurs dans la flamme de référence. On constate que les courbes d'énergie obtenues sont très différentes selon la position dans la flamme. Des études rapportées dans la littérature mettent en évidence que la distribution spatiale de l'énergie laser avait une influence très importante sur la forme de la courbe de fluence. Avec une impulsion gaussienne, le signal augmente rapidement à partir d'un seuil (cf. Figure V.7) pour atteindre un plateau. Au contraire, avec une impulsion de type créneau,

on peut mettre en évidence une diminution du signal à haute énergie du fait de l'existence du phénomène de sublimation [Bladh2006]. Un autre paramètre important est la longueur d'onde du laser. En effet, l'efficacité d'absorption Q_{abs} étant proportionnel à $E(m)/\lambda$, pour une même énergie incidente, une particule de suie sera chauffée avec une meilleure efficacité à basse longueur d'onde qu'à haute longueur d'onde. Ceci se traduit par des déplacements des courbes de fluence [Therssen2007]. La même remarque existe en ce qui concerne les courbes d'énergie des suies dites "chaudes" dans la flamme et "froides" à l'émission. En effet, il faudra apporter plus d'énergie laser pour chauffer des particules de suie froides [Delhay2009].

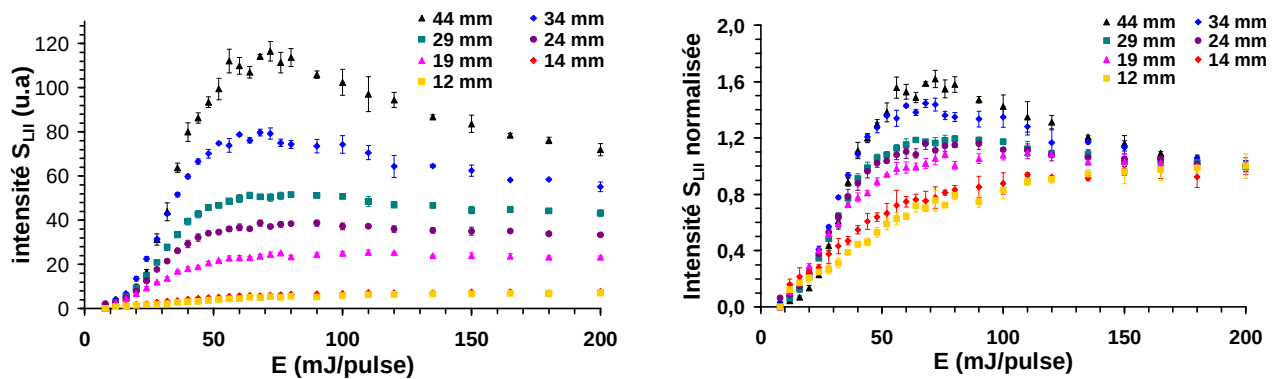


Figure V.7: Evolution des signaux LII en fonction de l'énergie laser pour différentes hauteurs dans la flamme de référence pour une excitation à $\lambda = 1064$ nm. Courbe de fluence non normalisée (A gauche) et normalisée par rapport à $E = 200$ mJ/pulse (A droite)

Les effets de température et de longueur d'onde modifient la position des courbes de fluence en fonction de l'énergie laser mais n'affecte pas leur forme. La littérature rapporte peu d'exemple de courbes de fluence et généralement celles-ci sont réalisées à une seule position dans la flamme. Lemaire dans ses travaux de thèse [Lemaire2008] a déjà observé des variations de courbes de fluence en fonction de la hauteur dans des flammes turbulentes de 7 carburants liquides. Dans une étude antérieure réalisée au laboratoire [Desgroux2008], il avait déjà été montré que la forme des courbes d'énergie dans une flamme $CH_4/O_2/N_2$ à basse pression était très dépendante de la hauteur au dessus du brûleur. Compte tenu de la variation importante des courbes d'énergie en fonction de la hauteur au dessus du brûleur dans nos flammes à basse pression, il est difficile de sélectionner une énergie laser adéquate permettant

de garantir la proportionnalité du signal LII avec la fraction volumique de suie. Nous rappelons que le signal LII s'exprime de manière simplifiée sous cette forme :

$$S_{LII}(\Delta\lambda_{em}, T) = K f_v(t) \int_{\lambda}^{\lambda+\Delta\lambda_{em}} E(m) \frac{1}{\lambda_{em}^6} \left[\exp\left(\frac{h c}{\lambda_{em} k_b T_p(t)}\right) - 1 \right]^{-1} d\lambda \quad \text{équation V-8}$$

Les courbes de fluence traduisent donc en fait l'évolution de l'intégrale en fonction de l'énergie laser. Si ces courbes sont superposables, on peut considérer que pour une énergie laser donnée, l'intégrale est identique c'est-à-dire que la température atteinte par les particules de suie est identique elle aussi. Ceci conduit donc à considérer les variations du signal LII comme étant directement égales à celles de la fraction volumique de suie. Afin de s'affranchir des fluctuations d'énergie du laser et garantir un signal LII ayant un bon rapport signal/bruit, on choisit préférentiellement une énergie laser au seuil d'apparition du plateau de la réponse LII. Dans notre cas, les courbes d'énergie pour une hauteur au dessus du brûleur de 19 mm présentent un changement de pente important aux alentours de 50-60 mJ/pulse. Au delà de cette énergie, la réponse est constante ou diminue. Au contraire, en deçà de 19 mm, le signal augmente continuellement. Notons que cette tendance est conforme aux résultats obtenus antérieurement [Desgroux2008].

Afin de sélectionner une énergie laser "optimale", nous avons réalisé plusieurs profils de signal LII pour différentes énergies laser dans la flamme de référence ($\phi = 2,32$ et $P = 200$ Torr), représentés sur la Figure V.8. Les profils sont normalisés par rapport à la valeur du signal LII à $h = 44$ mm. On constate que les profils sont en bon accord pour des énergies laser inférieures à 100 mJ/pulse. Au contraire, avec une énergie laser de 200 mJ/pulse, une très nette déformation apparaît. La bonne concordance des profils LII dans la gamme d'énergie laser 40-100 mJ/pulse permet de considérer que, bien que le signal soit dépendant de la hauteur au dessus du brûleur, la température atteinte par les suies, chauffée par le laser, est relativement constant pour une énergie laser donnée en chaque point de la flamme. Dans ces conditions, le profil LII est représentatif du profil de fraction volumique de suie. Par conséquent, nous avons appliqué dans ce travail la technique LII en utilisant une énergie laser de 50 mJ/pulse. Le signal LII est collecté large bande au pic de l'impulsion temporelle (prompt-LII). Ceci représente le meilleur compromis entre une sensibilité suffisante pour la

mesure de profil de fraction volumique de suie dans nos conditions tout en limitant les sources de perturbations liées notamment aux interférences et à la sublimation des particules de suie.

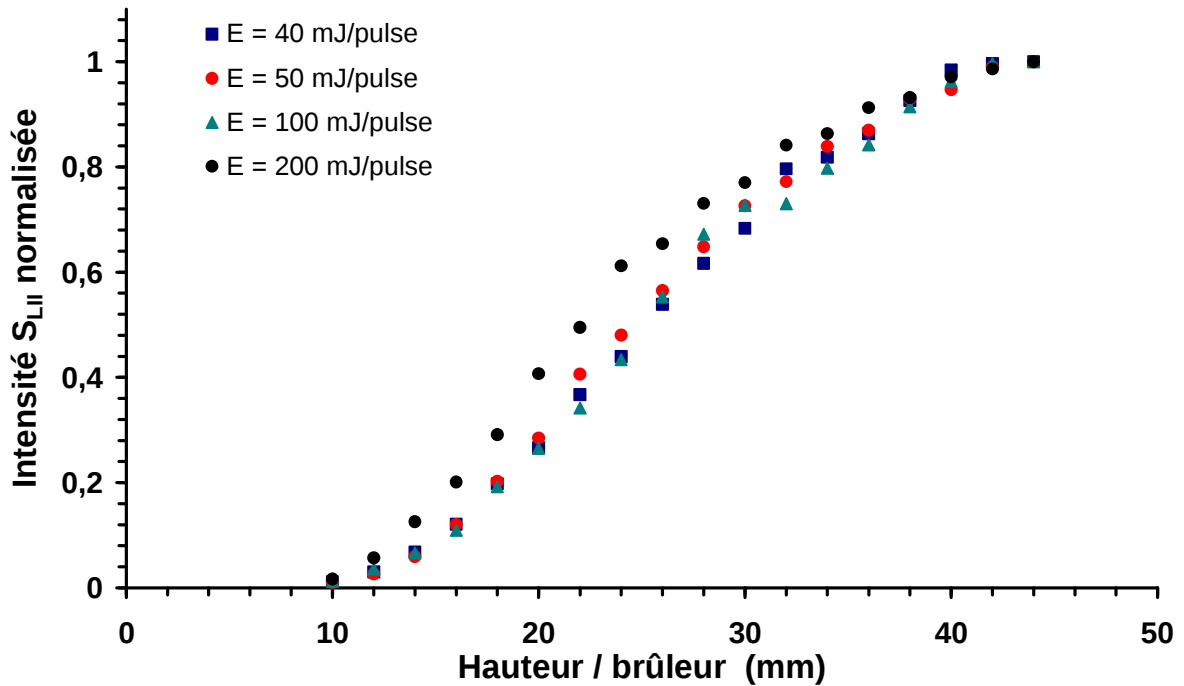


Figure V.8 : Evolution des signaux LII en fonction de la hauteur dans la flamme de référence pour différentes énergie laser à $\lambda = 1064 \text{ nm}$

II.4.4 Calibrage de la fraction volumique de suie

La technique d'Incandescence Induite par Laser n'est pas une technique directement quantitative. La quantification des signaux LII nécessite donc l'utilisation de technique complémentaire pour accéder aux valeurs absolues de fraction volumique de suie. Ce travail n'ayant pas été réalisé dans le cadre de cette thèse pour des raisons de temps, nous nous appuyons sur la valeur de fraction volumique de suie déterminée dans une étude précédente [Desgroux2008] sur ce même brûleur dans la flamme de référence.

Dans cette étude, la technique CRDS a été utilisée dans la flamme de référence pour déterminer le coefficient d'extinction K_{ext} des suies. N'ayant pas connaissance de la morphologie de particules de suie, les auteurs considèrent que les suies dans cette flamme respectent le critère de Rayleigh à savoir que le diamètre des particules de suie est très inférieur à la longueur d'onde d'excitation. Dans le cadre de cette approximation, on

considère les pertes par diffusion négligeables. Dans ce cas, le coefficient d'extinction K_{ext} est égal au coefficient d'absorption des suies K_{abs} . La fraction volumique peut ainsi être déterminée grâce au coefficient d'extinction mesuré par CRDS moyennant la connaissance de $E(m)$. La valeur de $E(m)$ utilisée pour ce travail était de $0,34 \pm 0,06$, valeur recommandée par [Schlutz2006] pour une gamme spectrale d'émission d'incandescence allant du visible à l'infrarouge. Grâce à cette technique CRDS, la valeur de fraction volumique de suie a été déterminée égale à $0,73 \pm 0,37$ ppb à une hauteur de 30 mm au dessus du brûleur dans la flamme de référence.

Afin de vérifier la cohérence de nos résultats avec ceux obtenus lors de l'étude antérieure, nous avons comparé le profil de fraction volumique de suie obtenu par Desgroux et al. dans la flamme de référence avec le profil d'évolution du signal LII mesuré dans le cadre de notre étude, dans des conditions de flamme identiques et normalisé à partir de la valeur de fraction volumique à $h = 30\text{mm}$. Ces deux profils sont présentés sur la Figure V.9.

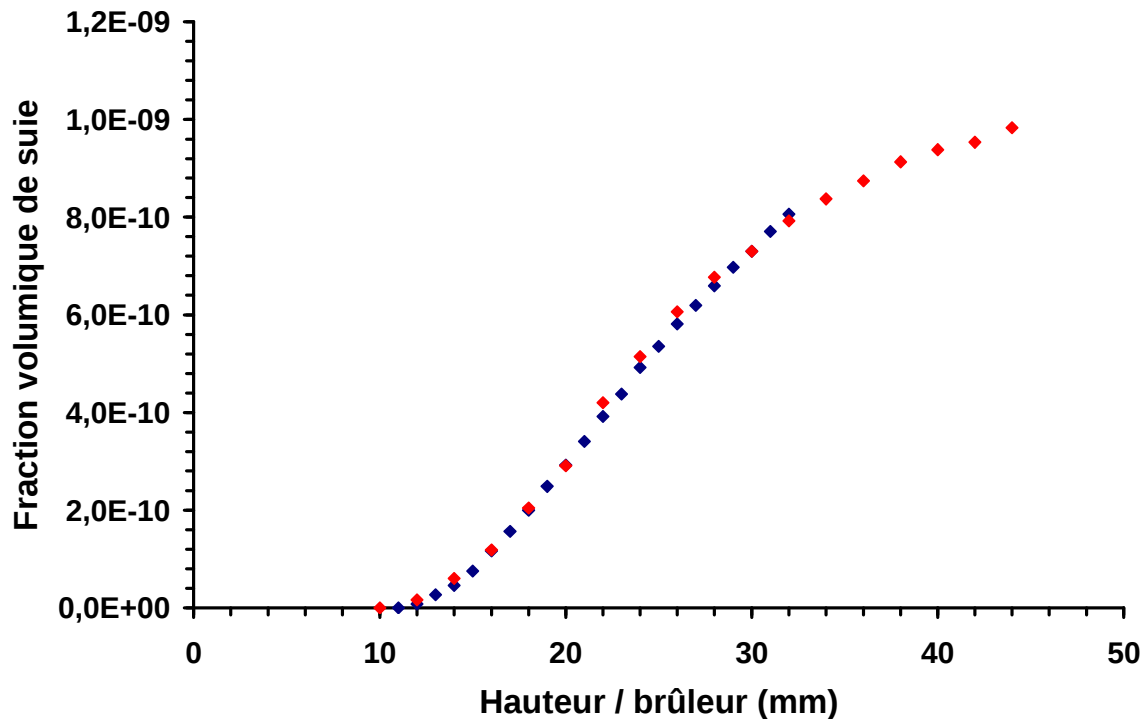


Figure V.9 : Profils de fraction volumique de suie dans la flamme de référence issu de la publication de [Desgroux2008] (en bleu) et obtenu dans le cadre de cette étude (en rouge)

Le bon accord entre les deux profils de fraction volumique de suie permet d'une part de justifier la bonne reproductibilité de ces expériences et d'autre part de conforter l'idée que nos conditions expérimentales permettent de suivre l'évolution de la fraction volumique de suie. L'ensemble des expériences de mesure de fraction volumique de suie par LII a été calibré à partir de cette valeur absolue à $h = 30$ mm. Pour cela, nous avons mesuré le profil de réponse LII pour chaque condition de flamme. Connaissant l'évolution relative de la réponse LII entre chaque condition de flamme à une hauteur donnée, nous pouvons ainsi retracer les profils de fraction volumique de suie pour chaque condition de flamme et pour chaque hauteur à partir de la valeur absolue de fraction volumique de suie.

III Conclusion

Nous avons mis en place un dispositif expérimental de mesure de fraction volumique de suie par la technique LII afin de pouvoir suivre l'évolution des particules de suies dans nos conditions de flamme et de les comparer avec les profils de fraction molaire du benzène, du naphthalène et du pyrène dosées par LIF en jet froid. Notre dispositif expérimental a fait l'objet de nombreux tests préliminaires afin de définir les conditions d'excitation et de collection de l'incandescence nécessaire pour une mesure de la réponse LII à la fois sensible (bon rapport signal/bruit) et bien représentative de l'évolution de la fraction volumique de suie (mesure prompt-LII). Grâce à ce dispositif, nous avons donc pu réaliser la mesure du profil de fraction volumique de suie pour tout un ensemble de condition de pression et de richesse dans notre flamme de méthane stabilisée afin de sonder l'influence de ses deux paramètres sur la formation des suies ainsi que leurs connexions avec les profils de fraction molaire des espèces aromatiques. Les résultats sont présentés dans le chapitre VII pour une meilleure comparaison avec les autres résultats de ce travail.