



CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA MOLECULE DE CO₂ SUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO₂, ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPARTITION RADIALE DESTEMPERATURES DANS UN PLASMA Ar-CO₂,

Essaadia Maouhoub

► To cite this version:

Essaadia Maouhoub. CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA MOLECULE DE CO₂ SUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO₂, ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPARTITION RADIALE DESTEMPERATURES DANS UN PLASMA Ar-CO₂,. Energie électrique. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 1997. Français. NNT: . tel-00174390

HAL Id: tel-00174390

<https://theses.hal.science/tel-00174390>

Submitted on 24 Sep 2007

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.

N° d'ordre : D.U. : 908

EDSPIC : 135

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
ECOLE DOCTORALE SCIENCES POUR L'INGENIEUR
DE CLERMONT-FERRAND

THESE

Présentée

pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

(Spécialité : ELECTROTECHNIQUE)

par

Essaadia MAOUHOUB

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA MOLECULE
DE CO₂ SUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO₂.
ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPARTITION RADIALE DES
TEMPERATURES DANS UN PLASMA Ar-CO₂**

Soutenue publiquement le 30 Mai 1997, devant le jury :

Monsieur BARBARIN F.

Président

Monsieur CERNOGORA G.
Monsieur GLEIZES A.

Rapporteur
Rapporteur

Monsieur COITOUT H.
Monsieur LEFORT A.
Mademoiselle PARIZET M.J.

Examineur
Examineur
Examineur

à la mémoire de mon père

à ma mère
à mon oncle
à mes frères
et mes soeurs
à toute ma famille

Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire Arc Electrique et Plasmas Thermiques (LAEPT) CNRS-UPRES-A 6069 de l'Université Blaise Pascal (Clermont-Ferrand II).

*Je tiens tout d'abord à remercier le Professeur **A. LEFORT** de m'avoir accueillie dans son laboratoire, d'avoir accepté d'examiner ce travail et de participer au jury. Je le remercie également pour ses encouragements.*

*J'exprime toute ma reconnaissance à Mademoiselle **M. J. PARIZET**, Professeur à l'Université d'Auvergne I.U.T de Clermont-Ferrand I, d'avoir accepté de diriger ce travail, de l'intérêt qu'elle a porté à mes travaux, ainsi que d'avoir consacré certains week-ends et vacances à corriger ce manuscrit, de son aide précieuse et de sa participation au jury.*

*J'exprime toute ma gratitude à monsieur **G. CERNOGORA**, Professeur à l'Université de Versailles St-quentin, d'avoir bien voulu être rapporteur et examiner ce travail avec beaucoup de soin. Ses suggestions, ses critiques et ses conseils précieux ont facilité la rédaction finale de ce manuscrit. Je le remercie également pour l'intérêt qu'il a accordé à mon travail et m'a fait l'honneur de participer à ce jury.*

*J'exprime également toute ma gratitude à Monsieur **A. GLEIZES**, Directeur de recherche au C.N.R.S. à TOULOUSE, d'avoir bien voulu juger ce travail. Je le remercie pour ses remarques et l'intérêt qu'il a porté à ce travail.*

*Mes remerciements vont aussi à Monsieur **F. BARBARIN**, Directeur de recherche au C.N.R.S. à l'Université Blaise Pascal de Clermont-Ferrand II, d'avoir accepté d'examiner ce travail et de présider le jury de ma thèse.*

*Je tiens également à remercier **H. COITOUT**, Maître de conférence à l'Université d'Auvergne I.U.T pour avoir accompagné mes travaux durant ces années et d'avoir examiné ce travail avec beaucoup de soin et participé à mon jury, je lui témoigne mes sincères remerciements.*

*J'adresse également tous mes sincères remerciements à Monsieur **M. ABBAOUI**, Maître de Conférence à l'Université d'Auvergne I.U.T, et Monsieur **P. ANDRE**, A.T.E.R., pour leurs appuis scientifiques et leurs disponibilités envers moi, et en particulier à Madame **G. FAURE**, Doctorant, pour avoir consacré un certains temps de sa thèse à calculer les spectres simulés pour mes conditions expérimentales, mais aussi pour son amitié quotidienne et sa gentillesse.*

*Mes remerciements vont particulièrement à Madame **C. MASCLAUX**, qui a bien voulu se charger d'une grande partie de la dactylographie de ce mémoire.*

*Je tiens à remercier les techniciens du laboratoire, Monsieur **P. ANDRE** pour son aide souvent précieuse, et particulièrement Monsieur **R. PELLET** pour l'intérêt porté à ce travail et pour le soin apporté à la réalisation des pièces demandées.*

Je tiens à remercier tous les membres du laboratoire, permanents et étudiants, de leur amitié, leur sympathie et pour m'avoir permis de finir ma thèse dans des conditions favorables.

Enfin, je remercie également toutes les personnes qui m'ont fait l'honneur d'assister à la soutenance. Je leur prie également d'agréer, l'expression de mon profond respect et mes sincères remerciements, ainsi qu'à toutes et à tous mes amis au Maroc et en France.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE.....	1
 CHAPITRE I - GENERALITES SUR LE RAYONNEMENT D'UN PLASMA	
I.1. PROCESSUS DE RAYONNEMENT D'ORIGINE ATOMIQUE.....	3
I.1.1. Analyse des raies d'émission	4
I.1.2. Détermination de la température T du plasma, à partir de l'intensité totale J (λ_{nm}) d'une raie spectrale	6
I.2. SPECTRES MOLECULAIRES.....	7
I.3. INTENSITE DES RAIES MOLECULAIRES.....	9
I.3.1. Probabilité de transition.....	9
I.3.2. Population d'un état émetteur.....	10
BIBLIOGRAPHIE.....	11
 CHAPITRE II - PROPRIETES THERMODYNAMIQUES D'UN PLASMA AR-CO₂	
II.1. MODELE DE CALCUL DE LA COMPOSITION D'EQUILIBRE.....	12
II.1.1. Loi des gaz parfaits.....	12
II.1.2. Loi de neutralité électrique.....	12
II.1.3. Loi de Saha-Eggert.....	13
II.1.4. Loi de Guldberg-Waage.....	14
II.1.5. Equations de proportions.....	14
II.2. FONCTIONS DE PARTITION INTERNE.....	14
II.2.1. Espèces monoatomiques.....	14
II.2.2. Fonctions de partition interne des molécules diatomiques.....	15
II.2.3. Fonctions de partition interne des espèces moléculaires triatomiques..	15
II.3. COMPOSITION D'EQUILIBRE DU PLASMA Ar-CO₂.....	16
II.3.1. Mise en équation du modèle de calcul de composition.....	16
II.3.2. Fonctions de partition internes.....	17
II.3.3. Méthode de résolution du système d'équations.....	19
II.3.4. Résultats des calculs de composition.....	22

II.4. INFLUENCE DU POURCENTAGE DE CO ₂ SUR LE CALCUL DE LA COMPOSITION DU PLASMA Ar-CO ₂	26
II.5. FONCTIONS THERMODYNAMIQUES.....	29
II.5.1. Masse volumique.....	29
II.5.2. Enthalpie massique.....	29
II.5.3. Chaleur massique à pression constante.....	30
II.5.4. Résultats et interprétation.....	30
II.5.5. Influence de la pression.....	33
BIBLIOGRAPHIE.....	39
ANNEXE A	
A.1. Principe de la méthode de Newton-Raphson.....	41
A.2. Résolution du système.....	42

CHAPITRE III - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

III.1. CHAMBRE A ARC.....	44
III.2. LE SYSTEME D'INJECTION DE GAZ.....	51
III.3. LE DISPOSITIF DE MESURE SPECTROSCOPIQUE.....	52
III.3.1. Le système optique.....	53
III.3.2. Etalonnage en longueur d'onde.....	54
III.4. SYSTEME D'ACQUISITION.....	55
III.4.1. Description et fonctionnement de l'O.M.A.....	55
III.4.2. Principe de fonctionnement de la matrice CCD.....	55
III.5. ETALONNAGE DE LA CHAINE DE DETECTION EN INTENSITE LUMINEUSE.....	57
BIBLIOGRAPHIE.....	60

CHAPITRE IV - MESURES SPECTROSCOPIQUES

IV.1. SPECTROSCOPIE D'EMISSION.....	61
IV.1.1. Méthode de l'intensité absolue d'une raie.....	62
IV.1.2. Méthode de l'intensité relative des raies (méthode de la pente de Boltzmann).....	63

IV.2. APPLICATION DE L'INVERSION D'ABEL A LA DETERMINATION DU COEFFICIENT D'EMISSION $J(r, \lambda)$ A PARTIR DES VALEURS DE LA LUMINANCE TOTALE $L(y, \lambda)$ D'UNE RAIE.....	64
IV.2.1. Méthode polynomiale.....	66
IV.2.2. Méthode des splines.....	68
IV.3. CHOIX DES RAIES.....	68
IV.4. TRAITEMENT DES VALEURS EXPERIMENTALES PAR INVERSION D'ABEL : CHOIX DE LA METHODE DE LISSAGE.....	74
IV.4.1. Vérification de la stabilité et de la symétrie de l'arc.....	74
IV.4.2. Choix de la méthode de lissage.....	79
IV.5. EVALUATION DES DIFFÉRENTES INCERTITUDES SUR LE CALCUL DE LA TEMPERATURE D'EXCITATION.....	81
IV.5.1. Influence de la probabilité de transition.....	81
IV.5.2. Influence du code de calcul de l'inversion d'Abel.....	81
IV.5.3. Influence du calcul de la surface de l'intensité de raie.....	81
IV.6. SPECTRES MOLECULAIRES EMIS PAR LE PLASMA Ar-CO ₂	83
IV.6.1. Méthode du diagramme de Boltzmann.....	83
IV.4.2. Méthode de simulation numérique des spectres moléculaires.....	84
BIBLIOGRAPHIE.....	85
ANNEXE B	
B.1. Interpolation par des fonctions splines d'ordre 2.....	86
B.2. Inversion d'Abel pour différentes fonctions test.....	89

CHAPITRE V - RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

V.1. MESURE DES PROFILS DE TEMPERATURE D'EXCITATION ATOMIQUE POUR UN PLASMA D'ARGON PUR.....	91
V.1.1. Conditions expérimentales	92
V.1.2. Détermination des profils de température à partir de la méthode absolue de raie.....	92
V.1.3. Détermination des profils de température à partir de la méthode relative de raie.....	97

V.2. RESULTATS DES PROFILS DES TEMPERATURES D'EXCITATION ATOMIQUE POUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO ₂	100
V.2.1. Conditions expérimentales et comparaison des profils de température avec les deux réseaux.....	100
V.2.2. Détermination de la composition expérimentale réelle du mélange Ar-CO ₂ à partir du calcul de la température d'excitation des raies atomiques..	102
V.2.3. Profils de température d'excitation dans le cas ou on injecte le mélange Ar-CO ₂ juste au niveau des électrodes.....	106
V.2.4. Profils de température pour différentes raies et pour un courant donné, avec les nouveaux calculs de composition.....	108
V.2.5. Influence du courant sur les profils de température d'excitation	116
V.2.6. Influence de la teneur en CO ₂ sur les profils de température d'excitation.....	127
V.3. MESURE DE LA TEMPERATURE ROTATIONNELLE DANS UN PLASMA Ar-CO ₂ A PARTIR DES SPECTRES MOLECULAIRES.....	132
V.3.1. Généralités concernant les spectres moléculaires de C ₂ (système Swan) et de CN (système violet).....	132
V.3.2. Evaluation de la température rotationnelle à partir des spectres du système de Swan de C ₂ (0,0) en utilisant le réseau 600 tr/mm.....	137
V.3.3. Evaluation de la température rotationnelle à partir des spectres moléculaires de C ₂ et de CN en utilisant le réseau 2 400 tr/mm.....	140
V.3.3.1. Evaluation de la température rotationnelle par la méthode de simulation numérique des spectres moléculaires.....	140
V.3.3.2. Détermination des températures rotationnelles par la méthode de diagramme de Boltzmann.....	145
V.4. CONCLUSION.....	148
BIBLIOGRAPHIE.....	149
CONCLUSION GENERALE.....	151

INTRODUCTION GENERALE

L'objet du travail que nous présentons est d'étudier dans le cadre de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique (E.T.L), un plasma obtenu à partir du mélange Ar-CO₂, c'est-à-dire :

- mettre en évidence la présence des différentes espèces dans le mélange Ar-CO₂ le long de la colonne d'arc,
- étudier l'influence du taux de CO₂ sur le calcul de la composition et sur les profils de température d'excitation et de rotation,
- étudier l'influence de l'intensité de courant.

Les nouveaux appareils de spectroscopie optique (matrice CCD) permettent de détecter avec une bonne résolution et d'analyser des spectres moléculaires ; on peut ainsi déterminer des températures rotationnelles, les comparer avec les températures d'excitation atomique et éventuellement en déduire des écarts à l'E.T.L. Pour réaliser cette étude, nous utilisons une chambre de type Maecker modifiée afin de disposer d'un arc stable dans le temps.

Ce travail comprend deux parties essentielles : une partie théorique et une partie expérimentale.

Dans la partie théorique, après avoir donné dans le premier chapitre quelques notions théoriques de spectroscopie sur le rayonnement d'un plasma d'arc, nous présentons dans le second chapitre le modèle de calcul de la composition d'un plasma Ar-CO₂ à partir des équations d'équilibre thermodynamique en utilisant la méthode numérique de Newton-Raphson. Les résultats des concentrations et des fonctions thermodynamiques pour différents pourcentages de CO₂ dans le mélange Ar-CO₂ sont présentés et analysés. Nous comparons les résultats obtenus dans le cas d'argon pur avec ceux concernant le mélange Ar-CO₂.

La partie expérimentale comprend la mise au point de l'expérimentation, la réalisation des mesures et leur exploitation numérique.

Dans le troisième chapitre, nous décrivons le dispositif expérimental composé essentiellement d'un appareillage spectroscopique, d'une chambre de type Maecker. A l'aide des techniques d'analyses spectroscopiques, ce dispositif nous donne accès à des mesures de luminance totale des raies émises par un ou des composants du plasma et nous permet d'en déduire par différentes méthodes les températures d'excitation des raies atomiques et les températures de rotation assimilables à celles des espèces lourdes diatomiques. Ces différentes méthodes de détermination des températures sont développées dans le quatrième chapitre.

L'exploitation expérimentale de ces travaux est présentée au cinquième chapitre. Dans une première phase, nous donnons brièvement les résultats obtenus dans le cas de l'argon pur en supposant que le plasma est en équilibre thermodynamique local. La seconde phase est constituée de l'essentiel des résultats obtenus pour les profils radiaux des températures d'excitation et de rotation afin de voir si les caractéristiques du plasma sont modifiées par la présence de la molécule de CO₂. Le problème de l'inhomogénéité du plasma est analysé. L'influence du taux de CO₂ dans le mélange ainsi que l'influence de l'intensité de courant sont

étudiés. Nous comparons les résultats des deux profils de températures (excitation et rotation). Nous discutons ensuite les causes de l'écart entre ces deux températures.

Ce sont les premières recherches effectuées au laboratoires sur ce sujet. Elles se rattachent aussi à une étude entreprise au laboratoire sur le dosage de métaux lourds et autres composés carbonés polluants issus de la combustion de charbon.

Les raisons de notre étude sont multiples ; elles sont liées d'une part aux problèmes d'environnement :

- le CO_2 est une molécule polluante ; elle contribue à l'effet de serre. D'autre part, la dissociation de cette molécule conduit à l'émission de CO lui même très nocif et réactif.

- la molécule de CO_2 se retrouve dans les produits de combustion. Elle est aussi très présente dans l'atmosphère de certaines planètes par exemple Venus.

D'autre part, les applications utilisant le CO_2 sont elles aussi très nombreuses et très variées :

- utilisation dans les traitements thermiques des déchets organiques,
- optimisation des performances des lasers Ar- CO_2 (pour obtenir un meilleur rendement de puissance lorsque l'on applique un champ magnétique),
- existence de chambres d'ionisation (utilisées pour détecter les particules en physique fondamentale) remplies du mélange Ar- CO_2 non-inflammable pour des raisons de sécurité,
- réduction du CO_2 à partir de la combustion de gaz par décharge dans des torches pour des applications industrielles concernant le traitement de gaz de combustion,
- applications métallurgiques et la synthèse du diamant,
- utilisation du CO_2 dans les mélanges gazeux d'appareils de coupure (exemple : SF_6 - CO_2).

La compréhension des mécanismes de dissociation de cette molécule CO_2 au sein d'un plasma est capitale pour toutes ces applications.

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LE RAYONNEMENT D'UN PLASMA

I.1. PROCESSUS DE RAYONNEMENT D'ORIGINE ATOMIQUE

Nous allons donner brièvement quelques rappels sur les mécanismes d'émission du rayonnement d'un plasma de décharge permettant de comprendre les bases des techniques employées pour l'analyse des raies afin de déterminer les grandeurs physiques du plasma.

De façon générale, les phénomènes régissant l'émission ou l'absorption du rayonnement d'un photon ($E = h\nu$) sont les suivants :

- passage d'un élément (atome ou ion) d'un état m lié à un état n lié (absorption ou inversement : émission),
- passage d'un électron d'un état lié à un état libre (ionisation) ou inversement (recombinaison),
- passage d'un électron d'un état libre à un autre état libre, par émission ou absorption du rayonnement selon les énergies respectives des deux états.

Ces changements d'état donnent lieu à des spectres de raies résultant de transitions dites lié-lié. Si les deux états sont libres (transition libre-libre), le spectre émis est continu et résulte de la superposition de plusieurs phénomènes tels que le rayonnement de freinage électron-ion ou électron-atome. Sur la figure (I.1) sont représentés les différents processus générateurs du rayonnement.

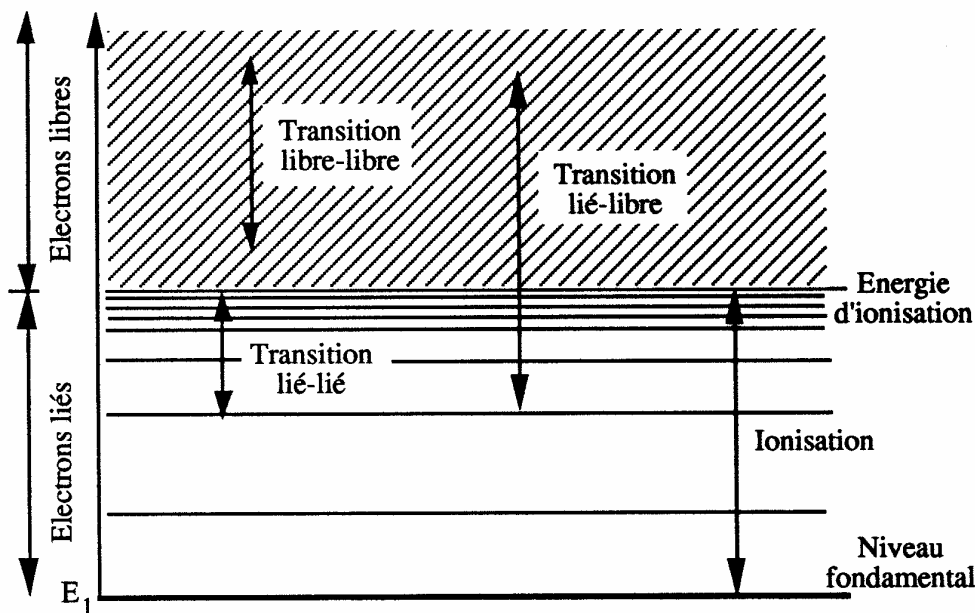


Figure (I.1) : Différentes possibilités de transitions d'un électron entre les niveaux atomiques.

I.1.1. Analyse des raies d'émission

Il y a émission de rayonnement lorsqu'un atome (ou un ion) passe d'un état excité m d'énergie E_m à un état n d'énergie inférieure E_n ($E_m > E_n$) en émettant un photon dont la fréquence est liée à la différence d'énergie $E_m - E_n$ par la constante de Planck h : $E_m - E_n = h\nu$. Le spectre en longueur d'onde de ce type de rayonnement, se présente sous forme de raies.

La figure (I.2) caractérise le profil d'une raie qui représente la variation de l'intensité $J_{nm}(\lambda)$ en fonction de la longueur d'onde. La surface de cette raie correspond à son intensité totale $J(\lambda_{nm})$ et s'exprime par la relation :

$$J(\lambda_{nm}) = \int_0^{\infty} J_{nm}(\lambda) d\lambda \quad (I-1)$$

Les causes qui peuvent élargir une raie sont diverses : élargissement naturel, effet Doppler, effet Stark.

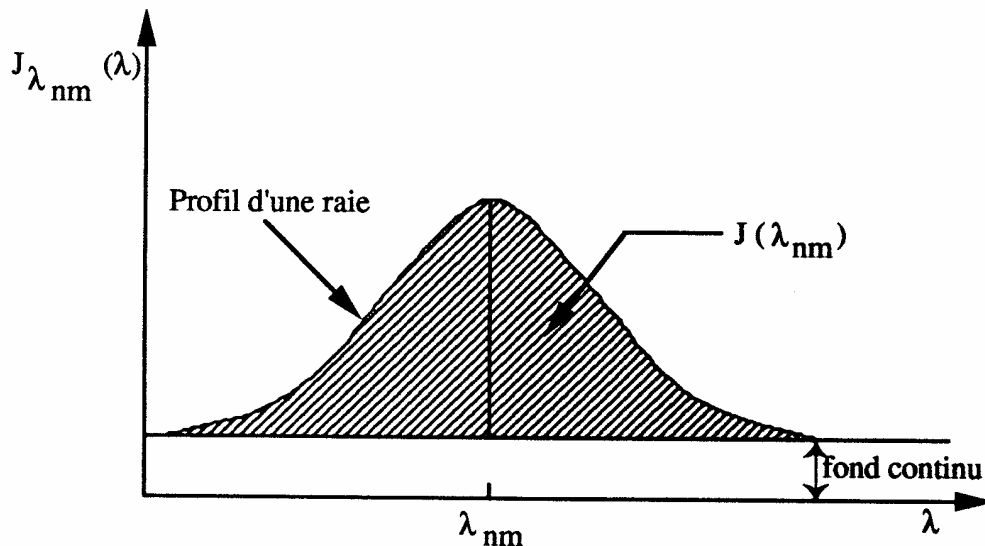


Figure (I.2) : Intensité totale de raie $J(\lambda_{nm})$.

- Elargissement naturel de la raie

Cet élargissement est dû aux durées de vie finies des états excités. Il provient de l'écart ΔE entre l'énergie la plus probable et l'énergie réelle du niveau. Il est toujours très faible ($\Delta\lambda = 10^{-5}$ nm) et généralement négligeable devant les autres types d'élargissement qui interviennent dans les plasmas thermiques.

- Elargissement par effet Stark

Le champ électrique provoque un élargissement et un déplacement de la raie émise.

Ce phénomène, appelé effet Stark, dépend de la densité électronique n_e du milieu. Cet élargissement devient prépondérant lorsque le degré d'ionisation du plasma est supérieur à 1 %, ce qui est généralement le cas des arcs électriques [I/1]. Il peut-être utilisé pour déterminer la densité électronique n_e .

Griem[I/2] a établi une relation entre la largeur à mi-hauteur d'une raie élargie par effet Stark et la densité électronique. Cette méthode est utilisée généralement pour les raies d'hydrogène et en particulier la raie H_β car elle est très élargie et peut-être utilisée dans un domaine étendu de densité électronique ($10^{14} < n_e \text{ cm}^{-3} < 10^{17}$) [I/1].

- Elargissement Doppler statistique

Cet élargissement est prépondérant dans les plasmas peu denses ($n_e < 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) et de température élevée ($T > 15.10^3 \text{ K}$) ; il est une conséquence du mouvement désordonné des atomes et des ions dans le plasma à température T . Si un atome au repos émet un rayonnement de fréquence ν_0 , lorsqu'il est animé d'une vitesse v , il émettra, à cause de l'effet Doppler [I/3], un rayonnement de fréquence apparente ν , telle que :

$$\nu = \nu_0 \left(1 - \frac{v}{c} \right) \quad (\text{I-2})$$

c : vitesse de la lumière.

L'émission $I(\nu)$ d'un profil Doppler correspond à la superposition des raies émises par chacun des atomes (ou ions) dont la distribution de vitesse est maxwellienne [I/1] :

$$I(\nu) = I(\nu_0) \exp - \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_0} \right)^2 \quad (\text{I-3})$$

avec : $\Delta\nu_0 = \frac{\nu_0}{c} \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2}$

m : masse de l'atome émetteur.

La largeur Doppler est la largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda$ du profil, elle est donnée par l'expression :

$$\Delta\lambda = 7,16.10^{-7} \lambda_0 \left(\frac{T}{M} \right)^{1/2} \quad (\text{I-4})$$

$\Delta\lambda$: largeur à mi-hauteur,

T : température en Kelvin,

M : masse moléculaire de la particule considérée en $10^{-3} \text{ kg / mole}$,

λ_0 : longueur d'onde centrale en mètre,

c : célérité de la lumière.

Les grandeurs physiques telles que la température et la densité des espèces en présence dans le plasma peuvent être déterminées à partir des caractéristiques du profil des raies émises par l'arc. Les densités numériques des espèces sont évaluées généralement à partir de la méthode de l'intensité totale de raie et à partir de l'élargissement de raie par effet Stark on en déduit la densité électronique.

La mesure de température peut s'effectuer par plusieurs méthodes, basées sur la mesure de l'intensité totale de raie $J(\lambda_{nm})$ analogue à celle présentée sur la figure (I.2).

I.1.2. Détermination de la température T du plasma, à partir de l'intensité totale $J(\lambda_{nm})$ d'une raie spectrale

La température T du plasma peut être déterminée à partir de l'intensité totale $J(\lambda_{nm})$ qui est fonction de la densité des atomes émetteurs n_m , lors du passage de l'atome d'un état excité m à un état n.

L'intensité totale $J(\lambda_{nm})$ représentée sur la figure (I.2) est donnée par la formule suivante quand il n'y a pas le phénomène de l'auto-absorption qui intervient :

$$J(\lambda_{nm}) = \frac{1}{4\pi} A_{mn} n_m h \nu_{nm} \quad (I-5)$$

$J(\lambda_{nm})$: intensité totale en m^{-3} ,
 A_{mn} : probabilité d'émission spontanée,
 h : constante de Planck,
 ν_{nm} : fréquence du photon émis.

A l'équilibre thermodynamique local, la population N_m des atomes dans l'état excité m est donnée par la loi de Boltzmann :

$$n_m(T) = g_m \frac{n(T)}{Z(T)} e^{\left(-\frac{E_m}{kT}\right)} \quad (I-6)$$

avec :

$Z(T)$: fonction de partition de l'élément émetteur
 g_m : poids statistique du niveau m (dégénérescence du niveau)
 $n(T)$: densité totale de l'espèce atomique considérée
 k : constante de Boltzmann
 E_m : énergie d'excitation du niveau m

En remplaçant l'expression de $n_m(T)$ de la relation (I-6) l'expression (I-5) devient :

$$J(\lambda_{nm}) = \frac{1}{4\pi} \frac{g_m n(T)}{Z(T)} A_{mn} h \nu_{nm} \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right) \quad (I-7)$$

A partir de l'expression (I-7), on peut déterminer la température par plusieurs méthodes ; celles que nous avons utilisées pour calculer la température sont les suivantes :

- (i) : méthode de l'intensité absolue de raie qui nécessite l'étalonnage de la chaîne de mesure.
- (ii) : méthode de l'intensité relative des raies.

Dans le chapitre IV, nous développons la détermination de la température à partir de ces deux méthodes.

La deuxième méthode sera employée à titre de comparaison car elle nous permet de donner un ordre de grandeur sur le calcul de la température sans étalonnage absolu de l'appareillage de mesure.

En ce qui concerne l'utilisation de la méthode de l'intensité absolue de raie, il est nécessaire de calculer la densité totale de l'espèce chimique considérée $n(T)$ ainsi que la fonction de partition interne $Q(T)$.

I.2. SPECTRES MOLECULAIRES

Les molécules comme les atomes peuvent être excitées sur différents états électroniques. Elles possèdent par rapport aux atomes, deux états quantiques supplémentaires : l'état de vibration des noyaux et l'état de rotation de l'ensemble ; ce fait ajouté à la superposition des systèmes de chaque molécule rend l'analyse des spectres moléculaires délicate. Dans le domaine de température élevées ($T > 10\,000$), nous considérons que les molécules triatomiques sont déjà dissociées [I/4].

L'énergie interne E_{int} d'un niveau excité de la molécule se décompose sous la forme suivante [I/5].

$$E_{int} = E_{el} + E_{vib} + E_{rot} \quad (I-8)$$

E_{el} est l'énergie électronique

E_{vib} est l'énergie de vibration d'une molécule diatomique, qui a pour expression :

$$E_{vib} = hc\omega_e \left(v + \frac{1}{2}\right) - hc\omega_e x_e \left(v + \frac{1}{2}\right)^2 + hc\omega_e y_e \left(v + \frac{1}{2}\right)^3 \dots \quad (I-9)$$

où v désigne le nombre quantique de vibration ; ω_e , $\omega_e x_e$, $\omega_e y_e$ sont des constantes spectroscopiques de l'état électronique considéré [I/5].

E_{rot} est l'énergie de rotation qui dépend fortement du couplage de rotation-vibration, et peut s'écrire :

$$E_{rot} = hcB_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2 + \dots \quad (I-10)$$

B_v et D_v sont des constantes fonctions du niveau v de vibration pour un état électronique n donné de la molécule [I/5] et J le nombre quantique de rotation.

L'énergie interne peut s'écrire sous la forme habituelle, en utilisant les termes spectraux :

$$E_{int} = hc \left(T_e + G_e(v) + F_v(J) \right) \quad (I-11)$$

T_e est l'énergie électronique par cm (à ne pas confondre avec la température électronique T_e). Les grandeurs $G_e(v)$, $F_v(J)$ sont les termes spectraux respectivement : vibrationnel et rotationnel.

Sur la figure (I.3) est représentée la décomposition des niveaux d'énergie de la molécule. On voit que pour chaque état électronique, les états vibrationnels sont quantifiés et pour chaque état vibrationnel, on définit des niveaux d'énergie quantifiés de rotation.

Donc, les spectres se présentent sous la forme de bandes. Ces bandes correspondent à un ensemble de séries de transitions entre les niveaux de vibrations de deux niveaux d'énergie électronique différents, chaque bande représentant une transition vibrationnelle donne trois groupes de raies rotationnelles, notés branches P, Q, R correspondant respectivement à $\Delta J = -1$, $\Delta J = 0$ et $\Delta J = +1$. ΔJ représente la transition rotationnelle entre deux états rotationnels J' et J'' ($\Delta J = J' - J''$).

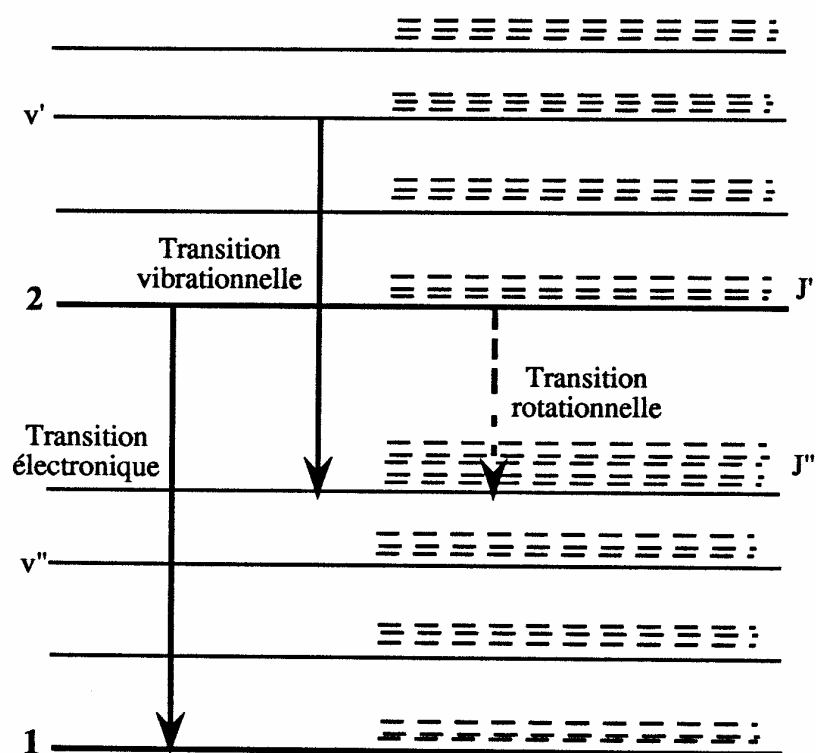


Figure (I.3) : Décomposition des niveaux d'énergie de la molécule (ou de l'ion) : illustration des différentes transitions entre ces niveaux.

—— niveau électronique ; ——— niveau vibrationnel ; - - - - niveau rotationnel

C'est à partir des intensités des spectres obtenus que l'on définit les températures de rotation et les températures de vibration moléculaire.

Du fait de la complexité de l'analyse d'un spectre moléculaire, notre étude s'est portée seulement sur certaines molécules diatomiques, ainsi que sur la détermination de la température rotationnelle moléculaire. La température rotationnelle est déterminée soit à partir de la simulation de spectres synthétiques, calculés dans l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique [I/6], soit par la méthode du diagramme de Boltzmann qui sera détaillée dans le chapitre IV.

I.3. INTENSITE DES RAIES MOLECULAIRES

Le coefficient d'émission volumique d'une raie [I/7], [I/8] est donné par l'expression :

$$I = \frac{1}{4\pi} A_{n''v''J''}^{n'v'J'} h\nu n_{n'v'J'} \quad (\text{I-12})$$

où :

$h\nu$ est l'énergie libérée lors de la transition

$n_{n'v'J'}$ est la population de l'état émetteur

$A_{n''v''J''}^{n'v'J'}$ est la probabilité de transition entre l'état $(n'v'J')$ et l'état $(n''v''J'')$

I.3.1. Probabilité de transition

La probabilité de transition peut s'écrire [I/9] :

$$A_{n''v''J''}^{n'v'J'} = A_{n''v''}^{n'v'} \cdot A_{J''}^{J'} \quad (\text{I-13})$$

avec :

$$A_{n''v''}^{n'v'} = \frac{64\pi^4}{3h} \cdot \sigma^3 \cdot \frac{S_{n''v''}^{n'v'}}{(2 - \delta_{0,\Lambda'}) (2S'+1)} \quad (\text{I-14})$$

où :

$S_{n''v''}^{n'v'}$: la force de bande qui s'exprime en fonction du facteur de Franck-Condon $q_{v'v''}$ et d'une fonction $R_e^2(\bar{r}_{v'v''})$ du "r-centroïde".

$$S_{n''v''}^{n'v'} = q_{v'v''} R_e^2(\bar{r}_{v'v''})$$

$\delta_{0,\Lambda'}$: le symbole de Kroneker ; Λ' : nombre quantique orbital

$\sigma = \frac{1}{\lambda}$: le nombre d'onde

S' : la résultante des spins des électrons de l'état électronique supérieur

$$A_{J''}^{J'} \text{ est défini par : } A_{J''}^{J'} = \frac{S_{J''}^{J'}}{2J'+1} \quad (\text{I-15})$$

$S_{J''}^{J'}$: facteur de Höln-London sans dimension.

Kovacs [I/9] donne les facteurs $S_{J''}^{J'}$ de la plupart des transitions des molécules diatomiques.

I.3.2. Population d'un état émetteur

Le nombre de molécules d'un état émetteur (n', v', J') [I/10] est donné par Kovacs [I/9] par l'expression :

$$n_{n'v'J'} = \frac{n(T)}{Q(T)} \cdot (2J'+1) \cdot \phi(J') \cdot \exp - \frac{hc}{kT} (T'_e + G'_e(v') + F'_{v'}(J')) \quad (I-16)$$

T'_e : énergie électronique en cm^{-1} ,
 $n(T)$: concentration de la molécule calculée en supposant l'E.T.L.,
 $Q(T)$: fonction de partition interne de la molécule,
 $\phi(J')$: facteur qui tient compte de la parité du niveau.

En introduisant les équations précédentes dans l'expression (I-12), le coefficient d'émission volumique devient :

$$I = \frac{16}{3} \pi^3 \cdot c \cdot \left(\frac{1}{\lambda} \right)^4 \frac{S_{n'v'}^{n'v'} \cdot S_{J'}^{J'}}{(2 - \delta_{0,\Lambda'}) (2J'+1)} \cdot \frac{n(T)}{Q(T)} \cdot \phi(J') \cdot \exp \left[- \frac{hc}{kT} (T'_e + G'_e(v') + F'_{v'}(J')) \right] \quad (I-17)$$

Actuellement la simulation numérique des spectres moléculaires est l'une des méthodes les plus utilisées pour le calcul de la température rotationnelle [I/11], [I/12], [I/13].

Nous avons choisi de faire des mesures en valeur relative et de comparer les profils de bandes enregistrés à des profils simulés pour différentes températures rotationnelles à l'aide d'un programme élaboré par Faure G. [I/6].

Une fois la superposition des deux spectres enregistrés et simulés établie on peut connaître les températures rotationnelles de la molécule considérée dans les conditions de l'expérience.

Le chapitre suivant sera l'objet de la détermination des grandeurs physiques ($n(T)$, $Q(T)$) dans le cadre de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local (ETL).

BIBLIOGRAPHIE

- [I/1] "L'arc électrique et ses applications". Ouvrage collectif. Tome 1. Editions du C.N.R.S. (1984).
- [I/2] GRIEM H.R.,
"Spectral line broadening by plasmas". Academic Press (1974).
- [I/3] CHARLOTTE PECKER-WIMEL.,
"Introduction à la spectroscopie des plasmas". Dunod (1967) Paris.
- [I/4] CHANGS J.S., BEUTH T.G.,
J.High Temp. Chem.Proc., 1 (1992) pp. 333-34.
- [I/5] HERZBERG G., "Molecular Spectra and Molecular Structure". I- Spectra of diatomic molecules, D Van Nostand Compagny, Inc, New-York (1950).
- [I/6] COITOUT H., FAURE Géraldine,
"Measurement of rotational temperature by simulated molecular spectra".
Spectroscopy Letters, Vol. 29, ISS 7 (1996) p. 22.
- [I/7] SCHADEE A., Bull. Astron. Instr. Neth., 17, n° 5 (1964) p. 311.
- [I/8] TATUM J.B., Astrophys.. J., 14 (1967) p. 21.
- [I/9] KOVACS I., "Rotational structure in spectra of diatomic molecules",
A. Hilger Ltd, London (1969).
- [I/10] BARONNET J.M., "Contribution à l'étude spectroscopique des plasmas d'azote
produits par un générateur à arc soufflé ; application à la chimie des plasmas :
synthèse des oxydes de l'azote".
Doctorat ès-Sciences Physiques, n° 78-12, Université de Limoges (1978).
- [I/11] CZERNICHOWSKI A., de IZARRA Ch. & LESUEUR H.,
"Rotational temperatures evaluation in a CO₂ + N₂ arc from partially resolved CN and
C₂ molecular bands", Int. Symp. on Plasma Chemistry (ISPC-8),
Tokyo (1987), p. 033.
- [I/12] KOULIDIATI J.,
"Etude spectroscopique des molécules carbonées diatomiques - Application au
diagnostic des plasmas d'hydrocarbures".
Doctorat d'Université, n° 185, Université d'Orléans (1991).
- [I/13] PIAR B., "Production de molécules excitées vibrationnellement et électroniquement
par pompage laser. Analyse des états formés".
Doctorat d'Université, Ecole Centrale de Paris (1993).

CHAPITRE II

PROPRIETES THERMODYNAMIQUES D'UN PLASMA Ar-CO₂

Le plasma étudié ici est un mélange d'argon et de CO₂, le gaz plasmagène étant l'argon. Le plasma est supposé à l'équilibre thermodynamique local (E.T.L) ; notamment la température T_e des électrons est supposée égale à la température T_h des particules lourdes. Cette hypothèse est sans doute vérifiée au cœur de la chambre mais vraisemblablement pas au voisinage des parois de la chambre [II/1]. A partir des lois d'équilibre de la thermodynamique (la loi de Saha, la loi de Dalton, la loi de neutralité électrique et les équations de proportions), la composition du plasma est calculée en fonction de la température et à la pression atmosphérique.

II.1. MODELE DE CALCUL DE LA COMPOSITION D'EQUILIBRE

Le système d'équations, pour calculer la composition du mélange Ar-CO₂, est obtenu à partir de :

- la loi des gaz parfaits (loi de Dalton),
- la loi de neutralité électrique,
- les lois de Saha-Eggert,
- les lois de Guldberg et Waage,
- les équations de proportions des espèces en présence.

Les lois de Saha-Eggert et les lois de Guldberg et Waage nécessitent la connaissance des fonctions de partition internes des différentes particules en présence dans le plasma.

II.1.1. Loi des gaz parfaits

Dans ce travail, on suppose que le plasma ainsi que chacun de ses constituants, obéissent à la loi des gaz parfaits, c'est-à-dire :

$$P = nkT \quad \text{avec} \quad n = \sum_{i=1}^v n_i \quad (\text{II-1})$$

v : nombre total des espèces en présence dans le plasma

P : pression totale en Pa

n_i : densité de la particule i en m^{-3}

k : constante de Boltzmann

II.1.2. Loi de neutralité électrique

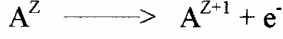
Cette loi traduit le fait qu'à l'échelle macroscopique le plasma est électriquement neutre :

$$\sum_{i=1}^v Z_i n_{i,Z_i} = 0 \quad (\text{II-2})$$

où n_{i,Z_i} est la densité des particules i de charge Z_i .

II.1.3. Loi de Saha-Eggert

Cette loi permet de déterminer le degré d'ionisation d'un milieu en équilibre thermodynamique. Soit un atome A^Z qui s'ionise en donnant un ion A^{Z+1} et un électron e^- :



La loi de Saha permet de calculer le rapport $\frac{n_e n_{A^{Z+1}}}{n_{A^Z}}$ en fonction de la température du milieu, soit :

$$S_A = \frac{n_e n_{A^{Z+1}}}{n_{A^Z}} = Q_e \left(\frac{2\pi m_e kT}{h^2} \right)^{3/2} \frac{(Q_{int})_{A^{Z+1}}}{(Q_{int})_{A^Z}} \exp\left(-\frac{E_{A^Z} - \Delta E_{A^Z}}{kT} \right) \quad (II-3)$$

avec :

S_A : constante d'équilibre d'ionisation,

Q_e : fonction de partition interne de l'électron (égale à 2),

m_e : masse de l'électron,

$n_e, n_{A^{Z+1}}, n_{A^Z}$: densités des électrons et des particules A^{Z+1} et A^Z ,

h : constante de Planck,

$(Q_{int})_{A^{Z+1}}$ et $(Q_{int})_{A^Z}$: fonctions de partition internes des espèces A^{Z+1} et A^Z ,

E_{A^Z} : énergie nécessaire à la particule A pour passer de l'état d'ionisation (Z) à l'état d'ionisation (Z+1),

ΔE_{A^Z} : abaissement de l'énergie d'ionisation qui est dû à l'interaction coulombienne du plasma au niveau microscopique.

Griem [II/2] a montré que dans un plasma relativement dense, les particules ne sont plus indépendantes. Il faut tenir compte de l'abaissement du potentiel d'ionisation ΔE_{A^Z} d'un atome ou d'un ion dû aux interactions entre les différentes particules.

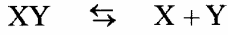
ΔE_{A^Z} est calculé par l'expression proposée par Capitelli et al. [II/3] :

$$\Delta E_{A^Z} = 2 \left(Z_{A^Z} + 1 \right) e^3 \left(\frac{\pi}{kT} \right)^{1/2} \left(n_e + \sum_i Z_i^2 n_i^Z \right)^{1/2} \quad (II-4)$$

n_i^Z est la densité totale de particules lourdes i, Z fois chargées et Z_{A^Z} le nombre de charge de l'espèce A^Z .

II.1.4. Loi de Guldberg-Waage

Cette équation est relative à la réaction de dissociation d'une molécule qui peut se produire sous l'effet de collisions. Dans le cas de la dissociation d'une molécule diatomique ou polyatomique, l'équilibre chimique se traduit par :



et par l'équation d'équilibre :

$$K_{XY} = \left(\frac{n_X n_Y}{n_{XY}} \right) = \left(\frac{2\pi kT}{h^2} \frac{m_X m_Y}{m_{XY}} \right)^{3/2} \frac{(Q_{int})_X (Q_{int})_Y}{(Q_{int})_{XY}} \exp\left(-\frac{E_d}{kT}\right) \quad (II-5)$$

avec : $n_X, m_X, (Q_{int})_X$: densité, masse et fonction de partition interne de l'espèce X,
 E_d : énergie de dissociation de la molécule XY,
 K_{XY} : constante d'équilibre de dissociation.

La réaction la plus courante est la réaction à trois corps à la pression atmosphérique :



II.1.5. Equations de proportions

Elles expriment le rapport des proportions en éléments de base du plasma. Dans notre étude nous définissons le rapport de proportion des différentes espèces au paragraphe II.3.1.

L'évaluation des constantes d'équilibre d'ionisation (S_A) et de dissociation (K_{XY}), définies par les expressions (II-3) et (II-5), nécessite la connaissance des fonctions de partition internes des espèces chimiques du plasma.

II.2. FONCTIONS DE PARTITION INTERNE

Les seules données nécessaires à la résolution du système d'équations, pour calculer la composition du plasma, sont les fonctions de partition internes (Q_{int}) des diverses espèces, elles dépendent de la température. Elles peuvent être déterminées soit à partir de la littérature par lissage numérique de valeurs tabulées, soit à l'aide des formules que nous allons exposer.

II.2.1. Espèces monoatomiques

Les fonctions de partition internes des espèces atomiques se calculent par une sommation sur tous les niveaux d'énergie E_n de poids statistiques g_n :

$$Q_{int}(T) = \sum_n g_n \exp\left(-\frac{E_n}{kT}\right) \quad (II-6)$$

La difficulté rencontrée dans l'évaluation de $Q_{int}(T)$ réside dans le fait que, pour une particule non perturbée, c'est-à-dire isolée, cette somme (II-6) peut diverger. On se limite à $E_n < E_i - \Delta E_i$. E_i est l'énergie d'ionisation de la particule.

En général, ces fonctions de partition internes sont connues et tabulées en fonction de la température et de l'abaissement de l'énergie d'ionisation ΔE_i [II/4].

II.2.2. Fonctions de partition interne des molécules diatomiques

La fonction de partition interne dans le cas des molécules diatomiques peut être approximée par la sommation du produit de trois fonctions de partition : électronique Q_e , vibrationnelle Q_v et rotationnelle Q_r de la molécule :

$$Q_{\text{int}}(T) = \sum_e Q_e \times Q_v \times Q_r \quad (\text{II-7})$$

A partir d'un oscillateur harmonique et d'un rotateur rigide, en première approximation, Herzberg [II/5] propose d'écrire la fonction de partition Q_{int} pour l'état électronique e de la molécule, sous la forme :

$$Q_{\text{int}}(T) = \sum_e \frac{kT}{hc B_e \sigma} \times \frac{g_e \exp\left(-\frac{E_e}{kT}\right)}{\left[1 - \exp\left(-\frac{hc\omega_e}{kT}\right)\right]} \quad (\text{II-8})$$

avec :

g_e , E_e , B_e et ω_e : poids statistique, l'énergie, la constante de rotation et la constante de vibration de l'état électronique e de la molécule,

σ : facteur de symétrie qui prend la valeur 1 pour les molécules hétéronucléaires et la valeur 2 pour les molécules homonucléaires,

c : célérité de la lumière.

$$\text{et } B_e \cong \beta_e - \frac{\alpha_e}{2}$$

Les valeurs des constantes spectroscopiques de certaines molécule β_e et α_e , pour chaque état électronique e des espèces diatomiques, sont tabulées par Herzberg [II/5]. Pour d'autres particules diatomiques, les valeurs des différentes constantes sont données dans les tables de Janaf [II/6] ou de Rosen [II/7].

II.2.3. Fonctions de partition interne des espèces moléculaires triatomiques

Comme nous l'avons signalé précédemment (paragraphe I.2 du chapitre I), pour des températures élevées ($T > 10\,000\text{ K}$), nous supposons que les molécules triatomiques sont déjà dissociées [II/8].

De ce fait, nous avons calculé la fonction de partition interne de CO_2 à partir de l'énergie libre massique de Gibbs (potentiel chimique) [II/6] :

$$\mu_q^0 = -kT \ln \left[\frac{kT}{P} \left(\frac{2\pi m_q kT}{h^2} \right)^{3/2} \right] - kT \ln (Q_{\text{int}}^q) + e_{\text{oq}} \quad (\text{II-9})$$

où e_{oq} est l'enthalpie de formation par rapport à un référentiel d'énergie donné de la particule q la température de référence est $T_r = 298,15\text{ K}$ [II/6].

II.3. COMPOSITION D'EQUILIBRE DU PLASMA Ar-CO₂

La composition du plasma d'arc Ar-CO₂ est déterminée à partir des lois d'équilibre de la thermodynamique. Elle donne des résultats variant selon la pression, la température et la proportion relative de CO₂ dans le mélange.

Tous les calculs sont faits à la pression atmosphérique pour des températures comprises entre 4 000 K et 30 000 K, pour différentes valeurs de la teneur en CO₂, le plasma étant supposé à l'équilibre thermodynamique local. Pour calculer la composition du mélange Ar-CO₂, dans ce domaine de températures, il faut construire un système constitué de n équations linéairement indépendantes où le nombre n correspond au nombre d'espèces chimiques prises en compte dans la gamme de température considérée.

Les espèces prises en compte dans le plasma sont :

- les électrons : e^-
- les molécules et ions moléculaires : CO₂, C₂, CO, O₂, O₂⁺, CO⁺
- les atomes et ions atomiques : Ar, Ar⁺, Ar⁺⁺, C, C⁺, C⁺⁺, O, O⁺, O⁺⁺

II.3.1. Mise en équation du modèle de calcul de composition

Compte tenu des hypothèses considérées dans cette étude, les lois déjà énoncées peuvent être appliquées au plasma de mélange Ar-CO₂.

- Loi des gaz parfaits

La relation (II-1) nous donne comme une première équation :

$$P = n kT \quad (II-10)$$

avec :

$$n = n_e + n_{Ar} + n_{Ar^+} + n_{Ar^{++}} + n_C + n_{C^+} + n_{C^{++}} + n_{C_2} \\ + n_O + n_{O^+} + n_{O^{++}} + n_{O_2} + n_{O_2^+} + n_{CO} + n_{CO^+} + n_{CO_2}$$

- Loi de neutralité

A partir de la relation (II-2) on obtient l'équation suivante :

$$n_e = n_{Ar^+} + 2n_{Ar^{++}} + n_{C^+} + 2n_{C^{++}} + n_{O^+} + 2n_{O^{++}} + n_{O_2^+} + n_{CO^+} \quad (II-11)$$

- Loi de Saha-Eggert

Les valeurs des énergies d'ionisation nécessaires au calcul des constantes $S_i(T)$ et les références bibliographiques correspondantes sont regroupées dans le tableau II.1 pour les différentes réactions prises en compte.

- Loi de Guldberg-Waage

La relation (II-5) permet de définir les réactions de dissociation de molécules diatomiques ; le tableau II.1 résume les données nécessaires pour le calcul des constantes $K_i(T)$ en fonction de la température T, ainsi que les énergies de formation des espèces en présence dans le mélange.

- Equations de proportions

Elles sont données par les relations suivantes :

$$\alpha = \frac{n_{Ar} + n_{Ar^+} + n_{Ar^{++}}}{n_C + n_{C^+} + n_{C^{++}} + 2n_{C_2} + n_{CO} + n_{CO^+} + n_{CO_2}} \quad (II-12)$$

$$\beta = \frac{n_C + n_{C^+} + n_{C^{++}} + 2n_{C_2} + n_{CO} + n_{CO^+} + n_{CO_2}}{n_O + n_{O^+} + n_{O^{++}} + 2n_{O_2} + 2n_{O_2^+} + n_{CO} + n_{CO^+} + 2n_{CO_2}} \quad (II-13)$$

α : définit le rapport entre les densités numériques de toutes les espèces chimiques de l'argon et celles contenant du carbone.

β : représente le rapport entre les densités numériques de toutes les espèces chimiques de carbone et celles contenant de l'oxygène. Dans la molécule de CO_2 on a un atome de carbone et deux atomes d'oxygène $\left(\beta = \frac{1}{2}\right)$.

Les équations établies ci-dessus nécessitent la connaissance des fonctions de partition interne des espèces chimiques en présence dans le mélange du plasma Ar- CO_2 .

II.3.2. Fonctions de partition internes

D'une manière générale, les fonctions de partition internes des particules sont soit connues et tabulées par divers auteurs et sont données sous forme de polynômes en fonction de la température, soit calculées en utilisant les relations établies dans le paragraphe II.2 pour chaque espèce : atomique, diatomique, triatomique.

- Espèces monoatomiques

Pour les atomes ou ions atomiques Ar, Ar^+ , Ar^{++} , O, O^+ , O^{++} nous avons utilisé les tables de Capitelli et al. [II/14]. Pour les autres atomes (C , C^+ , C^{++}) on obtient leurs fonctions de partition internes à partir des tables de Drawin [II/4].

- Espèces diatomiques

Pour les espèces diatomiques O_2 , O_2^+ nous avons utilisé les valeurs données par Capitelli [II/14] ; pour C_2 , CO, CO^+ les valeurs sont calculées par la relation (II-8), en utilisant comme constante spectroscopique pour C_2 celle de Janaf [II/6] ; pour CO et CO^+ , nous avons utilisé les données de Rosen [II/7].

- Espèces triatomiques

A partir de la formule (II-9) nous avons calculé la fonction de partition interne de CO_2 en utilisant les valeurs du potentiel chimique tabulées par Janaf [II/6].

Tableau II.1 : Energie de formation des espèces, réactions et constantes d'équilibre correspondantes

N°	Réactions	Constantes d'équilibre	Energie (eV)	Références Bibliographiques
1	$\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^+ + \text{e}^-$	$S_1(T) = \frac{n_e n_{\text{Ar}^+}}{n_{\text{Ar}}}$	15,755	[II/9]
2	$\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ar}^{++} + \text{e}^-$	$S_2(T) = \frac{n_e n_{\text{Ar}^{++}}}{n_{\text{Ar}^+}}$	27,62	[II/9]
3	$\text{C} \rightarrow \text{C}^+ + \text{e}^-$	$S_3(T) = \frac{n_e n_{\text{C}^+}}{n_{\text{C}}}$	11,259	[II/10]
4	$\text{C}^+ \rightarrow \text{C}^{++} + \text{e}^-$	$S_4(T) = \frac{n_e n_{\text{C}^{++}}}{n_{\text{C}^+}}$	24,381	[II/10]
5	$\text{O} \rightarrow \text{O}^+ + \text{e}^-$	$S_5(T) = \frac{n_e n_{\text{O}^+}}{n_{\text{O}}}$	13,617	[II/10]
6	$\text{O}^+ \rightarrow \text{O}^{++} + \text{e}^-$	$S_6(T) = \frac{n_e n_{\text{O}^{++}}}{n_{\text{O}^+}}$	35,146	[II/10]
7	$\text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{e}^-$	$S_7(T) = \frac{n_e n_{\text{O}_2^+}}{n_{\text{O}_2}}$	12,2	[II/5]
8	$\text{CO} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{e}^-$	$S_8(T) = \frac{n_e n_{\text{CO}^+}}{n_{\text{CO}}}$	14,013	[II/11]
9	$\text{C}_2 \rightarrow \text{C} + \text{C}$	$K_1(T) = \frac{n_{\text{C}} n_{\text{C}}}{n_{\text{C}_2}}$	6,16	[II/7]
10	$\text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}$	$K_2(T) = \frac{n_{\text{O}} n_{\text{O}}}{n_{\text{O}_2}}$	5,14	[II/12]
11	$\text{CO} \rightarrow \text{C} + \text{O}$	$K_3(T) = \frac{n_{\text{C}} n_{\text{O}}}{n_{\text{CO}}}$	11,096	[II/12]
12	$\text{CO}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{O}$	$K_4(T) = \frac{n_{\text{CO}} n_{\text{O}}}{n_{\text{CO}_2}}$	5,2	[II/13]

II.3.3. Méthode de résolution du système d'équations

Le système ainsi constitué par les expressions des équations (II-10) à (II-13) est un système non linéaire de n équations à n inconnues ; par substitution, en utilisant les relations d'ionisation S_i et de dissociation K_i , le système peut être réduit à un système non linéaire en fonction des concentrations n_e , n_{Ar} , n_C , n_O :

$$\left. \begin{aligned} & 2 - \frac{P}{kT} \times \frac{1}{n_e} + \frac{n_{Ar}}{n_e} + \frac{n_C}{n_e} + \frac{n_O}{n_e} - \frac{n_{Ar}}{n_e} \times \frac{S_1(T)}{n_e} \cdot \frac{S_2(T)}{n_e} \\ & - \frac{n_C}{n_e} \times \frac{S_3(T)}{n_e} \times \frac{S_4(T)}{n_e} - \frac{n_O}{n_e} \times \frac{S_5(T)}{n_e} \times \frac{S_6(T)}{n_e} + \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_C}{K_1(T)} \\ & + \frac{n_O}{n_e} \times \frac{n_O}{K_2(T)} + \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_O}{K_3(T)} + \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_O}{K_3(T)} \times \frac{n_O}{K_4(T)} \times \frac{n_O}{n_e} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (II-14)$$

$$\left. \begin{aligned} & -1 + \frac{n_{Ar}}{n_e} \times \frac{S_1(T)}{n_e} + 2 \times \frac{n_{Ar}}{n_e} \times \frac{S_1(T)}{n_e} \times \frac{S_2(T)}{n_e} + \frac{n_C}{n_e} \times \frac{S_3(T)}{n_e} \\ & + 2 \times \frac{n_C}{n_e} \times \frac{S_3(T)}{n_e} \times \frac{S_4(T)}{n_e} + \frac{n_O}{n_e} \times \frac{S_5(T)}{n_e} + 2 \times \frac{n_O}{n_e} \times \frac{S_5(T)}{n_e} \times \frac{S_6(T)}{n_e} \\ & + \frac{n_O}{n_e} \times \frac{n_O}{n_e} \times \frac{S_7(T)}{K_2(T)} + \frac{n_C}{n_e} \times \frac{S_8(T)}{n_e} \times \frac{n_O}{K_3(T)} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (II-15)$$

$$\left. \begin{aligned} & \alpha \times \frac{n_C}{n_e} \left(1 + \frac{S_3(T)}{n_e} \right) + \alpha \times \frac{n_C}{n_e} \times \frac{S_3(T)}{n_e} \times \frac{S_4(T)}{n_e} + 2\alpha \times \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_C}{K_1(T)} \\ & + \alpha \times \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_O}{K_3(T)} + \alpha \times \frac{n_C}{n_e} \times \frac{n_O}{K_3(T)} \times \frac{S_8(T)}{n_e} + \alpha \times \frac{n_C}{K_3(T)} \times \frac{n_O}{K_4(T)} \times \frac{n_O}{n_e} \\ & - \frac{n_{Ar}}{n_e} \left(1 + \frac{S_1(T)}{n_e} \right) - \frac{n_{Ar}}{n_e} \times \frac{S_1(T)}{n_e} \times \frac{S_2(T)}{n_e} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (II-16)$$

$$\left. \begin{aligned}
& \beta \times \frac{n_o}{n_e} \left(1 + \frac{S_5(T)}{n_e} \right) + \beta \times \frac{n_o}{n_e} \times \frac{S_5(T)}{n_e} \times \frac{S_6(T)}{n_e} + 2\beta \times \frac{n_o}{n_e} \times \frac{n_o}{K_2(T)} \\
& + 2\beta \times \frac{n_o}{n_e} \times \frac{n_o}{K_2(T)} \times \frac{S_7(T)}{n_e} + \beta \times \frac{n_c}{n_e} \times \frac{n_o}{K_3(T)} + \beta \times \frac{n_c}{n_e} \times \frac{n_o}{K_3(T)} \times \frac{S_8(T)}{n_e} \\
& + 2\beta \times \frac{n_c}{K_3(T)} \times \frac{n_o}{K_4(T)} \times \frac{n_o}{n_e} - \frac{n_c}{K_3(T)} \times \frac{n_o}{K_4(T)} \times \frac{n_o}{n_e} - \frac{n_c}{n_e} \times \frac{n_o}{K_3(T)} \\
& - \frac{n_c}{n_e} \times \frac{n_o}{K_3(T)} \times \frac{S_8(T)}{n_e} - \frac{n_c}{n_e} \left(1 + \frac{S_3(T)}{n_e} \right) \\
& - \frac{n_c}{n_e} \times \frac{S_3(T)}{n_e} \times \frac{S_4(T)}{n_e} - 2 \frac{n_c}{n_e} \times \frac{n_c}{K_1(T)} = 0
\end{aligned} \right\} \quad (II-17)$$

Ce système d'équations est linéarisé en utilisant les densités n_e , n_{Ar} , n_C , n_O comme paramètres ajustables, et résolu par une méthode itérative de Newton-Raphson [II/15], décrite dans l'annexe A.1.

Les densités n_e , n_{Ar} , n_C , n_O sont tout d'abord déterminées ce que nous avons expliquées dans l'annexe A ; les densités des autres espèces du plasma sont ensuite déduites en utilisant les relations d'ionisation S_i et de dissociation K_i .

Le programme de calcul (annexe A.2) a été testé sur un mélange plasmagène Ar-O₂ connu (50 % Ar, 50 % O₂). Nos résultats concernant le mélange (50 % Ar, 50 % O₂) sont en bon accord avec ceux obtenus par d'autres auteurs : Capitelli et al. [II/3] et André P. [II/16]. Nous donnons les résultats dans le tableau (II.1) pour trois valeurs de température (5000 K, 10 000 K, 15 000 K). Nous remarquons une légère différence pour les concentrations des particules atomiques ($n_i > 10^{18}$). Cette différence provient du fait que ces deux auteurs prennent en compte de l'écart par rapport à la loi de Dalton ; le nombre de particules considérées et la méthode numérique employée sont aussi différentes. L'écart observé pour la molécule de O₂ est plus marqué, ceci s'explique par la méthode employée pour le calcul de la fonction de partition interne des particules diatomiques [II/17].

n_i (m^{-3})	Capitelli et al [II/3]				P.André [II/16]				Cette étude		
	5000 K	10000 K	15000 K		5000 K	10000 K	15000 K		5000 K	10000 K	15000 K
e^-	$4,880 \cdot 10^{18}$	$1,490 \cdot 10^{22}$	$1,620 \cdot 10^{23}$		$5,245 \cdot 10^{18}$	$1,458 \cdot 10^{22}$	$1,604 \cdot 10^{22}$		$5,182 \cdot 10^{18}$	$1,504 \cdot 10^{22}$	$1,659 \cdot 10^{23}$
Ar	$4,950 \cdot 10^{23}$	$2,350 \cdot 10^{23}$	$4,070 \cdot 10^{22}$		$4,935 \cdot 10^{23}$	$2,348 \cdot 10^{23}$	$4,268 \cdot 10^{22}$		$4,930 \cdot 10^{23}$	$2,344 \cdot 10^{23}$	$3,859 \cdot 10^{22}$
O	$9,630 \cdot 10^{23}$	$4,700 \cdot 10^{23}$	$1,250 \cdot 10^{23}$		$9,612 \cdot 10^{23}$	$4,700 \cdot 10^{23}$	$1,298 \cdot 10^{23}$		$9,639 \cdot 10^{23}$	$4,695 \cdot 10^{23}$	$1,189 \cdot 10^{23}$
Ar^+	$1,200 \cdot 10^{17}$	$5,100 \cdot 10^{21}$	$6,860 \cdot 10^{22}$		$1,111 \cdot 10^{17}$	$4,993 \cdot 10^{21}$	$6,826 \cdot 10^{22}$		$1,166 \cdot 10^{17}$	$5,231 \cdot 10^{21}$	$6,921 \cdot 10^{22}$
O^+	$2,850 \cdot 10^{18}$	$9,780 \cdot 10^{21}$	$9,360 \cdot 10^{22}$		$2,657 \cdot 10^{18}$	$9,586 \cdot 10^{21}$	$9,211 \cdot 10^{22}$		$2,837 \cdot 10^{18}$	$9,864 \cdot 10^{21}$	$9,692 \cdot 10^{22}$
Ar^{++}	$8,760 \cdot 10^{-3}$	$3,420 \cdot 10^{13}$	$3,900 \cdot 10^{18}$		$7,621 \cdot 10^{-3}$	$3,162 \cdot 10^{13}$	$3,423 \cdot 10^{18}$		$8,319 \cdot 10^{-3}$	$3,654 \cdot 10^{13}$	$4,190 \cdot 10^{18}$
O^{++}	$7,690 \cdot 10^{-9}$	$1,400 \cdot 10^{10}$	$1,790 \cdot 10^{16}$		$6,870 \cdot 10^{-9}$	$1,356 \cdot 10^{10}$	$1,560 \cdot 10^{16}$		$8,197 \cdot 10^{-9}$	$1,563 \cdot 10^{10}$	$2,040 \cdot 10^{16}$
O_2	$1,320 \cdot 10^{22}$	$1,120 \cdot 10^{19}$	$1,530 \cdot 10^{17}$		$1,302 \cdot 10^{22}$	$1,221 \cdot 10^{19}$	$1,513 \cdot 10^{17}$		$1,100 \cdot 10^{22}$	$1,024 \cdot 10^{19}$	$1,355 \cdot 10^{17}$
O_2^+	$1,970 \cdot 10^{18}$	$2,220 \cdot 10^{18}$	$5,940 \cdot 10^{17}$		$2,536 \cdot 10^{18}$	$2,549 \cdot 10^{18}$	$6,037 \cdot 10^{17}$		$2,230 \cdot 10^{18}$	$2,340 \cdot 10^{18}$	$6,340 \cdot 10^{17}$

Tableau (II.1) : Comparaison de nos résultats de composition du plasma Ar-O₂ (50 % Ar, 50 % O₂) avec ceux d'autres auteurs pour trois valeurs de températures.

II.3.4. Résultats des calculs de composition

Afin d'étudier l'influence du dioxyde de carbone sur un plasma d'argon, nous présentons tout d'abord la composition d'un plasma d'argon pur, figure (II.1a). Notons que les résultats obtenus sont comparables à ceux obtenus par P.André [II/18] (figure II.1a), et B.Pateyron et al [II/19] (figure II.1b).

Les résultats du calcul de composition du plasma Ar-CO₂ à l'E.T.L., à la pression atmosphérique, pour des températures comprises entre 4 000 K et 30 000 K sont présentés sur les figures (II.2a et II.2b) respectivement pour un mélange de 99 % Ar - 1 % C O₂, pour un mélange de 88 % Ar - 12 % CO₂.

Les figures (II.3a et II.3b) présentent les résultats obtenus respectivement pour un mélange de 75 % Ar - 25 % CO₂ et un mélange de 50 % Ar - 50 % CO₂. On peut noter que :

- pour des températures inférieures à 6 000 K environ, la concentration en CO est importante, du fait de son énergie de dissociation élevée (11,096 eV),

- la population d'électrons est presque totalement due à l'ionisation des atomes de carbone à cause de la faible énergie d'ionisation du carbone pour des pourcentages de CO₂ plus élevés (figure II.3b) et pour les valeurs de températures comprises entre [5000 K, 14 000K],

- la molécule CO₂ est presque complètement dissociée à partir de 7 000 K.

- entre 6 000 K et 10 000 K, on note la présence du radical C₂.

- les variations de la population de particules diatomiques neutres par exemple O₂, CO, CO₂ décroissent rapidement avec la température.

- la contribution des particules deux fois ionisées n'est appréciable qu'aux très hautes températures (T > 20 000 K).

Grâce à la connaissance des compositions chimiques et des fonctions de partition internes, nous pouvons maintenant calculer les fonctions thermodynamiques du plasma étudié, et ainsi étudier l'influence du CO₂ sur le plasma. C'est ce que nous allons présenter dans le paragraphe suivant.

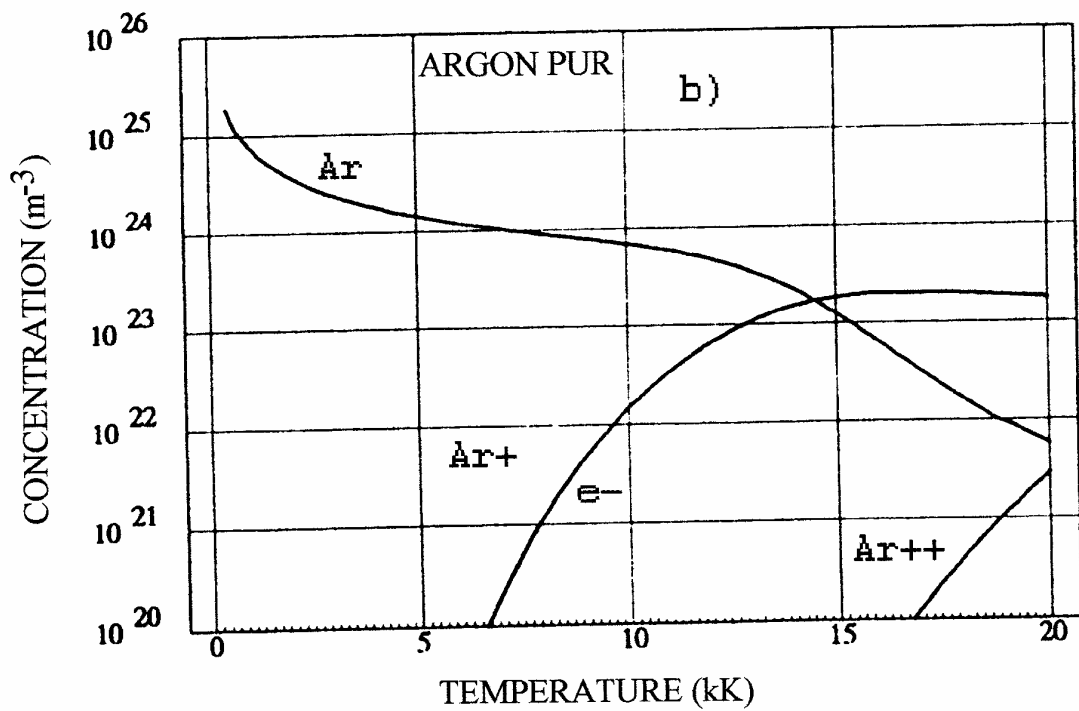
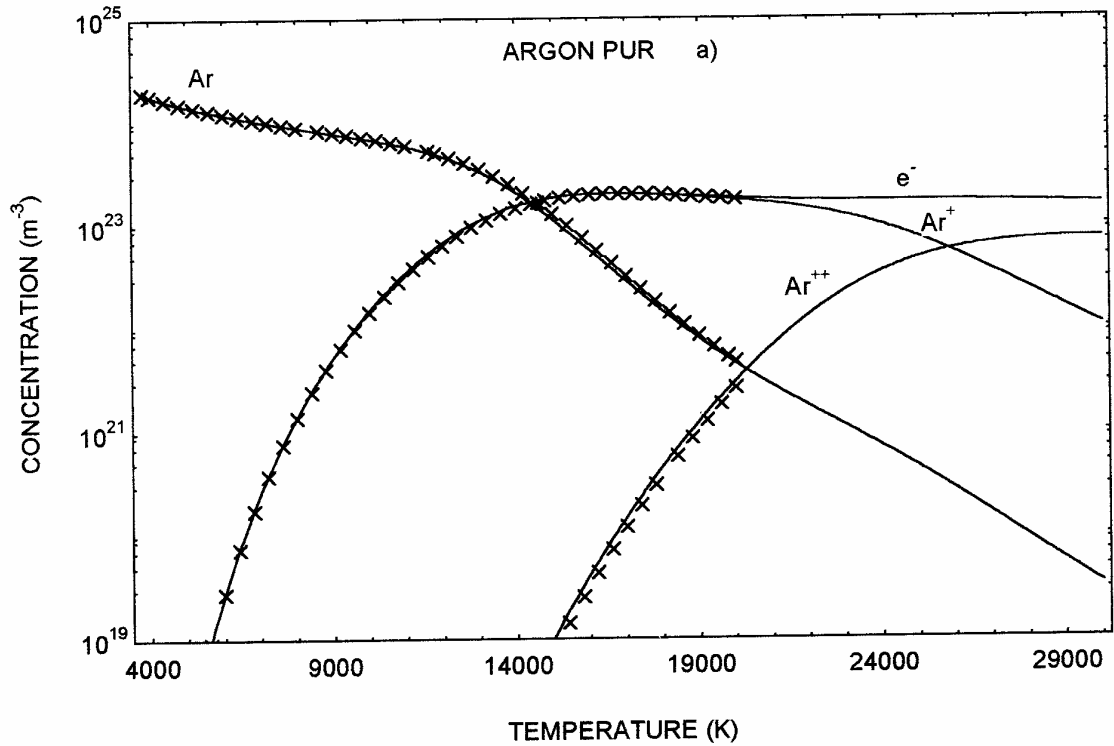


Figure (II.1) : Variation de la composition des espèces en présence dans un plasma d'argon pur en fonction de la température, à la pression atmosphérique dans l'hypothèse de l'E.T.L.

a) résultats trouvés par P.André [II/18] noté par les croix et nos résultats (courbes en traits pleins),

b) résultats obtenus par B.Pateyron et al [II/19].

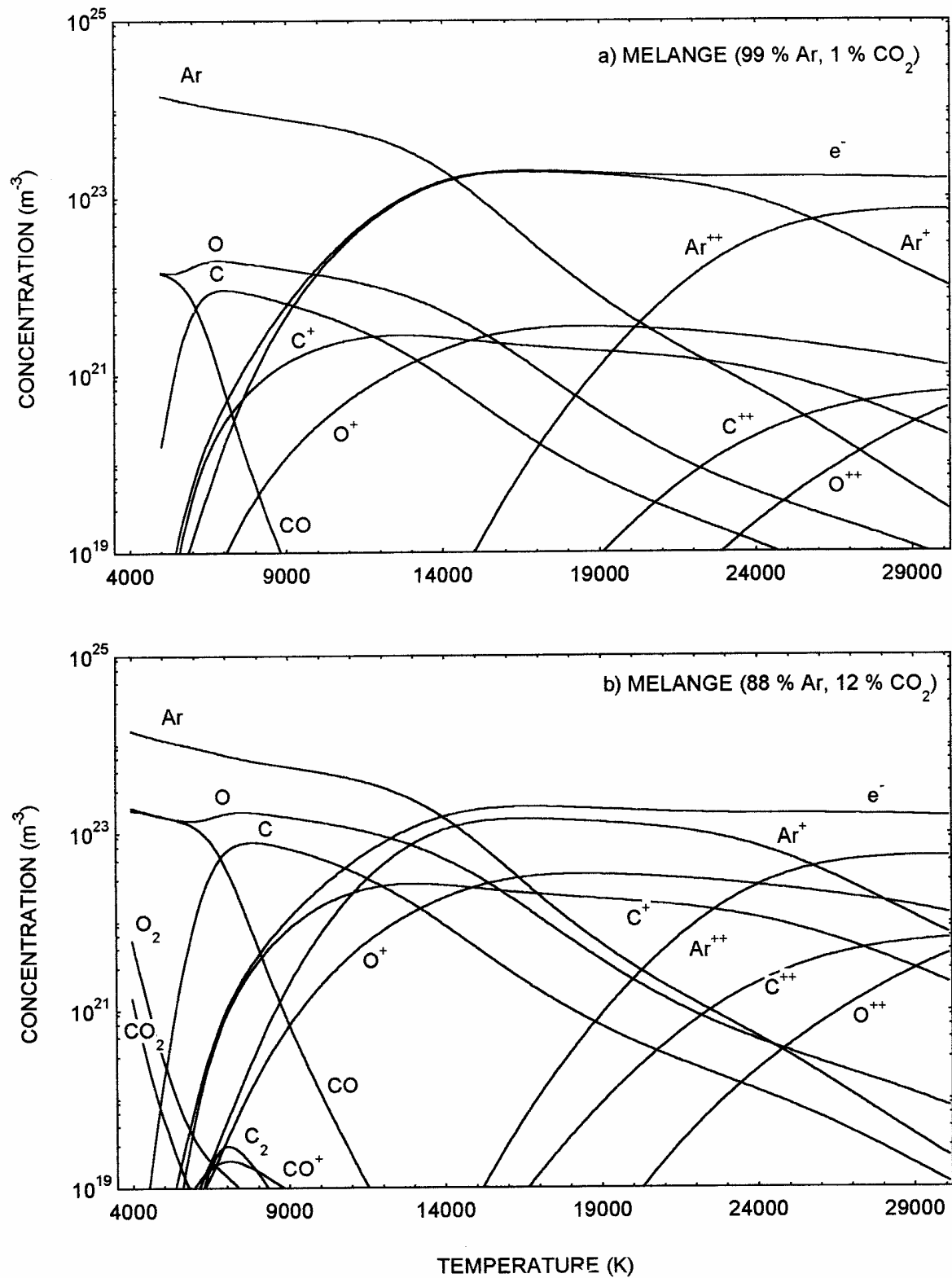


Figure (II.2) : Variation de la composition des espèces en présence dans un plasma Ar-CO₂ en fonction de la température, à la pression atmosphérique dans l'hypothèse de l'E.T.L. pour deux mélanges : a) (99 % Ar, 1 % CO₂) ; b) (88 % Ar, 12 % CO₂).

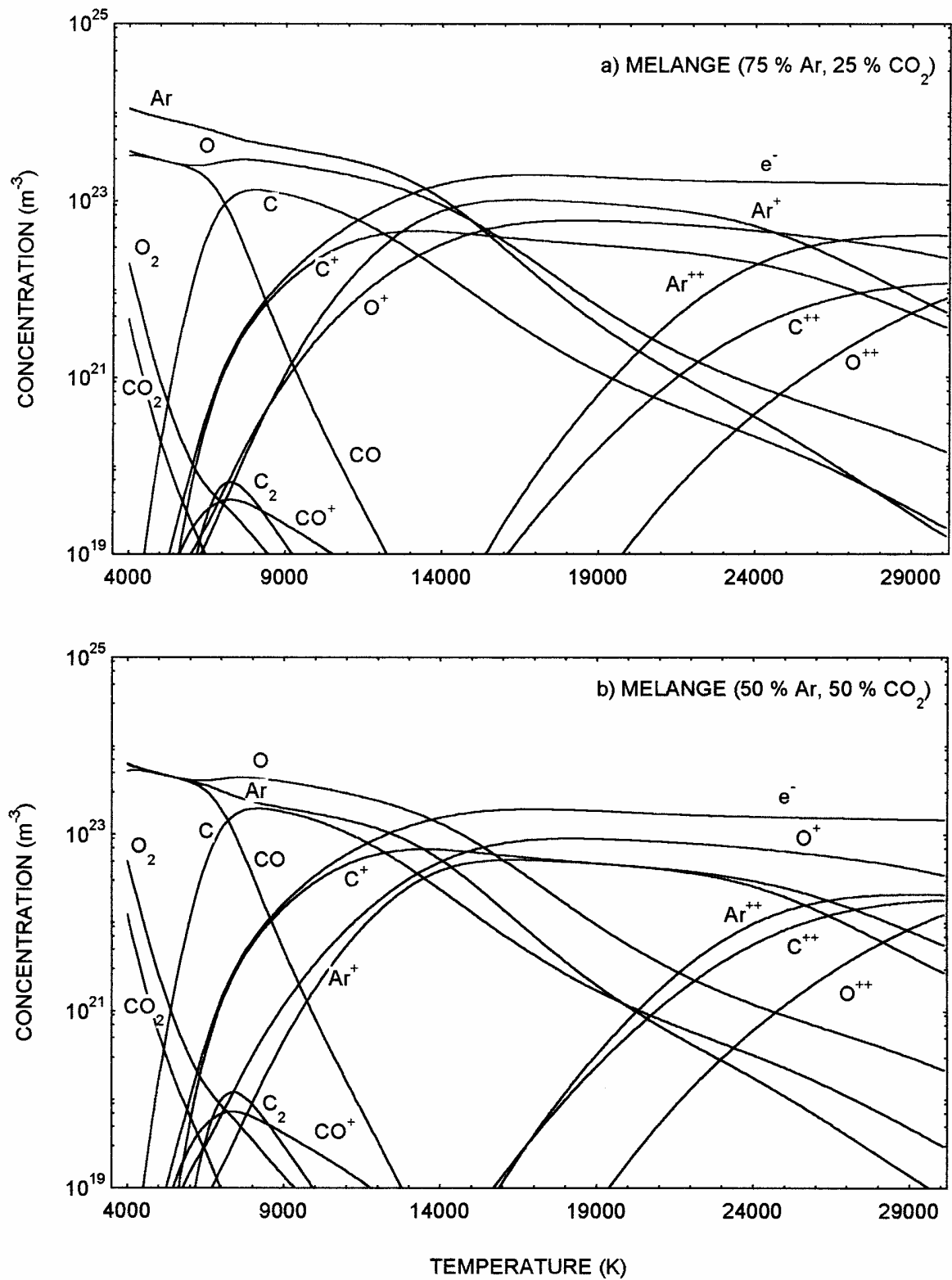


Figure (II.3) : Variation de la composition des espèces en présence dans un plasma Ar-CO₂ en fonction de la température, à la pression atmosphérique dans l'hypothèse de l'E.T.L. pour deux mélanges : a) (75 % Ar, 25 % CO₂); b) (50 % Ar, 50 % CO₂).

II.4. INFLUENCE DU POURCENTAGE DE CO_2 SUR LE CALCUL DE LA COMPOSITION DU PLASMA Ar- CO_2

Pour étudier l'influence de la molécule de CO_2 sur le calcul de la composition du plasma Ar- CO_2 , nous avons calculé la concentration des différentes espèces chimiques présentes dans le mélange Ar- CO_2 pour différentes valeurs du pourcentage de CO_2 .

Nous présentons sur la figure (II.4) l'évolution de la dissociation de la molécule CO_2 et du monoxyde de carbone CO ainsi que la formation du carbone et de la molécule de C_2 en fonction de la température pour différentes valeurs du pourcentage de CO_2 .

Enfin la figure (II.5) montre la comparaison entre l'évolution de la concentration de l'atome d'argon par rapport à l'atome de carbone.

On remarque que pour une valeur de température donnée, quand on augmente le pourcentage de CO_2 ; la concentration d'argon diminue et la concentration de l'atome de carbone augmente dans la gamme de température (5 000 K - 15 000 K).

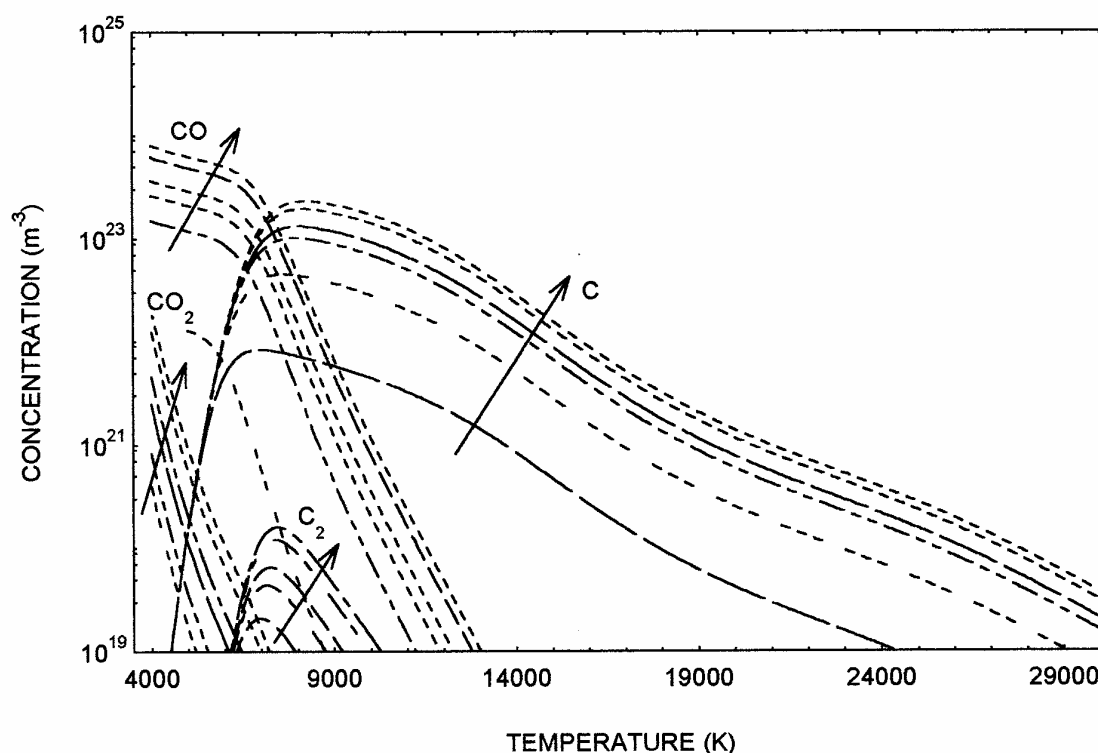


Figure (II-4) : Evolution de la dissociation du dioxyde de carbone, du monoxyde de carbone et la formation de carbone et de la molécule de C_2 en fonction de la température à la pression atmosphérique, pour différentes valeurs de pourcentages de CO_2 dans le mélange Ar- CO_2 (la flèche indique des pourcentages croissants : 0,9 %, 6 %, 17 %, 25 %, 50 %, 75 %).

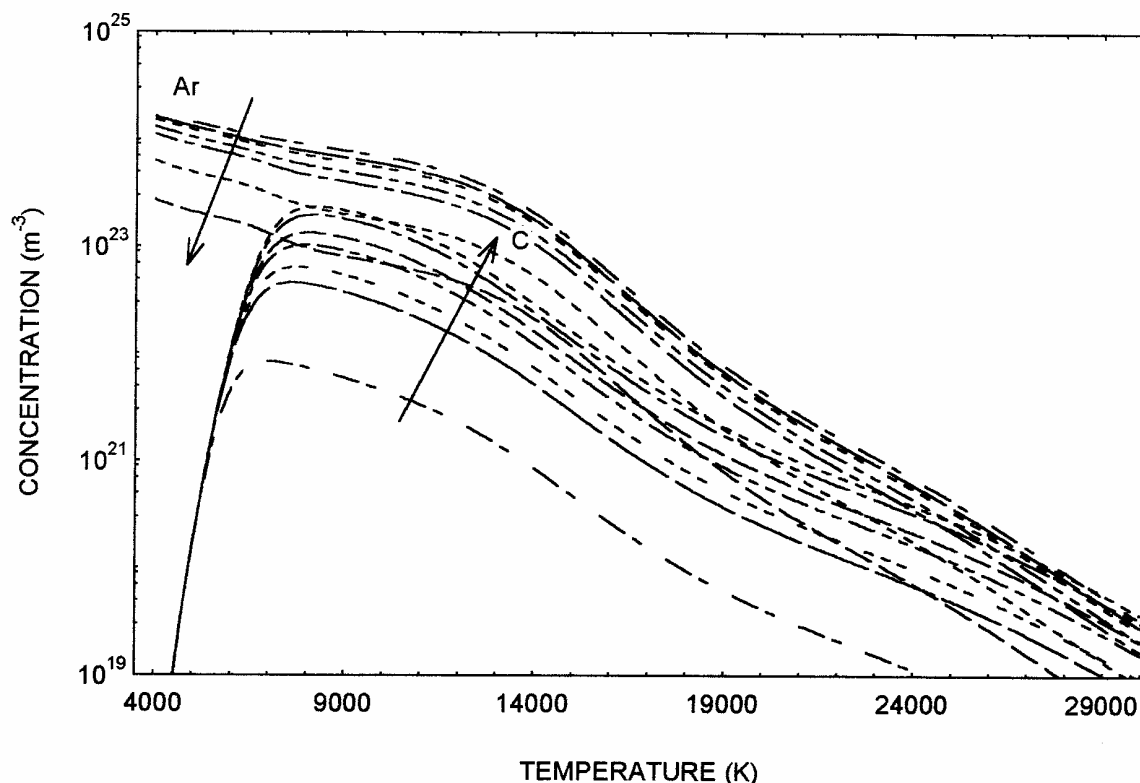


Figure (II-5) : Evolution de la concentration de l'argon et du carbone en fonction de la température, pour différentes valeurs de pourcentages de CO_2 dans le mélange Ar- CO_2 (la flèche indique des pourcentages croissants : 0,9 %, 6 %, 17 %, 25 %, 50 %, 75 %).

Sur la figure (II.6) on présente les courbes d'évolution de la dissociation de O_2 et la formation de l'oxygène.

Les figures (II.4 et II.6), montrent que quand la proportion de CO_2 augmente la température de dissociation des molécules C_2 , O_2 , CO , CO_2 augmente. En effet, l'augmentation du taux de CO_2 entraîne une augmentation de l'apport des atomes de carbone ce qui se traduit par une augmentation de la densité d'électrons (pour la gamme de température comprise entre 7 000 K et 14 000 K, figure (II.3b)) et par une augmentation de la densité des particules lourdes. Pour effectuer les réactions d'ionisation et de dissociation il faut plus d'énergie. Les deux figures illustrent que les réactions chimiques sont réalisées à des températures plus élevées.

La figure (II.7) montre que les valeurs de la densité électronique ne sont pas influencées pas le taux de CO_2 pour les valeurs de température supérieur à 15 000 K. Dans la gamme de température [5000 K, 14 000 K], on note que la densité électronique augmente avec l'augmentation du taux de CO_2 , ceci s'explique par la présence de l'atome de carbone dans cette zone. Cette atome possède une faible énergie d'ionisation par rapport à l'argon donc l'augmentation du nombre d'électron est dû pratiquement à l'ionisation de cette atome surtout pour les fort pourcentage de CO_2 , figure (II.3b).

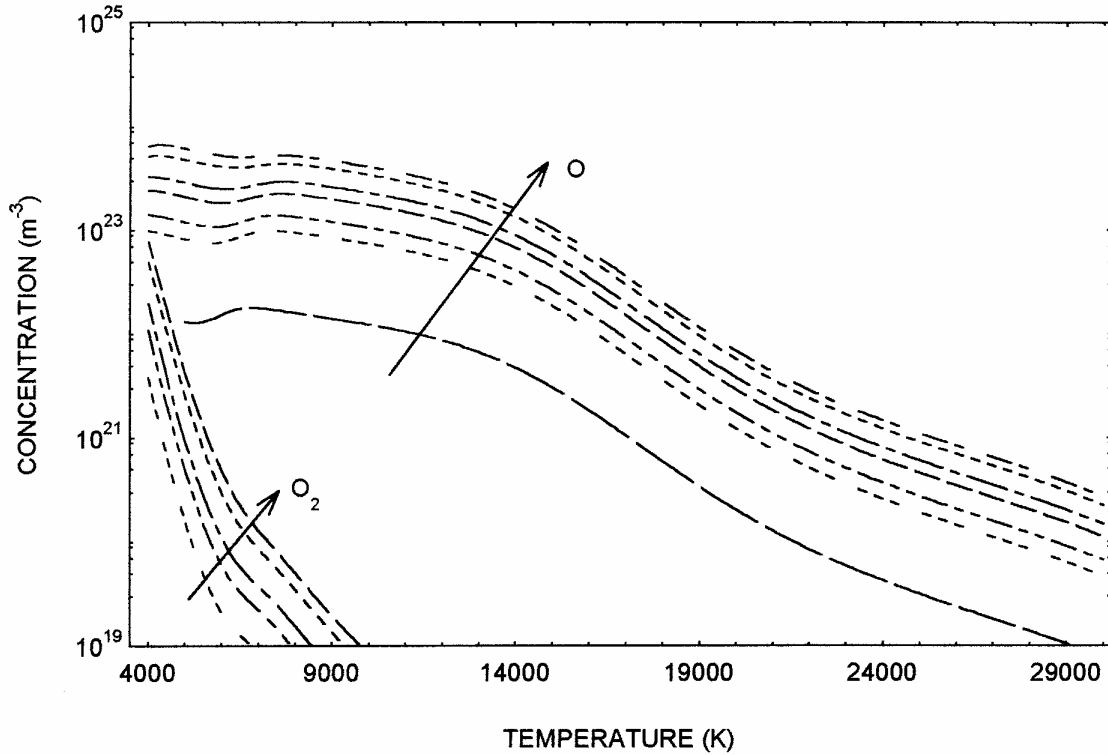


Figure (II-6) : Evolution de la dissociation de la molécule d'oxygène et de la formation d'atome d'oxygène en fonction de la température à la pression atmosphérique, pour différentes valeurs de pourcentages de CO_2 dans le mélange Ar- CO_2 (la flèche indique des pourcentages croissants : 0,9 %, 6 %, 17 %, 25 %, 50 %, 75 %).

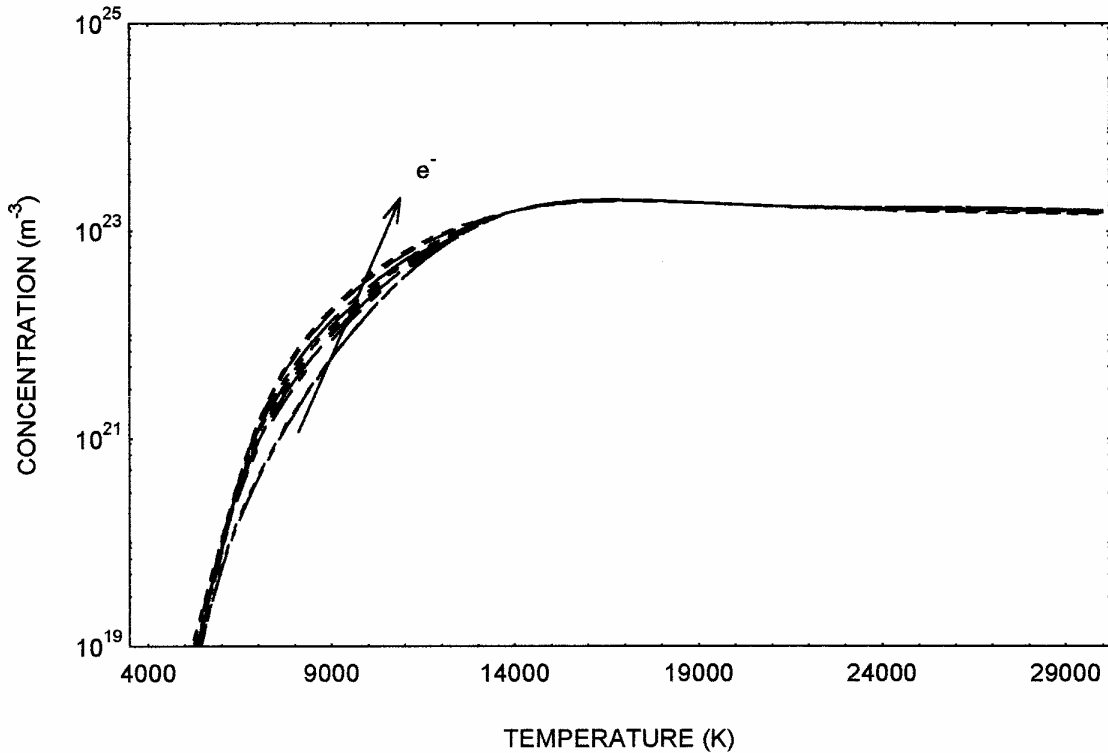


Figure (II.7) : Evolution de la densité électronique en fonction de la température à la pression atmosphérique, pour différentes valeurs de pourcentages de CO_2 dans le mélange Ar- CO_2 (la flèche indique des pourcentages croissants : 0,9 %, 6 %, 17 %, 25 %, 50 %, 75 %).

II.5. FONCTIONS THERMODYNAMIQUES

Afin d'étudier l'influence du CO_2 sur le gaz plasmagène, les propriétés thermodynamiques telles que la masse volumique, l'enthalpie massique et la chaleur massique, sont calculées pour un plasma d'argon pur et un plasma Ar- CO_2 .

Dans ce paragraphe, il nous a paru nécessaire de rappeler les expressions analytiques permettant de calculer les diverses fonctions thermodynamiques d'un plasma.

II.5.1. Masse volumique

La masse volumique est calculée par la formule donnée par la loi des gaz parfaits :

$$\rho = \sum_{j=1}^v n_j m_j \quad (\text{II-18})$$

avec : n_j et m_j sont respectivement la densité et la masse de la particule j .

Pour nos calculs, nous avons utilisé la relation suivante :

$$\rho = \frac{MP}{RT} \quad (\text{II-19})$$

M est la masse molaire moyenne du plasma donnée par la relation :

$$M = \sum_{j=1}^v x_j M_j \quad (\text{II-20})$$

M_j : masse molaire de la particule j

x_j : fraction molaire de l'espèce k donnée par :

$$x_j = \frac{n_j}{\sum_{j=1}^v n_j} \quad (\text{II-21})$$

II.5.2. Enthalpie massique

L'enthalpie massique h s'exprime [II/20] par :

$$h = \frac{1}{\rho} \sum_{i=1}^v n_i \left[\left(\frac{5}{2} kT + kT^2 \frac{\partial}{\partial T} \ln(Q_{\text{int}}(T)_i) \right) + (e_i^\circ - \Delta e_i^\circ) \right] \quad (\text{II-22})$$

où $(e_i^\circ - \Delta e_i^\circ)$ est l'énergie de la particule i par rapport à un référentiel d'énergie donnée (température de référence $T_R = 298,15 \text{ K}$) [II/6]. Elle est prise égale à l'enthalpie de formation $(\Delta H_f)_i$ de chaque particule i .

Les valeurs de $(\Delta H_f)_i$ ont été prises dans les tables de Janaf [II/6].

II.5.3. Chaleur massique à pression constante

Par définition, la chaleur massique à pression constante s'écrit :

$$\bar{c}_p = \left(\frac{\partial h}{\partial T} \right)_p \quad (\text{II-23})$$

Dans nos calculs, nous avons dérivé par une méthode numérique l'enthalpie massique pour calculer la chaleur massique du mélange.

II.5.4. Résultats et interprétation

L'évolution de la masse volumique et de l'enthalpie, pour un plasma d'argon pur et de différents mélanges Ar-CO₂ est donnée en fonction de la température sur les figures (II.8) et (II.9).

Sur la figure (II.8) on constate que la masse volumique du mélange Ar-CO₂ est inférieure à celle de la masse volumique de l'argon pur.

Dans un plasma d'argon pur il n'y a pas beaucoup d'espèces chimiques différentes (e⁻, Ar, Ar⁺....) donc l'énergie qu'il faut fournir est moins importante que dans le cas du mélange Ar-CO₂ où il y a beaucoup d'espèces chimiques : les espèces provenant d'argon et celles qui proviennent de CO₂ (C, C⁺, O, O⁺....). La figure (II.9) montre que l'enthalpie du plasma d'argon pur est moins élevée que l'enthalpie du plasma Ar-CO₂ et qu'elle augmente avec la concentration de CO₂. Ceci s'explique aussi par le fait que la molécule de CO₂ présente beaucoup de niveaux d'énergie discrets avec en plus des niveaux de vibration et de rotation ; donc plus on augmente le taux de CO₂ plus il faut apporter d'énergie pour la faire dissocier en espèces diatomiques et atomiques.

La figure (II.10) représente l'évolution de la chaleur massique en fonction de la température. On peut constater que :

- pour des températures comprises entre 6 000 K et 8 000 K, il y a absence de pic c'est-à-dire qu'il n'y a pas de réaction chimique pour l'argon pur alors que pour le plasma Ar - CO₂ la chaleur massique possède un pic dans cette zone de température pour les différents pourcentages de CO₂,

Ce pic correspond à la dissociation des molécules de C₂, CO,

- le pic autour de la température 14 000 K est observé sur les différentes courbes car il correspond à l'ionisation de l'argon,

- aux hautes températures (T > 20 000 K) les pics de la chaleur massique correspondent aux réactions d'ionisation.

D'une façon générale, les pics de la chaleur massique correspondent à de brusques variations (changement de pente) de l'enthalpie massique qui sont dues à des réactions chimiques de dissociation et d'ionisation [II/21]. En effet, ces réactions chimiques ont pour effet de dissocier ou de remplacer dans le plasma des particules lourdes, c'est-à-dire molécules diatomiques et triatomiques, par des particules plus légères comme des atomes, ions atomiques et électrons.

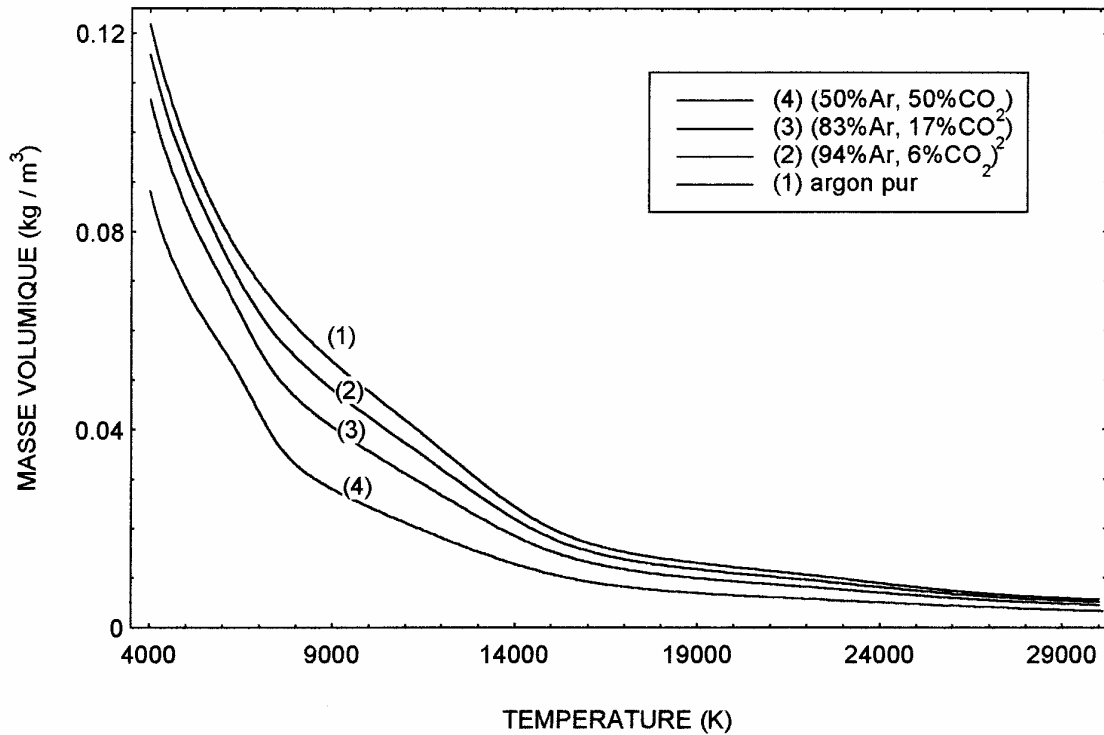


Figure (II.8) : Evolution de la masse volumique en fonction de la température à la pression atmosphérique. Comparaison entre un plasma d'argon pur et un plasma Ar-CO₂ pour différents pourcentages de CO₂ dans le mélange.

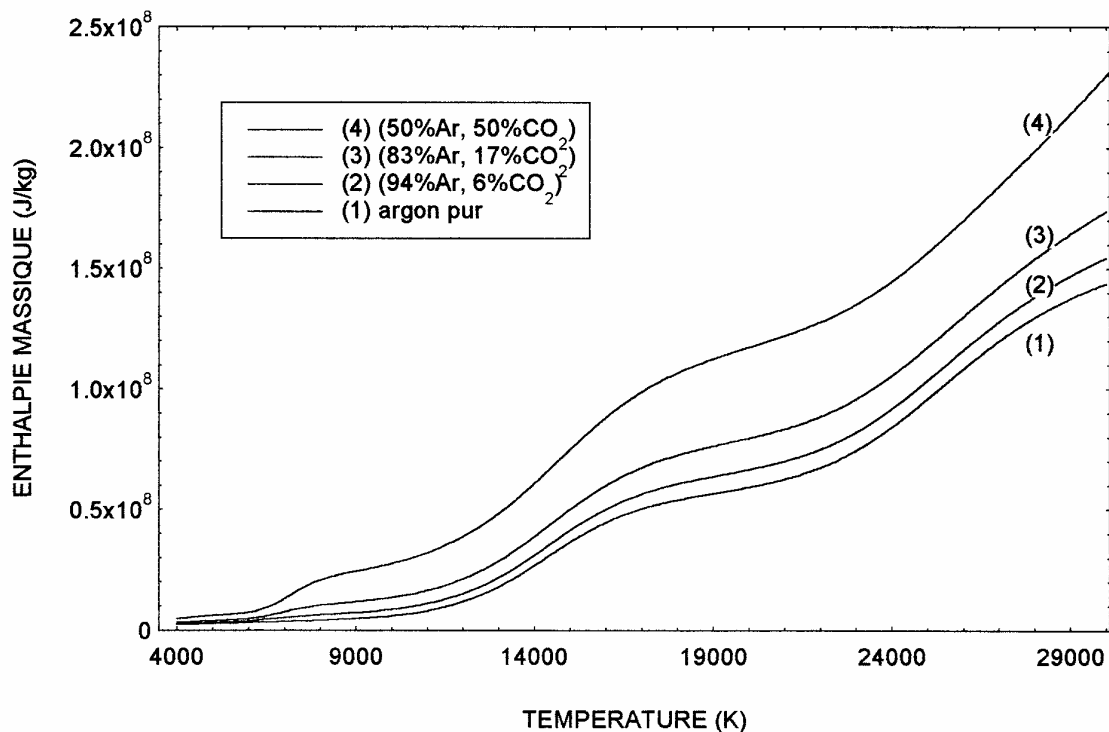


Figure (II.9) : Evolution de l'enthalpie massique en fonction de la température à la pression atmosphérique. Comparaison entre un plasma d'argon pur et un plasma Ar-CO₂ pour différents pourcentages de CO₂ dans le mélange.

Les différents pics rencontrés sur la courbe d'évolution figure (II.10) de la chaleur massique c_p en fonction de la température sont caractéristiques de la forme de c_p [II/22] et [II/23] :

$$C_p = (C_p)_{\text{figé}} + (C_p)_{\text{réaction}}$$

- $(C_p)_{\text{réaction}}$: caractérise la contribution des différentes réactions chimiques : ionisations et dissociations,
 $(C_p)_{\text{figé}}$: représente la composante continue (figée) de la chaleur massique.

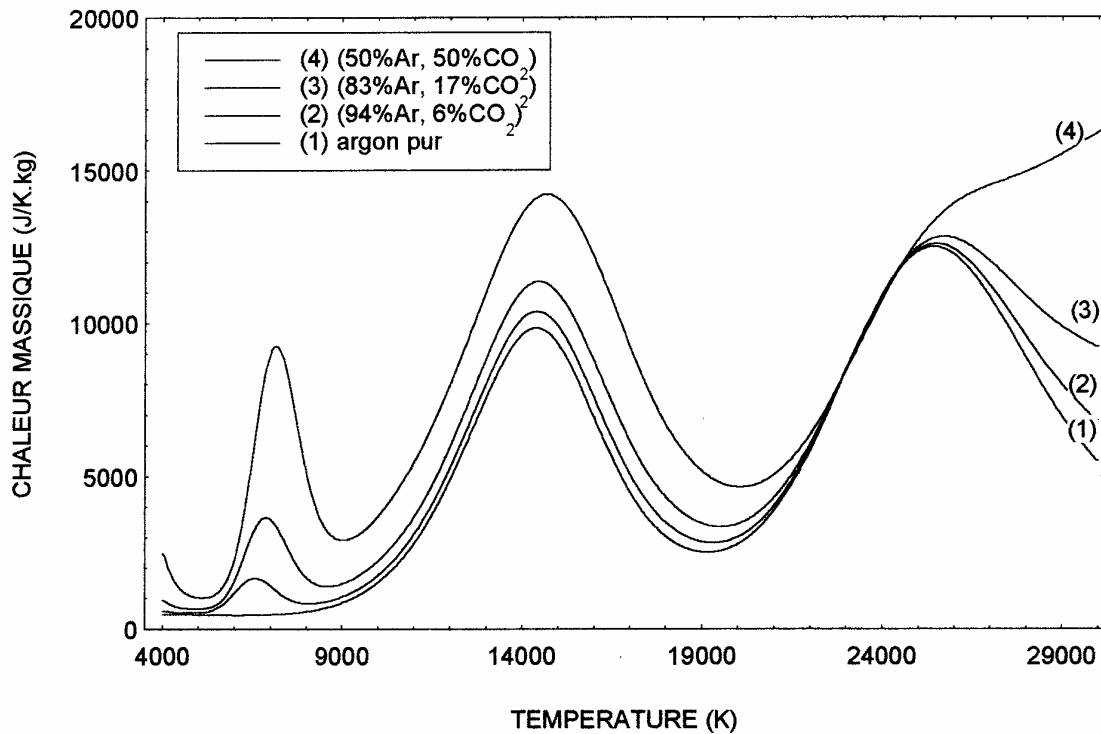
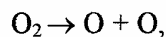
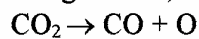


Figure (II.10) : Evolution de la chaleur massique en fonction de la température à la pression atmosphérique. Comparaison entre un plasma d'argon pur et un plasma Ar-CO₂ pour différents pourcentages de CO₂ dans le mélange.

Comme nous l'avons signalé précédemment, dans le paragraphe II.3.4, les figures (II.2 et II.3) du calcul de la composition montrent que la molécule de CO₂ est complètement dissociée à partir de la température 7000 K. Comme la gamme de température de cette étude est comprise entre 4000 K et 30 000 K, les courbes de la chaleur massique (figure II.10) ne présentent pas la zone de réaction de dissociation de la molécule de CO₂ et de la molécule de O₂ alors que pour une température comprise entre 1 000 K et 8 000 K la chaleur massique présente deux maxima [II/16].

Puisque l'allure des courbes de la chaleur massique et la conductivité thermique s'interprètent de la même manière en fonction des réactions (dissociations et ionisations) qui ont lieu dans le plasma, nous présentons les résultats de la conductivité thermique obtenus par N.Ikonomov et al [II/24], figure (II.11). L'analyse de cette courbe montre la présence de deux maxima :

- le premier maximum, à $T = 3500$ K, correspond aux réactions de dissociations de CO₂ et O₂ avec des énergies de 5,4 eV et 5,1 eV respectivement [II/24] :



- le deuxième maximum (T compris entre 7 000 K, 8 000 K) correspond aux réactions :

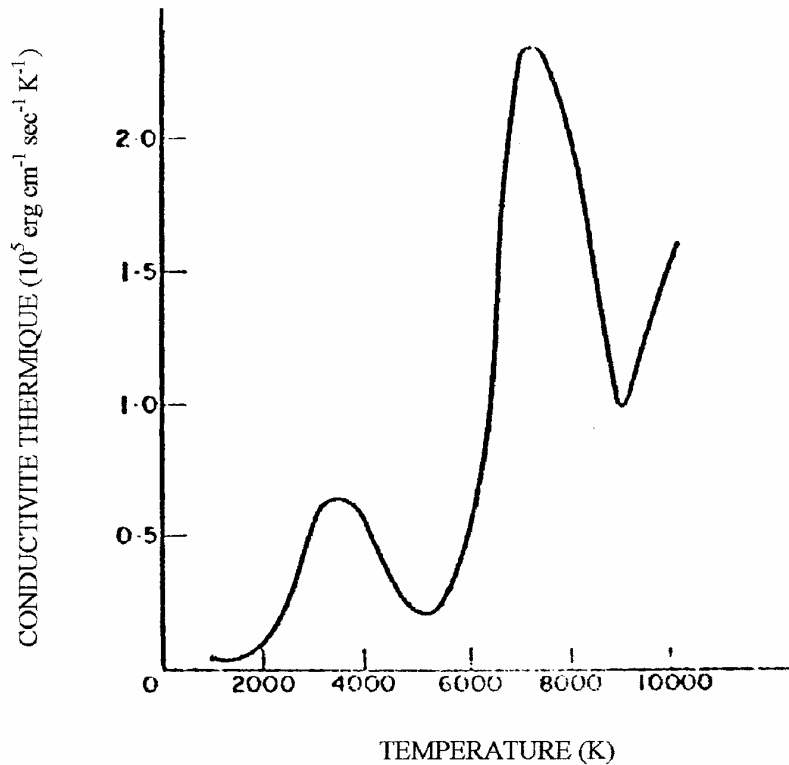
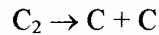
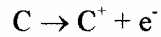
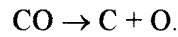


Figure (II.11) : Résultats obtenus par N.Ikonomov et al [II/24] : évolution de la conductivité thermique totale, calculée à la pression atmosphérique, en fonction de la température du plasma de CO_2 .

II.5.5. Influence de la pression

Nous étudions dans ce paragraphe l'influence de la pression sur les grandeurs physiques telles que la masse volumique, l'enthalpie massique, la chaleur massique.

Sur la figure (II.3b) sont représentés les résultats de la composition du mélange (50 % Ar, 50 % CO_2) pour une valeur de la pression de 1 atmosphère et sur la figure (II.12) ceux relatifs à une pression de 5 atmosphères. La comparaison de ces deux figures illustre que, pour une valeur donnée de la température, une augmentation de la pression entraîne une augmentation de la concentration des espèces du plasma. Les réactions d'ionisation et de dissociation nécessitent une énergie plus importante. Comme le montre la figure (II.12) la température de dissociation des molécules de O_2 , CO , CO_2 est plus élevée pour une pression de 5 atmosphères.

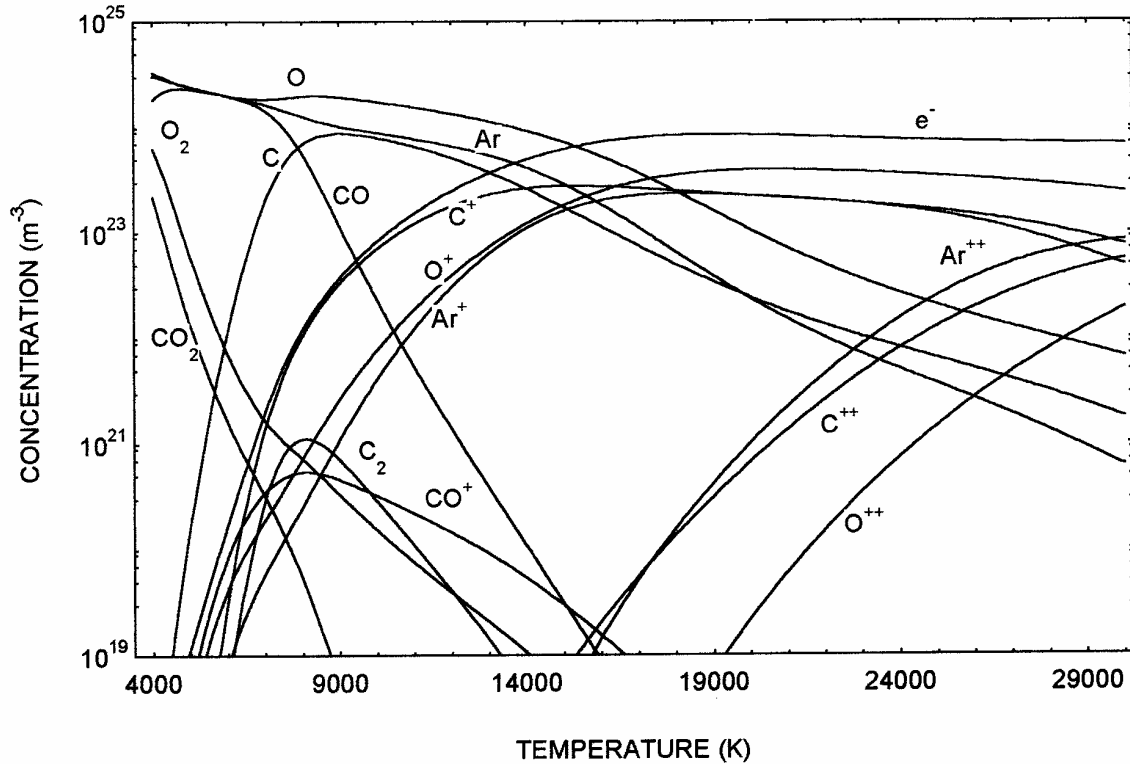


Figure (II.12) : Concentration en (m^{-3}) dans un plasma d'Ar- CO_2 des différentes espèces en présence dans un mélange de (50 % Ar, 50 % CO_2) en fonction de la température et pour une pression de 5 atmosphères dans l'hypothèse de l'E.T.L.

- Masse volumique

La figure (II.13) présente la courbe d'évolution de la masse volumique ρ du plasma Ar- CO_2 (50 % Ar, 50 % CO_2) en fonction de la température, pour différentes valeurs de la pression.

On constate que l'élévation de la pression entraîne une augmentation de la masse volumique du plasma. Ceci s'explique par le fait que la masse volumique est proportionnelle à la pression (relation (II-19)).

- Enthalpie massique

Pour une température donnée, figure (II.14), nous remarquons que l'enthalpie massique diminue lorsque la pression augmente. Ceci est dû au fait que l'enthalpie massique est inversement proportionnelle à la masse volumique (II-22).

Si pour une température donnée, les concentrations des diverses espèces chimiques présentes dans le plasma Ar- CO_2 ne varient pas avec la pression, l'enthalpie massique est indépendante de la pression.

Cette situation se rencontre aux très basses températures ($T < 5\,000\text{ K}$) où le plasma est composé d'espèces moléculaires neutres dont les concentrations pour ces conditions de températures, sont insensibles à une modification de pression par exemple la molécule C_2 (figure II.15). Ce n'est pas le cas pour d'autres espèces moléculaires par exemple, la molécule O_2 (figure II.15), la molécule CO , la molécule CO_2 (figure II.16).

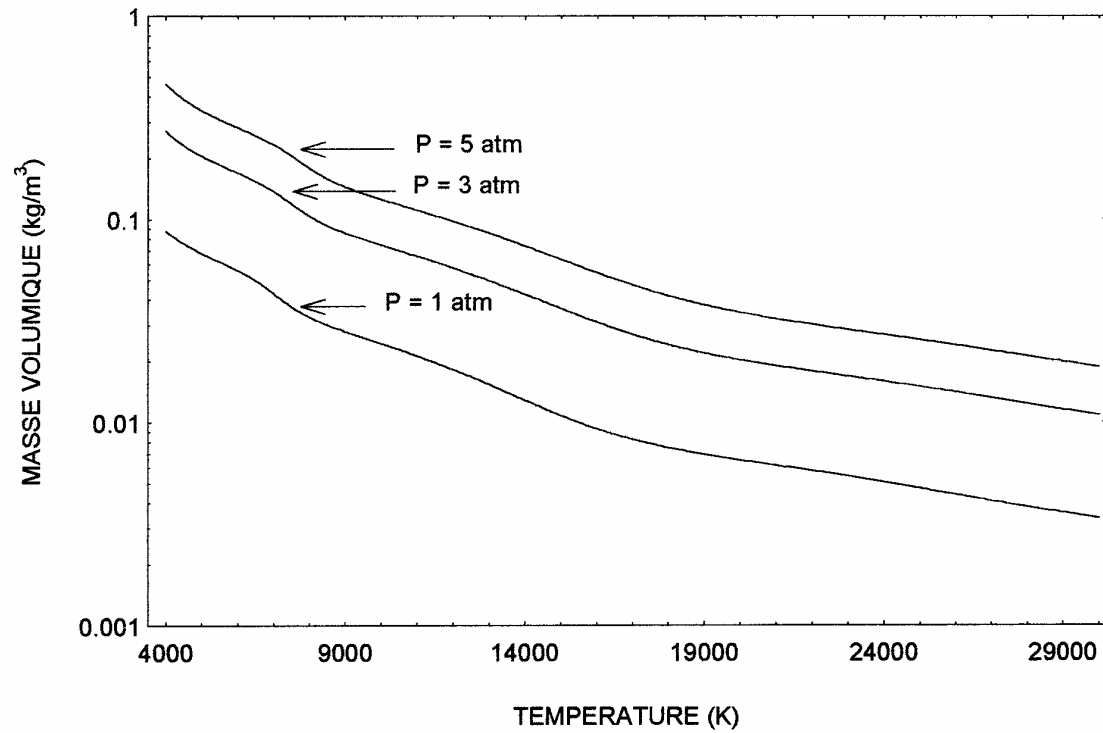


Figure (II.13) : Evolution de la masse volumique en fonction de la température dans un mélange de (50 % Ar, 50 % CO_2) pour différentes valeurs de pression.

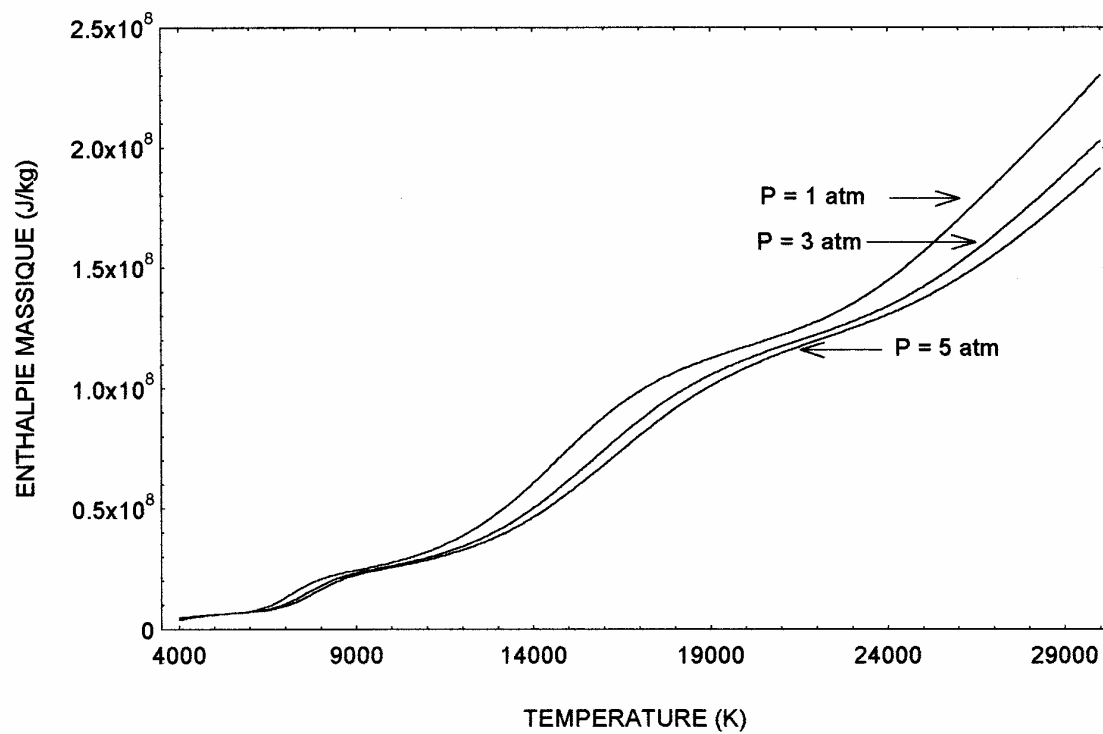


Figure (II.14) : Evolution de l'enthalpie massique en fonction de la température dans un mélange de (50 % Ar, 50 % CO_2) pour différentes valeurs de pression.

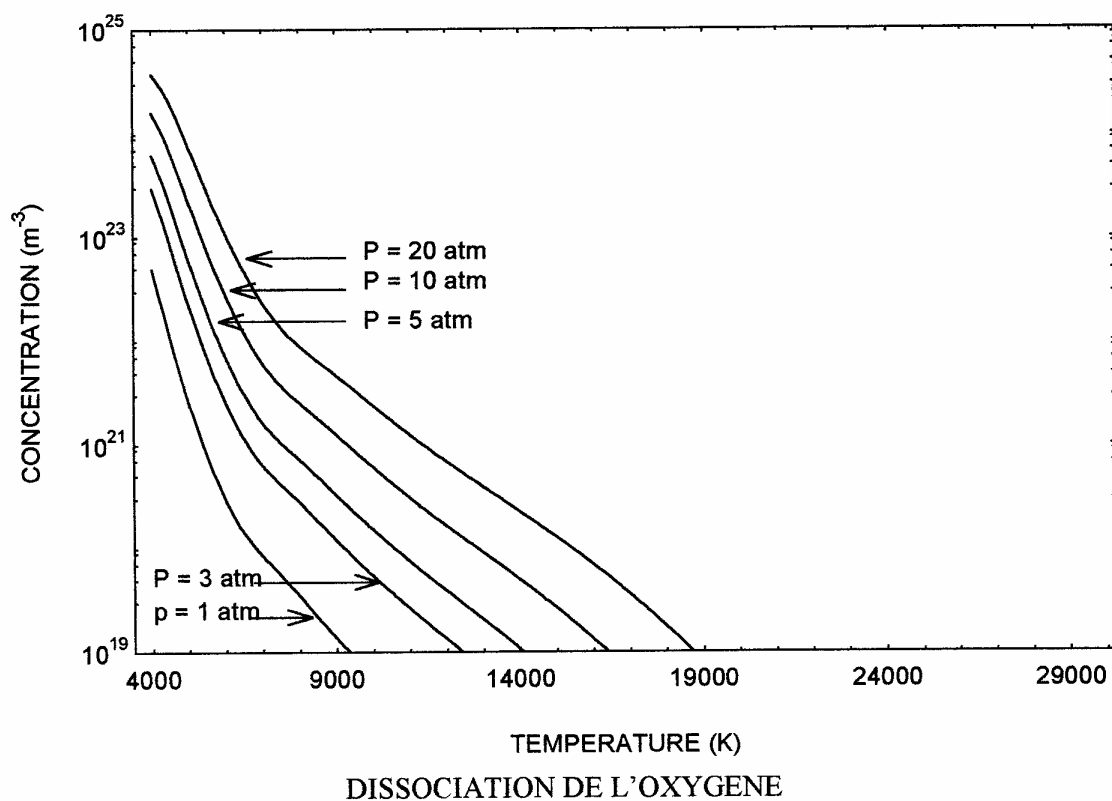
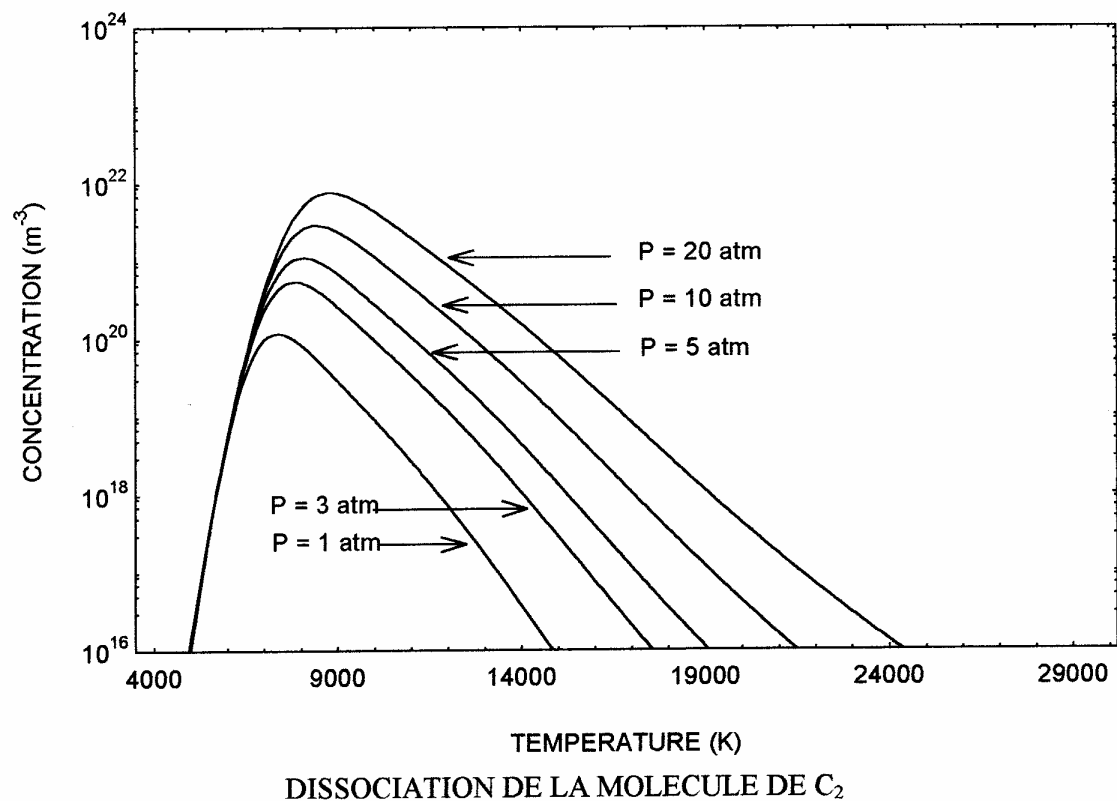


Figure (II.15) : Représentation de la dissociation de la molécule diatomique de dioxygène O_2 et de la molécule de C_2 en fonction de la température pour différentes valeurs de la pression.

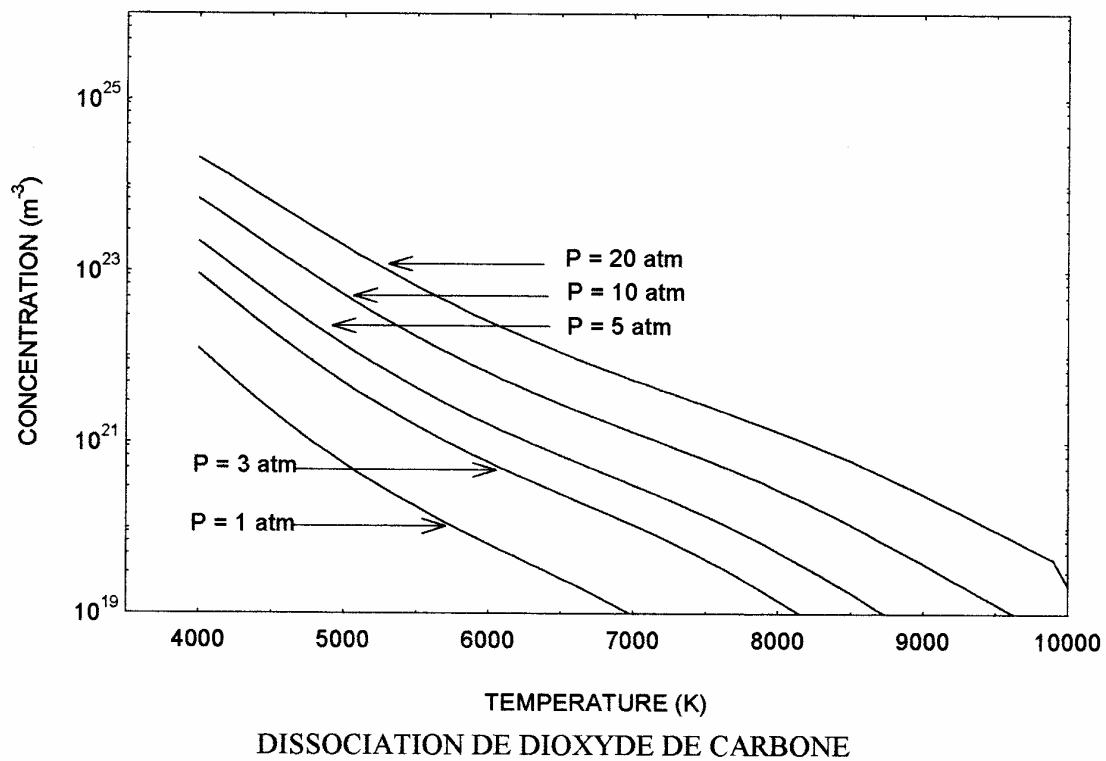
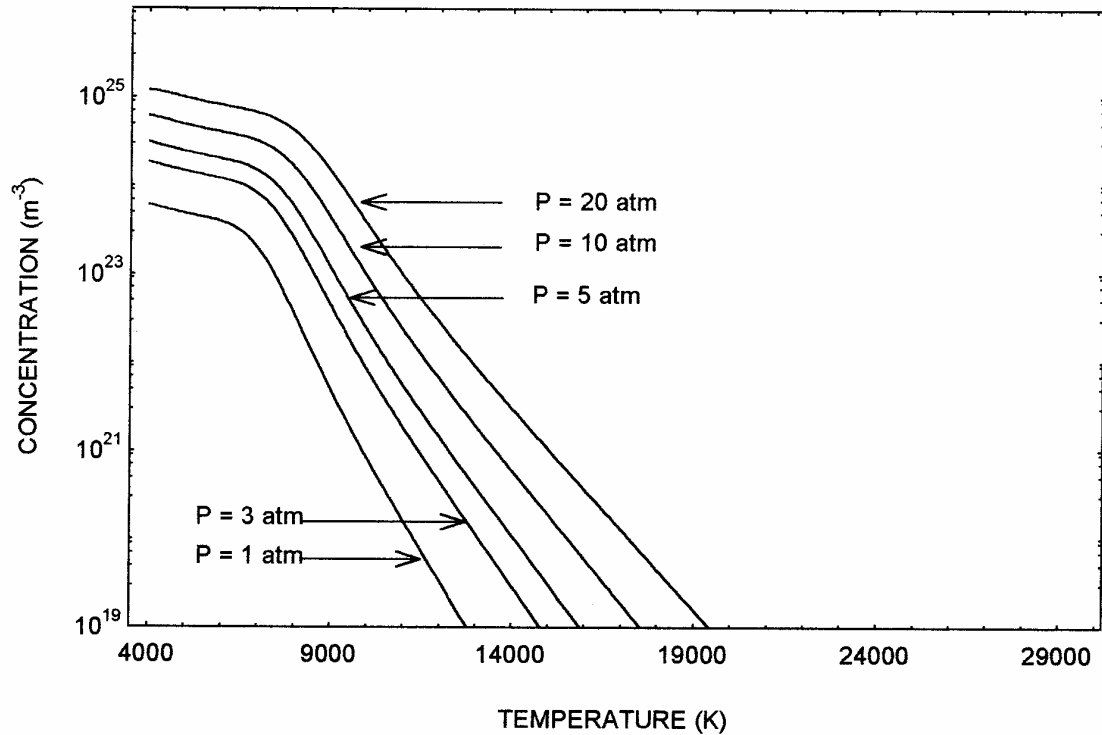


Figure (II.16) : Représentation de la dissociation de la molécule diatomique de monoxyde de carbone CO et la molécule de dioxyde de carbone CO₂ en fonction de la température pour différentes valeurs de la pression.

- Chaleur massique

La figure (II.17) présente, pour différentes valeurs de la pression, l'évolution de la chaleur massique en fonction de la température.

On remarque lorsque la pression augmente une diminution des valeurs des pics de C_p ainsi qu'un léger déplacement de ces pics vers les températures élevées. Ces phénomènes de réactions sont liés à la variation de l'enthalpie massique du plasma.

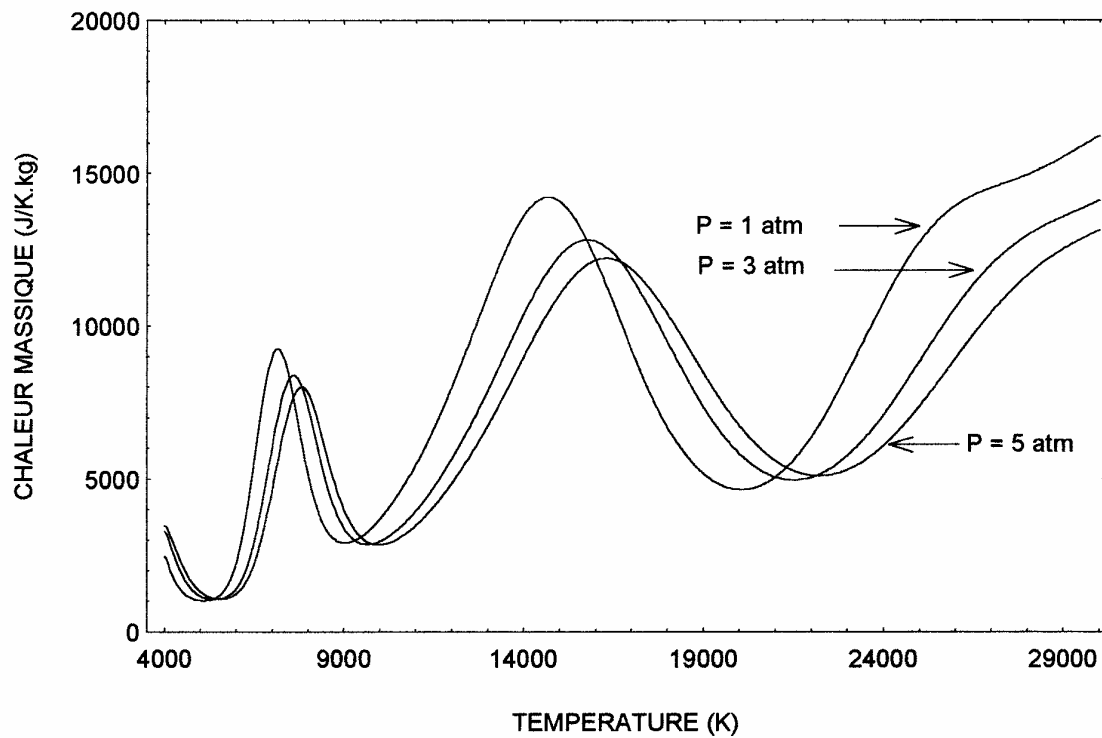


Figure (II-17) : Evolution de la chaleur massique en fonction de la température dans un plasma Ar-CO₂ pour un mélange de (50 % Ar, 50 % CO₂) pour différentes valeurs de pressions.

BIBLIOGRAPHIE

- [II/1] "Arc Electrique et ses applications", Ouvrage collectif,
Tome 2, Editions du CNRS (1985).
- [II/2] GRIEM E., Phys. Rev., 128 (1962) p. 997.
- [II/3] CAPITELLI M., FICOCELLI E.V., MOLINARI E.
"Equilibrium Composition and Thermodynamic Properties of mixed plasma",
Vol. 1 (1969) Adriatica, Bari.
- [II/4] DRAWIN H.W., FELENBOCK P.
"Data for Plasmas in Local Thermodynamic Equilibrium",
Gauthier-Villars, Paris (1965).
- [II/5] HERZBERG C.
"Spectra of diatomic molecules" (1950) Di Van Nostand Company, New-York.
- [II/6] JANAF
"Thermochemical tables", US National Bureau of Standard N.S.RDS (1985)
Tomes 1 et 2.
- [II/7] ROSEN B.
"Selected constants, spectroscopy data relative to diatomic molecules", (1970)
Samaceta, Paris.
- [II/8] CHANG J.S., BEUTHE T.G.,
J. High Temp. Chem. Proc., 1 (1992) pp. 333-341.
- [II/9] DRAWIN H.W., FELENBOCK P.
"Numerical value of partition fonction" (1965) Gauthier-Villars, Paris.
- [II/10] STRINGANOV.A.R., SVENTITSKI.N.S.,
"Tables of spectral lines of neutral and ionized atomes", IFI/Plenum, New-York,
Washintogton (1968).
- [II/11] WEAST R.C., ASTLE M.J., BEYER W.M.
Handbook of Chemistry and Physics (1984) CRC Press, Florida.
- [II/12] BOUMANS P.W.J.M.
"Theory of spectrochemical excitation", High-Watts L.T.D., London (1966).
- [II/13] VUKANOVIC V.
Rev. Iéna, Vol. 5 (1994) pp. 280-284.
- [II/14] CAPITELLI M., FICOCELLI E.V., MOLINARI E.
"Equilibrium Composition and Thermodynamic Properties of mixed plasma",
Vol. 2 (1970) Adriatica, Bari.

- [II/15] PELLETIER J.P.
"Techniques numériques appliquées au calcul scientifique", Masson, Paris (1982).
- [II/16] ANDRE P.
Doctorat d'Université, n° 771,
Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand (1995).
- [II/17] ANDRE P.,
IEEE. Transactions on plasma science., Vol. 23, n° 3 (1995) pp.453-458.
- [II/18] ANDRE P.,
Laboratoire Arc Electrique et Plasma Thermique, Clermont-Ferrand
Communication personnelle.
- [II/19] PATEYRON B., ELCHINGER M.-F., DELLUC G., and FAUCHAIS P.,
Plasma Chemistry and Plasma Processing., Vol. 12, n° 4 (1992) pp.421-448.
- [II/20] RAFFANEL S.
Doctorat d'Université, n° 170, Université Paul Sabatier, Toulouse
(Sciences) (1987).
- [II/21] YUB EFINOVA
Sov. Tech. Phys. Lett., Vol. 8, n° 3 (1992) p. 177.
- [II/22] AUBRETON J.
Doctorat d'état ès-sciences Physiques, Université de Limoges (1985).
- [II/23] MEXMAIN J.M.
Doctorat de 3ème cycle, n° 83-31, Université de Limoges (1983).
- [II/24] IKONOMOV N., PAVLOVIC B., VUKANOVIC., RAKICEVIC N.,
Spectrochimica. Acta., Vol. 26B (1971) pp. 117-121.

ANNEXE A

A.1. Principe de la méthode de Newton-Raphson

Soient $(n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$ une première approximation des quatre racines du système formé par les équations (II-14) à (II-17) écrites sous la forme :

$$F(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = 0 \quad (A-1-1)$$

$$G(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = 0 \quad (A-1-2)$$

$$H(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = 0 \quad (A-1-3)$$

$$L(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = 0 \quad (A-1-4)$$

A chaque équation on peut appliquer la formule de Taylor au premier ordre autour du point $(n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$.

$$\text{On pose : } P_0 = (n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$$

point de départ de l'opération.

$$F(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = F_{P_0} + \left. \frac{\partial F}{\partial n_e} \right|_{P_0} dn_e + \left. \frac{\partial F}{\partial n_{Ar}} \right|_{P_0} dn_{Ar} \quad (A-1-5)$$

$$+ \left. \frac{\partial F}{\partial n_C} \right|_{P_0} dn_C + \left. \frac{\partial F}{\partial n_O} \right|_{P_0} dn_O$$

$$G(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = G_{P_0} + \left. \frac{\partial G}{\partial n_e} \right|_{P_0} dn_e + \left. \frac{\partial G}{\partial n_{Ar}} \right|_{P_0} dn_{Ar} \quad (A-1-6)$$

$$+ \left. \frac{\partial G}{\partial n_C} \right|_{P_0} dn_C + \left. \frac{\partial G}{\partial n_O} \right|_{P_0} dn_O$$

$$H(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = H_{P_0} + \left. \frac{\partial H}{\partial n_e} \right|_{P_0} dn_e + \left. \frac{\partial H}{\partial n_{Ar}} \right|_{P_0} dn_{Ar} \quad (A-1-7)$$

$$+ \left. \frac{\partial H}{\partial n_C} \right|_{P_0} dn_C + \left. \frac{\partial H}{\partial n_O} \right|_{P_0} dn_O$$

$$L(n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) = L_{P_0} + \left. \frac{\partial L}{\partial n_e} \right|_{P_0} dn_e + \left. \frac{\partial L}{\partial n_{Ar}} \right|_{P_0} dn_{Ar} \quad (A-1-8)$$

$$+ \left. \frac{\partial L}{\partial n_C} \right|_{P_0} dn_C + \left. \frac{\partial L}{\partial n_O} \right|_{P_0} dn_O$$

Si le point (n_e, n_{Ar}, n_C, n_O) est solution, les termes de gauche des équations (A-1-5) à (A-1-8) sont nuls et on est donc ramené à un système linéaire par rapport à dn_e , dn_{Ar} , dn_C et dn_O que l'on peut écrire sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial F}{\partial n_e} \Big|_{P_0} & \frac{\partial F}{\partial n_{Ar}} \Big|_{P_0} & \frac{\partial F}{\partial n_C} \Big|_{P_0} & \frac{\partial F}{\partial n_O} \Big|_{P_0} \\ \frac{\partial G}{\partial n_e} \Big|_{P_0} & \frac{\partial G}{\partial n_{Ar}} \Big|_{P_0} & \frac{\partial G}{\partial n_C} \Big|_{P_0} & \frac{\partial G}{\partial n_O} \Big|_{P_0} \\ \frac{\partial H}{\partial n_e} \Big|_{P_0} & \frac{\partial H}{\partial n_{Ar}} \Big|_{P_0} & \frac{\partial H}{\partial n_C} \Big|_{P_0} & \frac{\partial H}{\partial n_O} \Big|_{P_0} \\ \frac{\partial L}{\partial n_e} \Big|_{P_0} & \frac{\partial L}{\partial n_{Ar}} \Big|_{P_0} & \frac{\partial L}{\partial n_C} \Big|_{P_0} & \frac{\partial L}{\partial n_O} \Big|_{P_0} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} dn_e \\ dn_{Ar} \\ dn_C \\ dn_O \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -F_{P_0} \\ -G_{P_0} \\ -H_{P_0} \\ -L_{P_0} \end{bmatrix} \quad (A-1-9)$$

En partant du point initial $(n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$ il suffit de résoudre le système linéaire ci-dessus pour obtenir l'écart dn_e, dn_{Ar}, dn_C et dn_O entre les coordonnées du point initial et celles du point solution. On obtient ainsi :

$$\begin{aligned} n_e &= n_{e_0} + dn_e \\ n_{Ar} &= n_{Ar_0} + dn_{Ar} \\ n_C &= n_{C_0} + dn_C \\ n_O &= n_{O_0} + dn_O \end{aligned} \quad (9-1-10)$$

La résolution du système est décrite dans l'annexe (A.2).

A.2. Résolution du système

Nous avons élaboré un programme en Turbo-Pascal permettant de résoudre le système non linéaire précédemment défini. Ce programme peut se décomposer comme suit :

Pour une température T donnée, des sous-programmes permettent de calculer les fonctions de partition Q_i des différentes espèces du plasma et par la suite les constantes d'équilibre S_i et K_i sont calculées.

Un autre sous-programme permet de calculer les diverses dérivées partielles de F, G, H, L définies en annexe A.1.

Pour chaque valeur arbitraire de $(n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$ l'opération est répétée tant que les valeurs ne sont pas solutions du système. Les valeurs des données initiales doivent être choisies pour que le système d'équations converge à la précision que nous avons imposée (10^{-12}) afin de déterminer le point solution $(n_{e_0}, n_{Ar_0}, n_{C_0}, n_{O_0})$ avec une bonne approximation. Par exemple pour une proportion de 83 % Ar, 17 % CO_2 les valeurs initiales sont : $n_{e_0} = 10^2, n_{Ar_0} = 10^2, n_{C_0} = 10^6, n_{O_0} = 10^6$. Mais, quand on change la proportion de CO_2 parfois on est obligée de changer les données initiales pour que le système d'équations converge.

Un sous-programme basé sur la méthode de pivot-partiel de Gauss, permet la résolution du système linéaire (A-1-9).

L'organigramme du programme est présenté sur la figure (A.1.1).

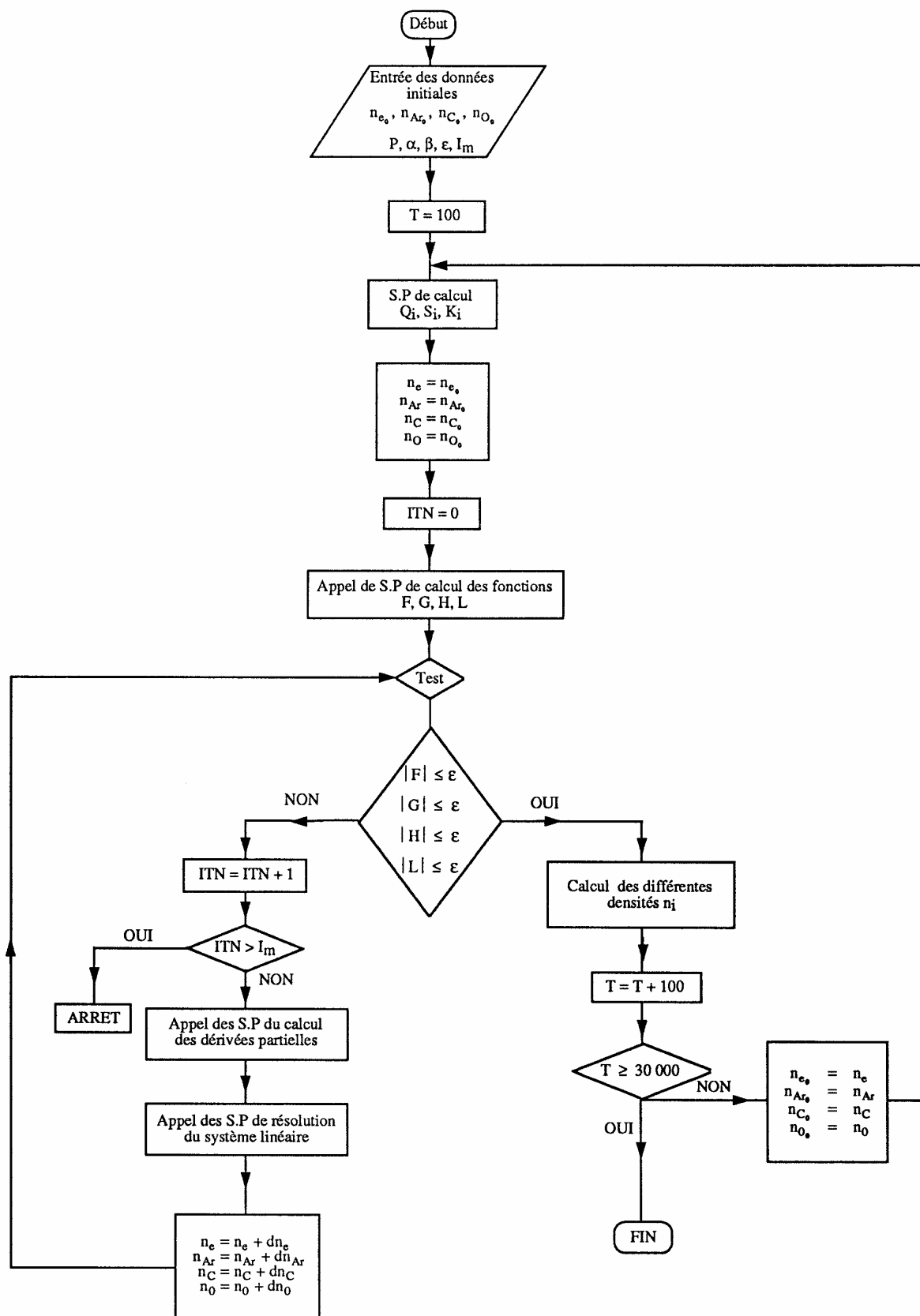


Figure (A.1.1) : Organigramme du calcul de composition.

CHAPITRE III

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

L'architecture générale du dispositif expérimental que nous avons utilisé est représentée sur la figure (III.1). L'ensemble du dispositif est composé de la chambre à arc, du dispositif de mesures spectroscopiques et du système d'acquisition.

La première partie de ce chapitre est consacrée à la description de la chambre à arc ; les mesures nécessitant une grande stabilité et une bonne reproductibilité, la chambre dans laquelle le plasma est créé est un élément essentiel du dispositif expérimental.

La deuxième et la troisième partie concernent le dispositif optique et le système d'acquisition.

III.1. CHAMBRE A ARC

Une condition préalable à une localisation précise du volume de plasma à analyser pour en faire l'étude spectroscopique est la grande stabilité de la colonne.

Une bonne stabilité de la colonne est généralement obtenue avec une chambre dite de type MAECKER [III/1] très largement utilisée pour les mesures spectroscopiques sur l'arc électrique. C'est une stabilisation par parois qui consiste à confiner l'arc dans un cylindre. En ce qui concerne notre étude, nous avons conçu une chambre similaire composée de plusieurs coupelles creuses en cuivre, refroidies séparément par une circulation d'eau. La chambre à arc que nous avons réalisée est représentée sur la figure (III.2).

Les coupelles en cuivre sont séparées les unes des autres par des coupelles en bakélite qui ont une double utilité :

- elles assurent l'isolation électrique entre les coupelles en cuivre c'est-à-dire qu'elles maintiennent la différence de potentiel entre l'anode et la cathode,
- elles servent à l'injection du gaz plasmagène dans l'arc.

En effet, nous avons utilisé deux de ces coupelles pour injecter notre mélange (Ar-CO_2), tangentiellement à la colonne de l'arc afin de minimiser la turbulence au niveau du plasma, figure (III.3a). Notre choix d'électrodes s'est porté sur une cathode en tungstène qui a une haute température de fusion, ce qui empêche sa rapide érosion ; elle est en position supérieure pour assurer une meilleure stabilité de l'arc ; c'est une tige de 4 mm de diamètre avec l'extrémité usinée en cône. Quant à l'anode, en position inférieure, elle ne sert qu'à collecter les électrons et la température y est moins élevée qu'à la cathode. Aussi nous avons choisi une anode en cuivre.

La figure (III.3b) présente un exemple de schéma du coupelle qui porte les électrodes : qu'on appelle porte-électrode.

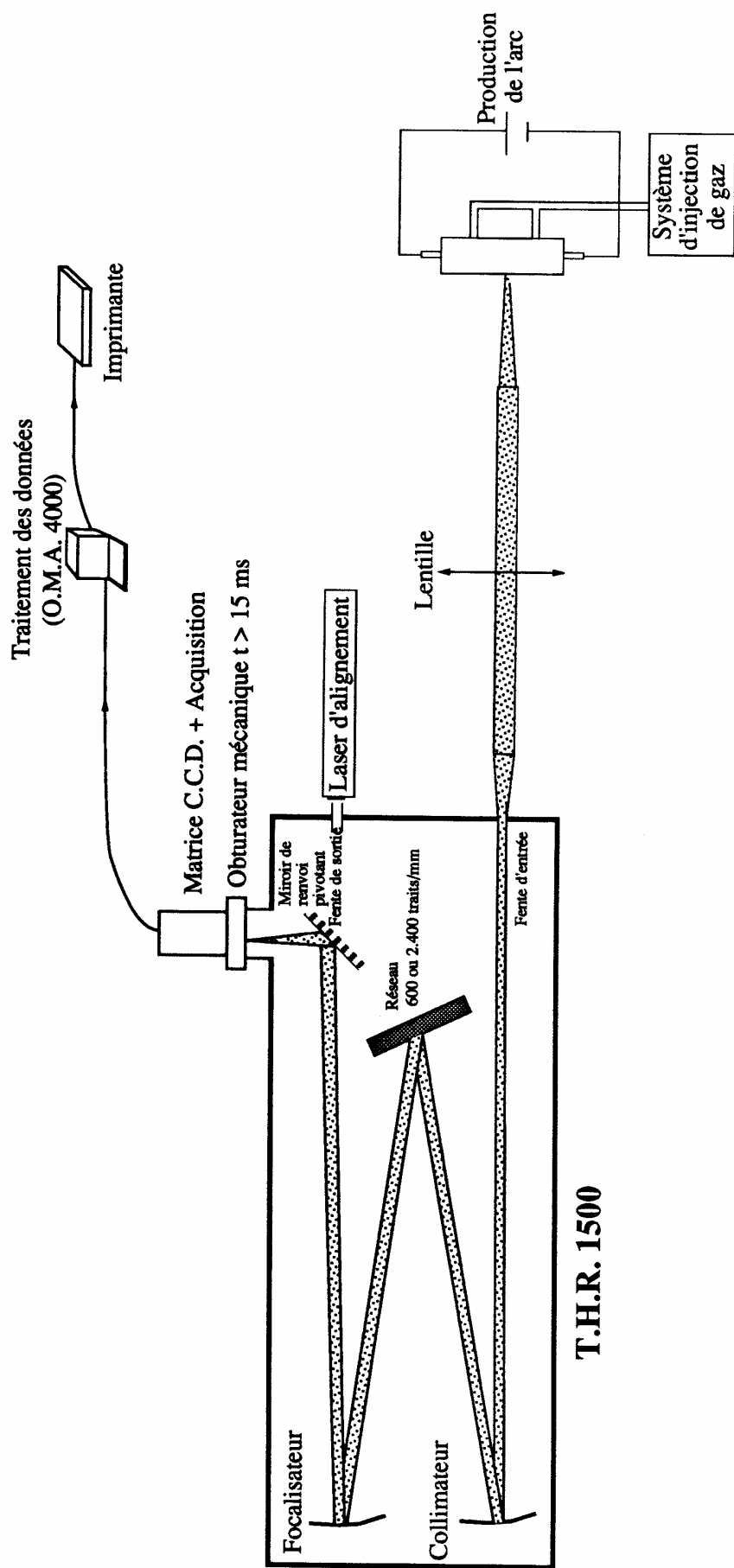


Figure (III.1) : Schéma général de la chaîne de mesure spectroscopique.

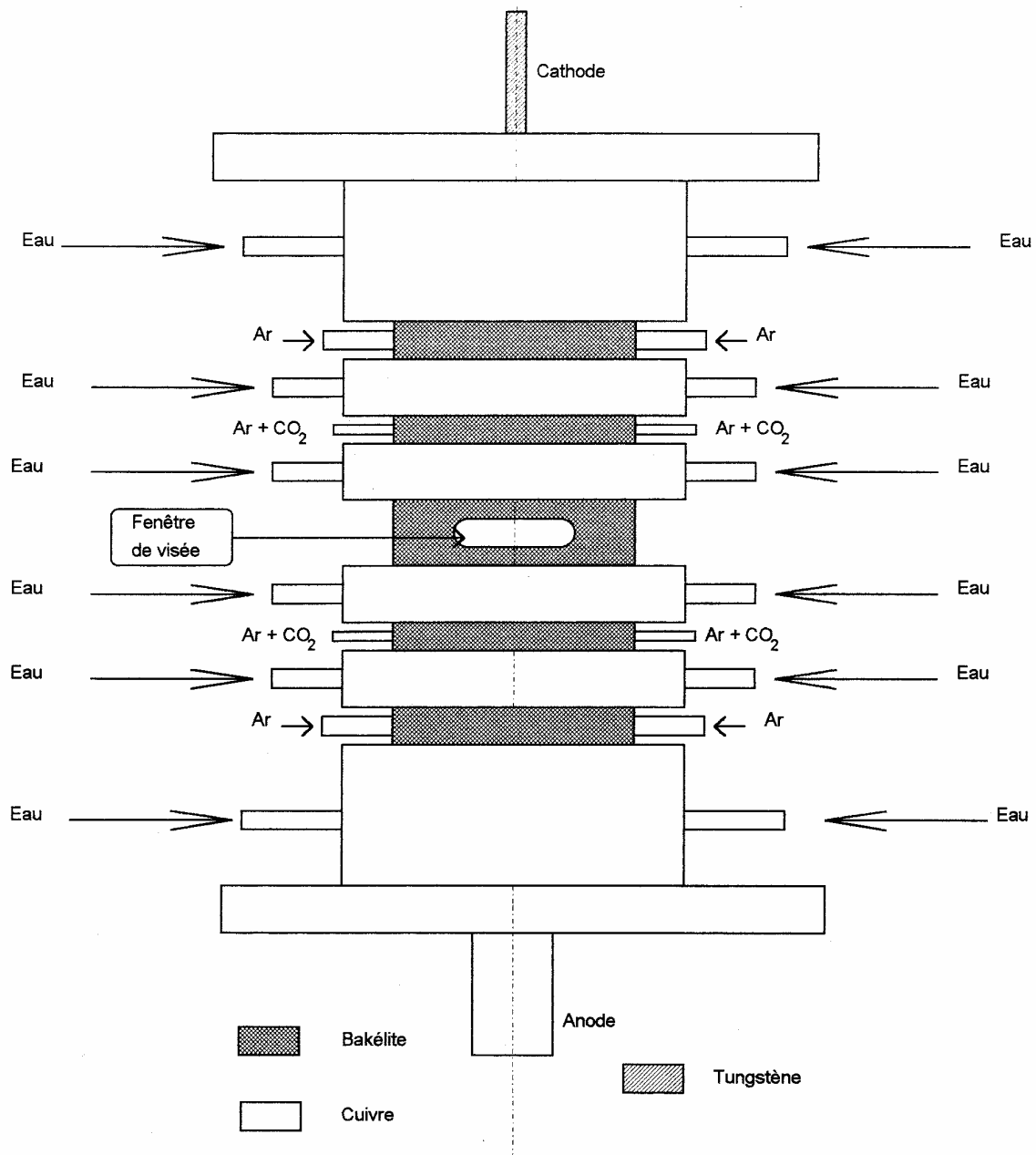


Figure (III.2a) Chambre à arc.

Une coupelle de refroidissement ayant un trou central conique guide l'anode. Elle permet d'éviter la pollution de la colonne d'arc par des vapeurs de cuivre issues de l'anode. La même forme de coupelle a été conçue pour la cathode, figure (III.3c).

La distance entre ces deux électrodes est de l'ordre de quatre centimètres. D'autre part, afin d'empêcher la dégradation des électrodes et d'améliorer ainsi la stabilité de l'arc, on introduit un gaz neutre, l'argon, au niveau des électrodes. On crée au départ un court-circuit par l'approchement de la cathode (mobile) vers l'anode, puis on met l'ensemble du système sous tension. Ensuite, l'arc s'établit par la séparation directe des deux électrodes grâce à un ressort de rappel (figure III.2b). Une fois l'arc amorcé, il est confiné dans le conduit constitué par l'empilement de disques de refroidissement, coupelles de cuivre de 6 mm de diamètre interne, figure (III.3d).

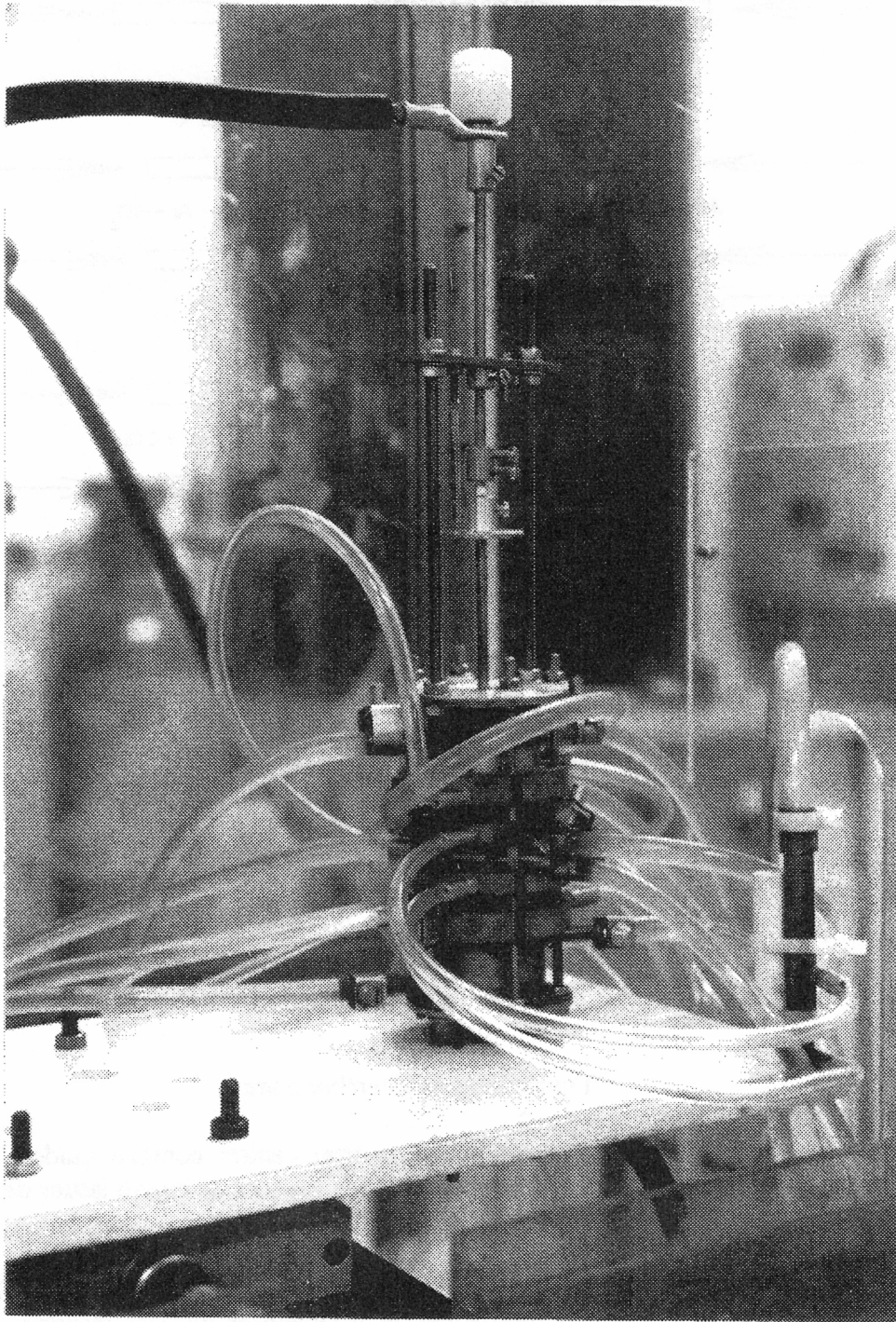
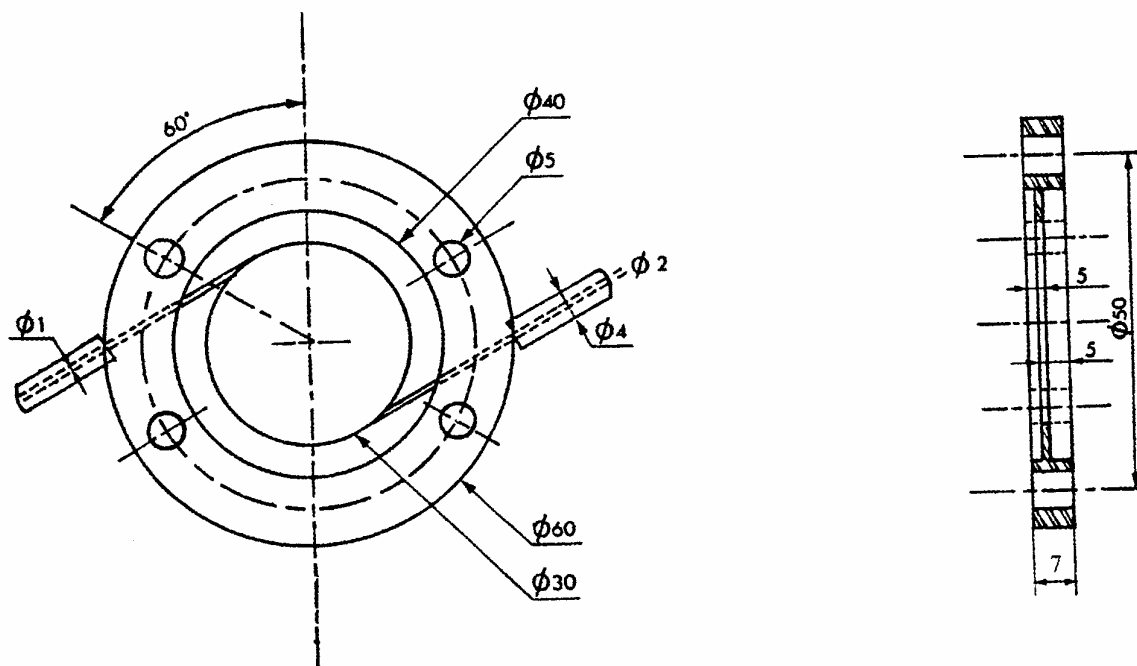
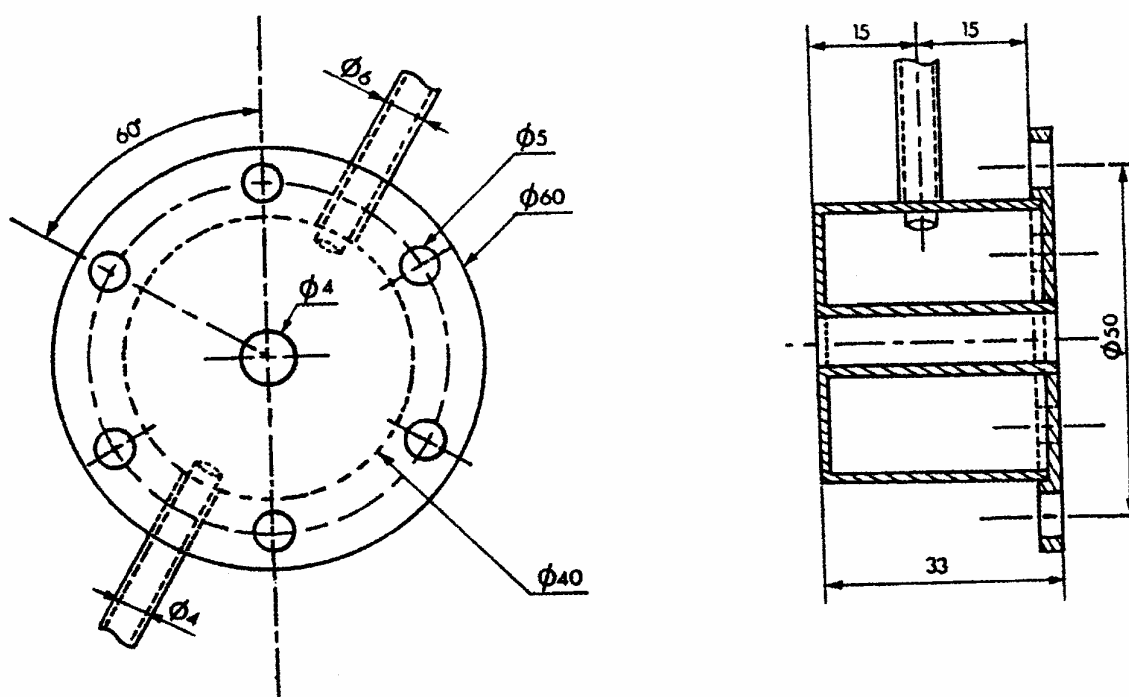


Figure (II.2b) : photo de la chambre à arc montrant les différentes parties de la chambre.

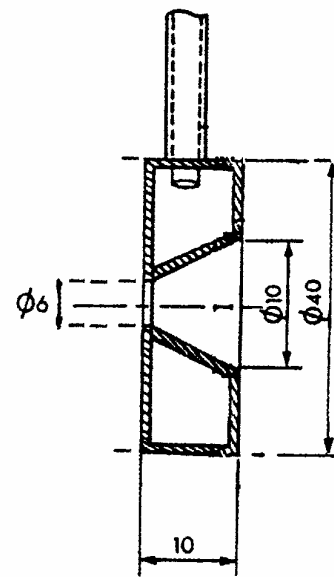
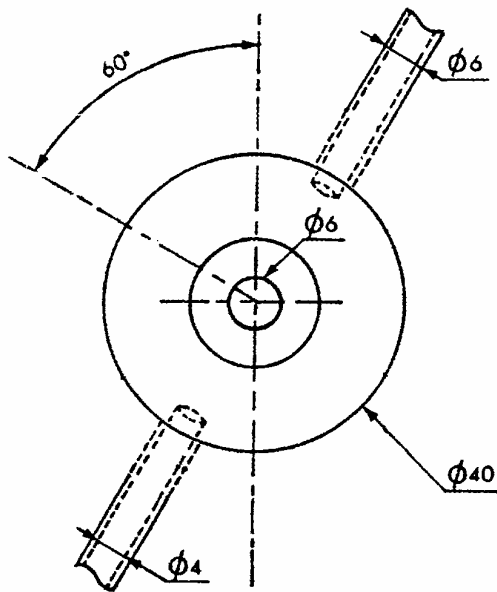


a) Exemple de coupelle d'arrivée de gaz.

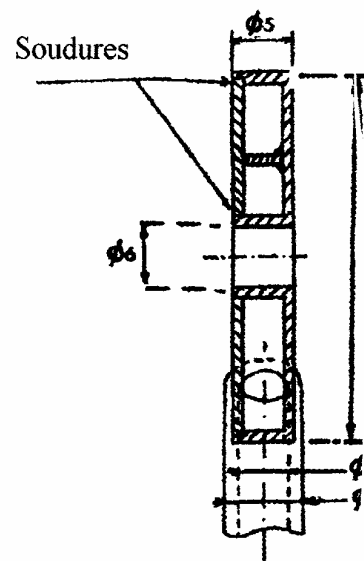
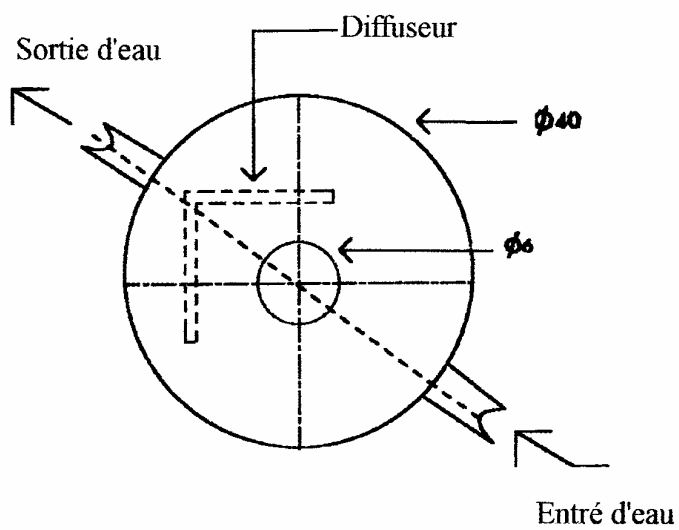


b) Porte-électrode.

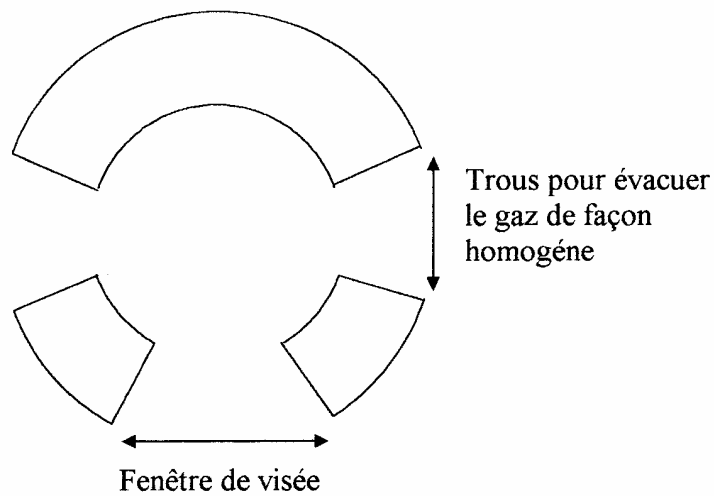
Figure (III.3) : Les différentes pièces de la chambre à arc.



c) Coupelle de refroidissement en cuivre avec un trou central conique.



d) Coupelle de refroidissement en cuivre où l'arc est confiné.



e) Coupelle qui porte la fenêtre de visée.

Afin d'effectuer des mesures au milieu de la colonne, nous avons réalisé une fenêtre de visée à mi-distance entre l'anode et la cathode dans la partie cylindrique de la colonne. La figure (III.3e) présente le schéma de la coupelle qui porte la fente de visée. Cette figure montre que de part et d'autre de la fenêtre de visée, nous avons introduit deux trous symétriques par rapport à la fenêtre de visée. Ces deux trous ont pour but d'évacuer les gaz injectés de façon plus homogène.

La chambre est placée verticalement et elle est fixée sur un support mobile qui permet le réglage de sa position et son déplacement de l'arc dans deux directions :

- déplacement (au 1/10 mm) suivant l'axe z qui permet une exploration longitudinale de la colonne.

- déplacement (au 1/10 mm) suivant l'axe y, radialement à la colonne afin de déterminer pour chaque corde d'arc, l'intensité de raie $L(y, \lambda)$ émise à la distance y de l'axe.

III.2. LE SYSTEME D'INJECTION DE GAZ

Le schéma du montage est présenté sur la figure (III.4). Trois débitmètres à bille (Sho rate 1355 Brooks) nous permettent de régler les débits des gaz injectés dans la chambre à arc.

Les deux débitmètres D_2 et D_3 servent à régler la composition du mélange Ar- CO_2 qui est introduit tangentielllement au milieu de la partie cylindrique de la colonne de la décharge une fois l'arc établi.

Les valeurs des débits d'argon injecté au niveau des électrodes et les valeurs des débits d'argon et de CO_2 injectés au milieu de la colonne d'arc sont données dans le tableau (III.1) pour les différentes valeurs de pourcentage de CO_2 utilisées dans nos mesures. Pour la valeur du pourcentage 40 % de CO_2 nous avons utilisé un autre débitmètre D_3 : R.2.15.A Bille S.S sur CO_2 , au lieu du débitmètre D_3 pour des raisons techniques.

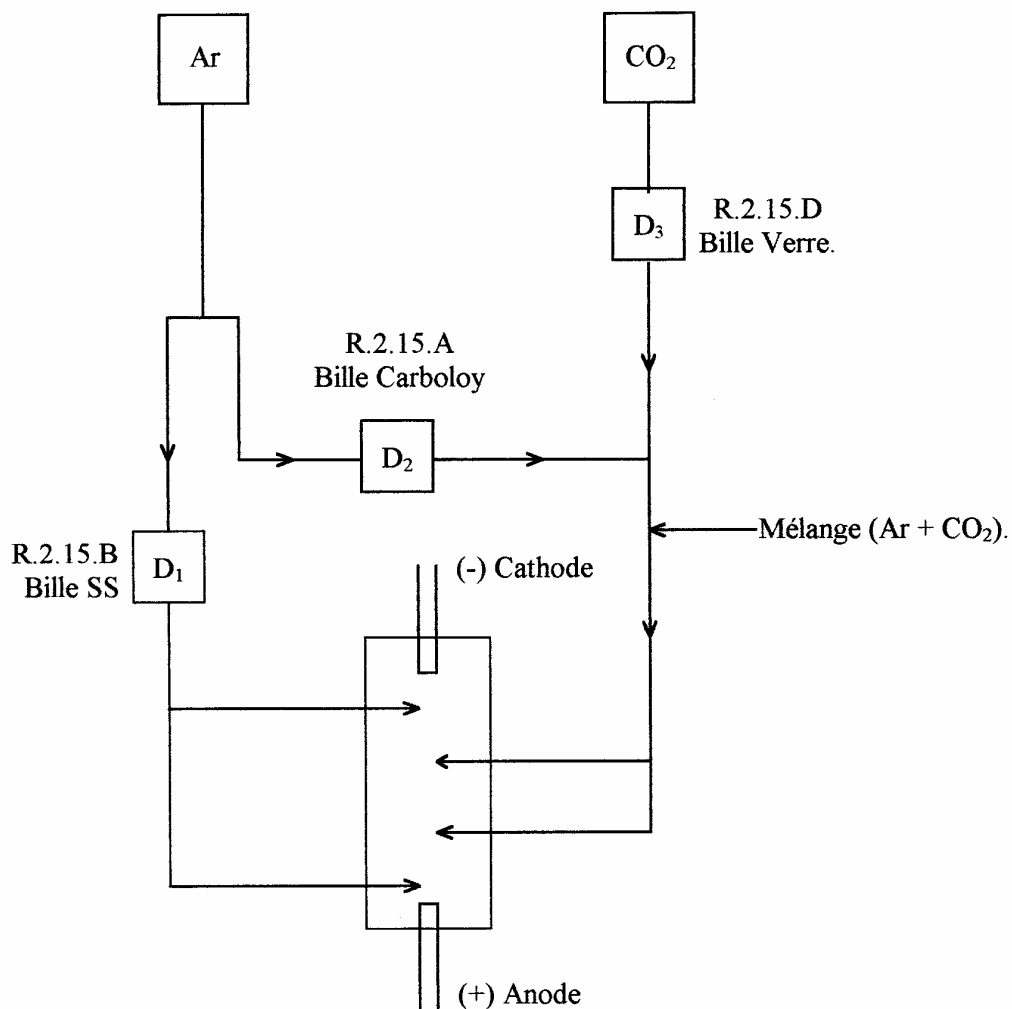


Figure (III.4) : Système d'injection de gaz.

Débit d'argon au niveau des électrodes		Débit d'argon injecté au milieu de la colonne d'arc		Débit de CO ₂ injecté au milieu de la colonne d'arc		% de CO ₂ injecté au centre de la colonne d'arc en tenant compte de l'argon des électrodes
Valeurs lues (mm)	Valeurs en (l/min)	Valeurs lues (mm)	Valeurs en (l/min)	Valeurs lues (mm)	Valeurs en (l/min)	
30	1	141	1,840	34	0,033	1,200
30	1	130	1,690	38	0,042	1,500
30	1	130	1,690	68	0,085	3,000
30	1	130	1,690	113	0,170	6,000
30	1	78	1,080	145	0,270	11,500
30	1	42	0,540	145	0,270	15,000
30	1	25	0,270	145	0,270	17,500
30	1	25	0,270	98	0,850	40,000

Tableau (III.1) : Valeurs des débits d'argon et de CO₂ injectés dans le plasma du mélange Ar-CO₂ utilisés dans cette étude.

III.3. LE DISPOSITIF DE MESURE SPECTROSCOPIQUE

Le dispositif de mesure spectroscopique comporte les éléments suivants :

- un système optique de focalisation de l'arc sur la fente d'entrée du monochromateur,
- un monochromateur,
- un système d'acquisition O.M.A. (Optical Multichannel Analyser) couplé à un micro-ordinateur,
- un logiciel d'acquisition et d'analyse de données.

L'ensemble de la chaîne de détection est étalonné à l'aide d'une lampe étalon à ruban de tungstène. Nous décrivons en détail dans ce paragraphe ces différentes parties.

III.3.1. Le système optique

Un ensemble optique est placé entre l'arc et la fente d'entrée du monochromateur afin de focaliser l'image de l'arc sur la fente d'entrée et de limiter l'intensité lumineuse à l'entrée du monochromateur ; il se compose d'une lentille achromatique de distance focale $f = 250$ mm et d'un système de deux diaphragmes. L'alignement optique est réalisé à l'aide d'un laser hélium-néon de 0,95 mW de puissance et de longueur d'onde $\lambda = 632,8$ nm placé à la sortie de la fente de sortie du monochromateur (figure III.1).

- Le monochromateur :

Le monochromateur utilisé est un monochromateur très haute résolution Jobin-Yvon [III/2] de distance focale 1,5 m. Le montage optique de type CZERNY-TURNER est représenté sur la figure (III.1). Le monochromateur peut travailler en simple ou en double passage. Son pouvoir théorique de résolution est de 15 000 pour $\lambda = 500$ nm en simple passage avec le réseau 600 tr/mm. Les rayons lumineux issus du plasma d'arc, passant par la fente d'entrée du monochromateur, sont collimatés par un miroir sphérique en direction du réseau qui les disperse.

Cet appareil est équipé par deux réseaux de diffraction [III/2], l'un d'un grand nombre de traits/mm (2 400 tr/mm) dont l'efficacité maximum est comprise entre 380 nm - 500 nm, l'autre d'un plus faible nombre de traits/mm (600 tr/mm) utilisé pour couvrir la gamme spectrale de 380 nm à 11 00 nm. La largeur spectrale visible sur toute la matrice pour le réseau 2 400 tr/mm est comprise entre 2,3 nm et 0,6 nm expliqué plus loin, figure (III.5). Le réseau 600 tr/mm permet d'obtenir un domaine spectral de 10,5 nm environ sur toute la largeur de la matrice CCD.

Un deuxième miroir sphérique focalise le faisceau lumineux, correspondant à la longueur d'onde choisie, sur un miroir plan (escamotable) qui renvoie l'image du faisceau sur une matrice CCD, figure (III.1). L'étendue spectrale obtenue à la sortie est fonction de la dispersion linéaire du réseau.

III.3.2. Etalonnage en longueur d'onde

La dispersion linéaire est l'étendue spectrale obtenue dans le plan focal de sortie du spectromètre. La détermination de cette grandeur est une opération indispensable pour l'étalonnage en longueur d'onde du spectre. Elle varie en fonction de la longueur d'onde.

L'étude de la variation de la dispersion nécessite la connaissance des longueurs d'onde de plusieurs raies sur toute l'étendue spectrale du réseau utilisé.

Pour cela, nous avons utilisé une lampe spectrale à vapeur de mercure de type crayon, et des lampes spectrales de marque OSRAM de type Cs/10, Hg.Cd/10 ou Rb/10. La variation de la dispersion linéaire expérimentale [III/3] en fonction de la longueur d'onde pour les deux réseaux, 2 400 tr/mm et 600 tr/mm, est représentée sur la figure (III.5).

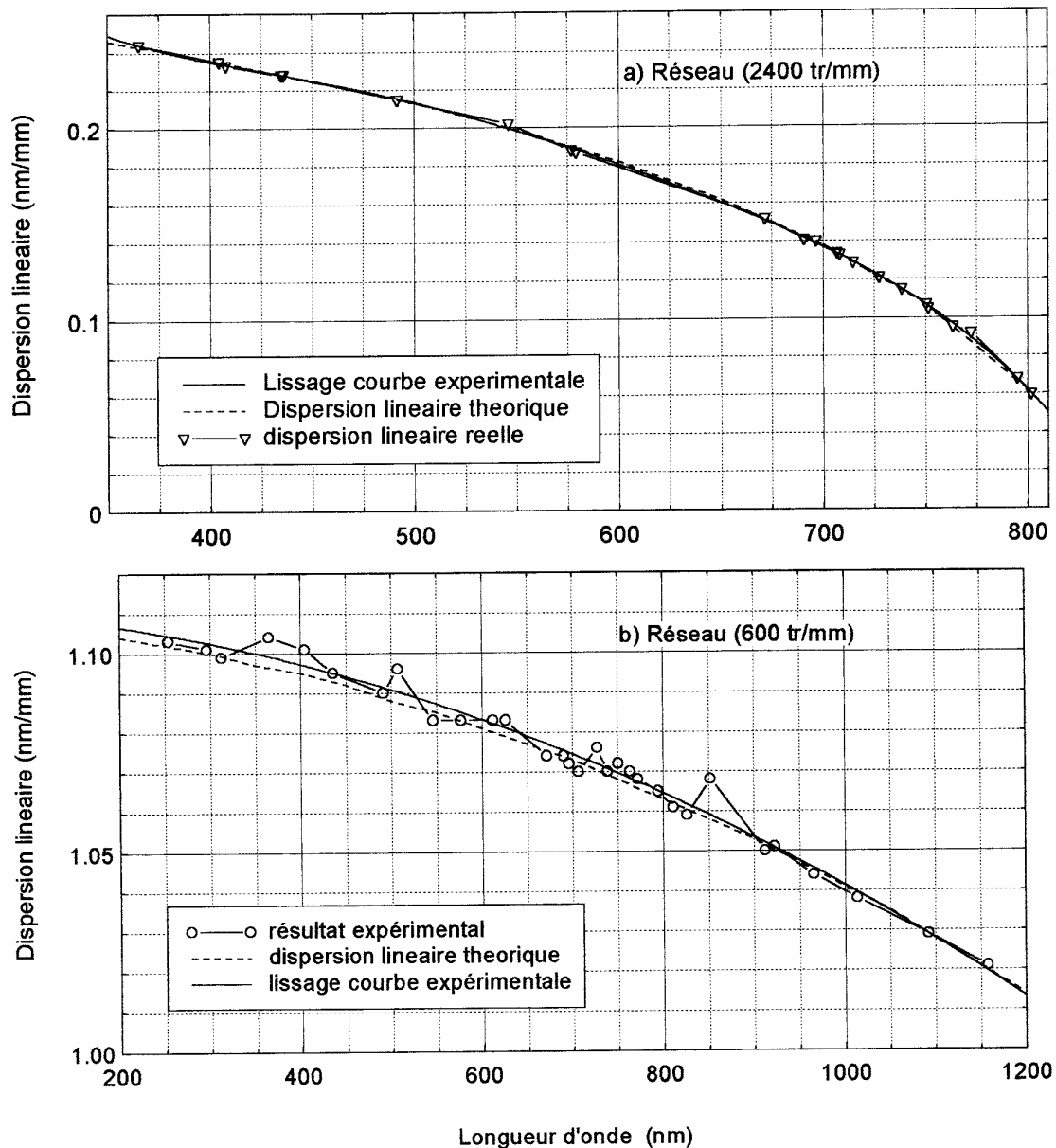


Figure (III.5) : Dispersion linéaire des deux réseaux en fonction de la longueur d'onde.

III.4. SYSTEME D'ACQUISITION

La réalisation des mesures spectroscopiques du rayonnement émis par le plasma à analyser, nécessite l'utilisation d'une chaîne de capteurs composée d'un spectroscope très haute résolution THR 1500 couplé à une matrice CCD.

III.4.1. Description et fonctionnement de l'O.M.A.

Il donne l'image instantanée d'une ou plusieurs raies selon la bande spectrale sélectionnée par le monochromateur.

Le système OMA est présenté, figure (III.1) ; il est constitué par :

- une matrice CCD (Charge Collector Device : dispositif collecteur de charges) qui peut être couplée à un intensificateur d'images,

- un bloc de puissance qui alimente l'électronique du détecteur et le refroidisseur à effet Peltier qui permet le refroidissement du détecteur jusqu'à -70°C ,

- en sortie du détecteur, le signal est transmis par deux fibres optiques vers la carte d'acquisition insérée dans le micro-ordinateur, il est transformé en signal électrique puis traité.

Cette carte fait l'interface entre le logiciel d'exploitation et le détecteur ; elle permet d'acquérir, de stocker les données, d'afficher les spectres, elle coordonne l'analyse.

Nous allons décrire en détail les différentes parties de l'OMA [III/4].

III.4.2. Principe de fonctionnement de la matrice CCD

La matrice CCD de marque Thomson se compose de 512×512 photocellules ou pixels de $19 \mu\text{m} \times 19 \mu\text{m}$ chacune. La gamme spectrale de ces cellules s'étend de 380 à 1100 nm. La zone image est donc un carré de $9,73 \text{ mm} \times 9,73 \text{ mm}$ de côté, figure (III.6).

Chaque pixel accumule des charges proportionnellement à la lumière incidente pendant un temps d'intégration fixé. La durée d'exposition peut s'effectuer grâce à deux systèmes :

- soit par l'intermédiaire d'un obturateur mécanique (ou shutter) qui se situe juste devant la matrice CCD. Il s'ouvre pendant un temps Δt , fixé par le logiciel ou par une synchronisation extérieure. Ce système est utilisable pour des temps d'exposition supérieurs à 100 millisecondes [III/3].

- soit par l'intermédiaire de la photocathode de l'intensificateur d'images utilisée comme obturateur électronique pour des temps d'exposition inférieurs à la milliseconde, ce qui nécessite un système de synchronisation externe.

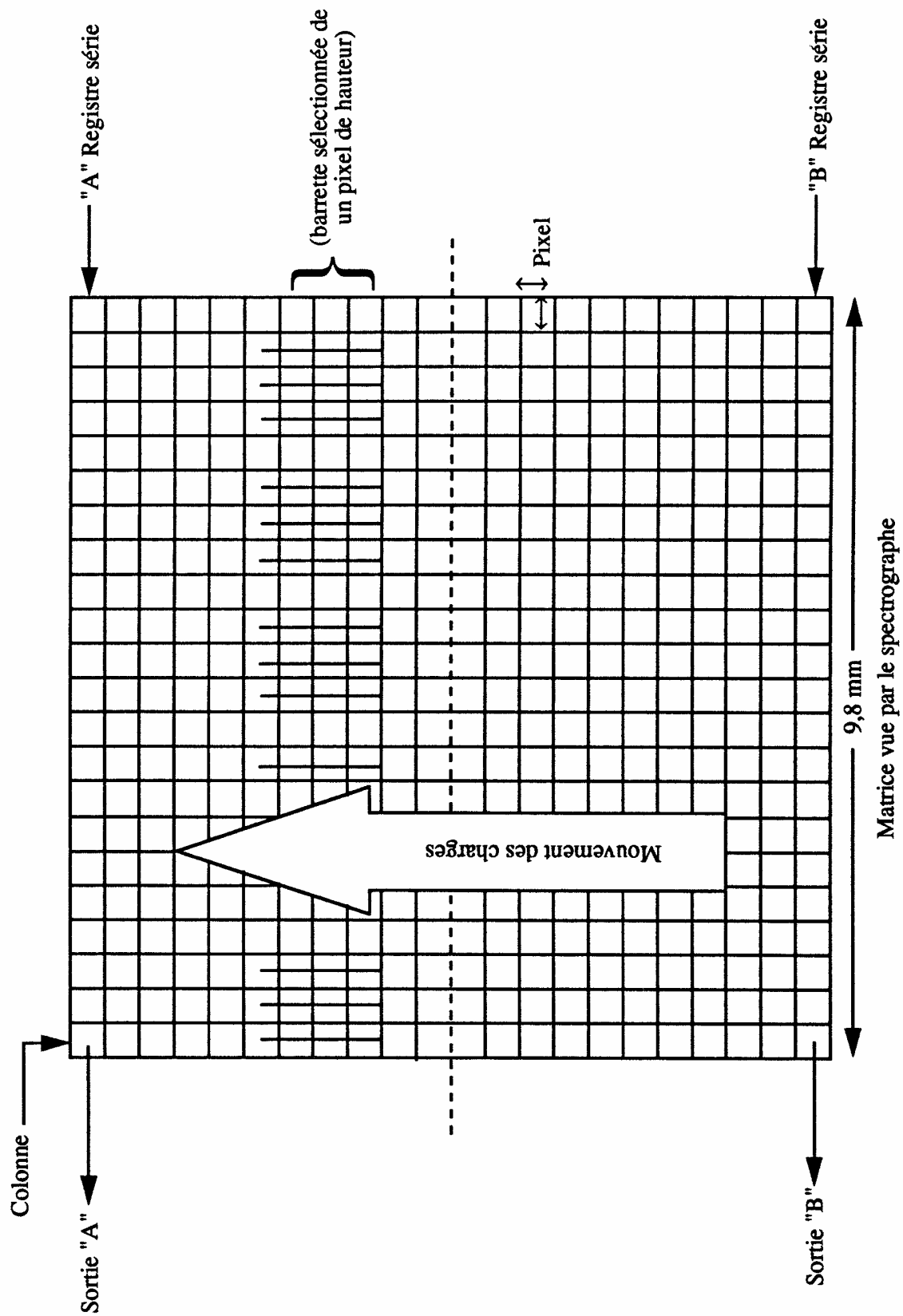


Figure (III.6) : La matrice CCD et le déplacement des charges.

Ce pulseur électronique permet d'étudier l'évolution temporelle de phénomènes très rapides.

Le temps d'exposition écoulé, l'obturateur se ferme. Ensuite les charges peuvent être lues de nombreuses manières selon le type de programmation choisie par l'utilisateur.

Le principe de lecture qu'on utilise est schématisé sur la figure (III.6).

Les charges sont déplacées ligne par ligne vers l'un des registres sélectionnés (A ou B) à la cadence de 10 μ s par ligne. Les lignes de pixels chargés peuvent être, une fois le registre atteint, lues en sortie de registre les unes après les autres, ou sommées à l'intérieur du registre et lues par groupe.

Les groupements de lignes sont réalisés par une consigne envoyée par le micro-ordinateur. Le registre de stockage est lu en sortie à la cadence de 10 μ s par pixel. Si certaines lignes ou groupements de lignes ne sont pas sélectionnés, la lecture du registre est faite à raison de 3 μ s par pixel. On peut visualiser une bande spectrale donnée sur plusieurs lignes regroupées. Ces bandes spectrales sont visualisées sur l'écran du micro-ordinateur et mises en mémoire.

Un bruit de fond, dû à la matrice elle-même, en grande partie formé par le bruit du courant d'obscurité peut être superposé au phénomène physique mesuré. Ce bruit est fonction croissante de la température. Pour diminuer fortement ce courant parasite, on a donc intérêt à travailler à de faibles températures. Pour cela la matrice est refroidie en utilisant un système à triple effet Peltier permettant de descendre jusqu'à la température de -72°C pour minimiser le bruit de fond.

Les spectres de raies enregistrées ont été réalisés seulement avec la matrice CCD sans intensificateur ; en effet le temps d'exposition Δt utilisé dans notre série de mesures est supérieur à la milliseconde et les signaux détectés ne sont pas faibles. La largeur de la bande spectrale visualisée, sur laquelle nous pouvons travailler est fonction des paramètres suivants :

- la dispersion linéaire du réseau utilisé (600 tr/mm),
- la largeur de la matrice CCD

Pour une longueur d'onde de 500 nm, la largeur spectrale sur la matrice CCD est de 10,58 nm. Cela donne une définition maximale par pixel de $20,67 \cdot 10^{-3}$ nm.

III.5. ETALONNAGE DE LA CHAÎNE DE DETECTION EN INTENSITÉ LUMINEUSE

La source étalon que nous avons utilisée est une lampe à ruban de tungstène de marque OSRAM, de type WI 14. La tension nominale est de 5,2 V pour un courant de 15 A, et son domaine spectral va de 300 à 800 nm.

Elle sert à effectuer l'étalonnage en luminance ($\text{W m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{nm}^{-1}$) du signal lumineux émis par la source étudiée afin de déterminer les valeurs absolues caractérisant le rayonnement étudié. Sur la figure (III.7) est représentée la luminance énergétique spectrique ($\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{nm}^{-1}$) de la lampe étalon.

Afin de conserver les mêmes conditions expérimentales, la lampe étalon est positionnée à la place de la chambre à arc. Nous avons réalisé nos mesures successivement avec la chambre

à arc, puis la lampe étalon afin d'obtenir la mesure absolue de la luminance de l'arc et d'étalonner ainsi la chaîne de mesure.

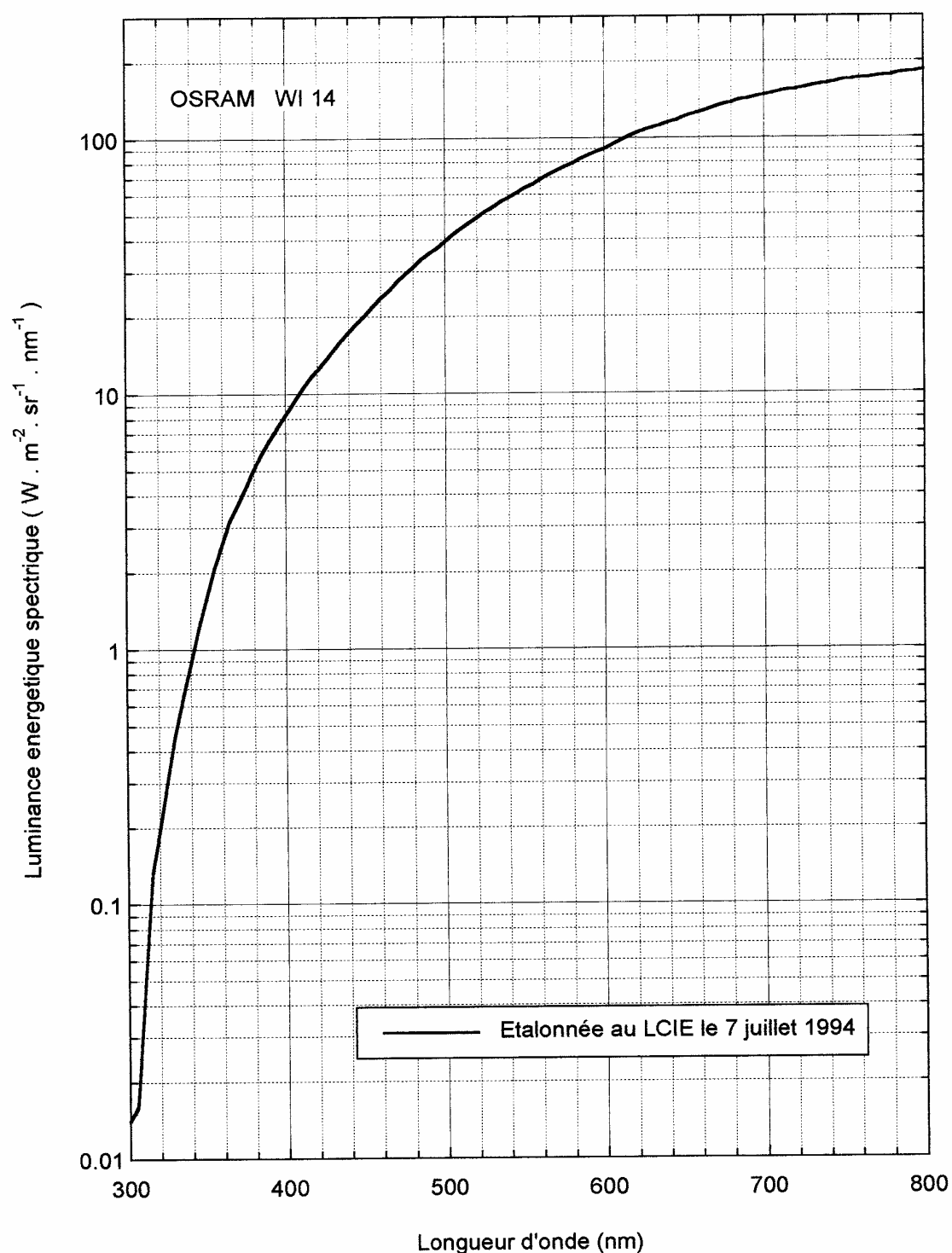


Figure (III.7) : Représentation de la luminance énergétique spectrique de la lampe étalon à ruban de tungstène de marque OSRAM de type WI 14 en fonction de la longueur d'onde.

La luminance de l'arc est donnée par la relation suivante :

$$L_{\text{arc}}(y, \lambda) = \frac{L_{Lp}(\lambda)}{L_{Lp, \text{mesuré}}(\lambda)} \times \underbrace{\int_{\lambda_{11}}^{\lambda_2} Y_{\text{Nbcp}}(y, \lambda) d\lambda}_{S_{\text{Nbcp}}} \times \underbrace{\frac{\Delta\lambda}{dl}}_{\Delta\lambda(\text{m})} \times L_p$$

$L_{\text{arc}}(y, \lambda)$: luminance de l'arc ($\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$),

$L_{Lp}(\lambda)$: luminance énergétique spectrique en ($\text{W.m}^{-3}.\text{sr}^{-1}$) de la lampe étalon pour chaque longueur d'onde λ choisie,

S_{Nbcp} : valeur de la surface de la raie, fond continu retranché. Cette valeur est calculée par le logiciel, il donne la surface en unité arbitraire.

$\frac{\Delta\lambda}{dl}$: dispersion linéaire par unité de longueur du réseau ($\Delta\lambda$ en nm, dl en μm),

$L_p = 19 \mu\text{m}$: largeur d'un pixel,

$L_{Lp, \text{mesuré}}(\lambda)$: luminance de la lampe étalon en unité arbitraire.

Il faut donc connaître avec précision la dispersion linéaire $\frac{\Delta\lambda}{dl}$ du réseau utilisé pour déterminer la mesure absolue de la luminance de l'arc et en déduire l'intensité absolue de la raie étudiée.

Comme nous l'avons expliqué et décrit dans ce chapitre, le dispositif expérimental que nous utilisons actuellement nous permet d'obtenir les valeurs expérimentales de la luminance totale des raies sélectionnées.

Ces mesures représentent une part importante du travail présenté ; les résultats sont donnés dans le chapitre V.

Nous allons maintenant exposer la méthodologie de la détermination de la température à partir de ce type de mesure.

BIBLIOGRAPHIE

- [III/1] MAECKER H.,
Z. Für Physik, 392-305 (1960).
- [III/2] JOBIN-YVON.,
Documentation monochromateur THR 1500 (1977).
- [III/3] FAUQUET Jean-François.,
“Etalonnage en longueur d’onde et en flux lumineux de deux spectromètres équipés de
caméra CCD et de barrette intensifiée”.
Mémoire d’Ingénieur C.N.A.M., Physique, 25 Mars 1996, Clermont-Fd.
- [III/4] EG&G Pprinceton Applied Research
Documentation OMA 4 (1991).

CHAPITRE IV

MESURES SPECTROSCOPIQUES

Ce chapitre présente les techniques d'analyse par spectroscopie d'émission que nous avons développées pour caractériser le plasma ; nous signalons les difficultés rencontrées relatives à l'exploitation des mesures.

Nous précisons comment nous pouvons obtenir, à partir des valeurs expérimentales de l'intensité totale de certaines raies émises par le plasma, les grandeurs physiques qui nous intéressent pour connaître le milieu réactionnel : les températures, les densités des espèces en présence.

Nous avons mis au point un programme nous permettant de déterminer la densité de population de l'espèce sur le niveau excité émetteur à partir de la mesure de l'intensité absolue d'une raie atomique ; c'est une des méthodes que nous allons détailler pour déterminer la température en un point donné du plasma.

La détermination de la température des espèces lourdes est également effectuée en calculant la température rotationnelle de certaines molécules ou radicaux du plasma.

Cette détermination de la température est réalisée soit par la méthode du diagramme de Boltzmann lorsque les raies rotationnelles sont bien définies, soit par la comparaison entre le spectre moléculaire expérimental et des spectres moléculaires calculés pour différentes températures. Cette méthode est développée au laboratoire par H Coitout et G. Faure [IV/1].

IV.1. SPECTROSCOPIE D'EMISSION

Les méthodes de diagnostic spectroscopique qui vont être abordées dans ce chapitre, supposent que le plasma est optiquement mince (raies non autoabsorbées). A partir de la luminance totale d'une raie, qui est une valeur intégrale, on peut remonter au coefficient d'émission local qui est la grandeur qui nous intéresse. Pour cela, il faut mesurer la luminance suivant plusieurs cordes de la décharge et traiter les résultats par l'inversion d'Abel [IV/2].

Les problèmes mathématiques ou numériques qui surgissent d'un tel calcul seront signalés.

Nous rappelons comment, dans le cas où l'hypothèse de l'ETL est valable, la connaissance du coefficient d'émission conduit aux valeurs locales de la température du plasma et des densités des espèces lorsque les paramètres de la lampe étalon sont connus.

Certaines de ces méthodes nécessitent la connaissance de la densité totale $n(T)$ et de la fonction de partition $Q(T)$ de l'espèce chimique considérée.

Dans l'hypothèse de l'ETL, à la pression atmosphérique, le calcul de la composition du plasma Ar-CO₂ nous permet de connaître la densité totale $n(T)$ d'une espèce en fonction de la température.

Connaissant les valeurs expérimentales de l'intensité lumineuse totale $J(r, \lambda_{nm})$ mesurée en différents points du diamètre de l'arc et à l'aide de l'expression (I-7), la température $T(r)$ est déterminée numériquement par la méthode de Newton-Raphson [IV/3] décrite dans l'annexe A.II.1. C'est le même principe de calcul que pour la résolution du système d'équations (A-1-9), mais dans ce cas l'inconnue est la température et non pas les valeurs des densités des espèces. C'est un autre programme qui nous permis de déterminer les valeurs de température pour chaque valeur de rayon (r) et de longueur d'onde (λ_{nm}).

L'incertitude sur la détermination de la distribution radiale de la température est due en partie à l'erreur faite dans le calcul du coefficient d'émission $J(r, \lambda_{nm})$.

Pour les calculs ultérieurs, la distribution radiale expérimentale de la température $T(r)$ qui résulte de l'inversion d'Abel, peut être déterminée de plusieurs manières qui vont être décrites.

IV.1.1. Méthode de l'intensité absolue d'une raie

La mesure de la température d'excitation à partir de l'intensité absolue d'une raie peut être déterminée à partir de la relation (I-7) citée au chapitre I ; pour déterminer la distribution radiale de la température $T(r)$, il faut connaître la densité d'atomes neutres $n(T)$ et la fonction de partition $Q(T)$ qui sont fonctions de la température ainsi que les valeurs du coefficient d'émission $J(r, \lambda_{nm})$.

Connaissant tous ces paramètres, qui sont tabulés et détaillés dans le chapitre II, la température déterminée par cette méthode, peut s'écrire sous la forme suivante :

$$T = \frac{E_m}{k \ln \left(\frac{hc}{4\pi} \times \frac{1}{\lambda_{nm}} \times \frac{g_m A_{mn}}{J(r, \lambda_{nm})} \times \frac{n(T)}{Q(T)} \right)} \quad (IV-1)$$

l'incertitude sur la température est donnée par la relation :

$$s_T = \sqrt{\left(\frac{\partial T}{\partial J} \right)^2 s_J^2 + \left(\frac{\partial T}{\partial A_{nm}} \right)^2 s_{A_{nm}}^2} \quad (IV-2)$$

où $\left(\frac{\partial T}{\partial J} \right)$, $\left(\frac{\partial T}{\partial A_{nm}} \right)$ représentent les dérivées partielles de la température T par rapport à l'émissivité locale J et par rapport à la probabilité de transition A_{nm} .

En introduisant les expressions de $\left(\frac{\partial T}{\partial J} \right)$ et de $\left(\frac{\partial T}{\partial A_{nm}} \right)$, la relation (IV-2) devient :

$$\left(\frac{s_T}{T} \right)^2 = \left(\frac{kT}{E_m} \right)^2 \left[\left(\frac{s_J}{J} \right)^2 + \left(\frac{s_{A_{nm}}}{A_{nm}} \right)^2 \right] \quad (IV-3)$$

$\frac{s_J}{J}$: représente l'incertitude relative sur l'émissivité locale

$\frac{s_{A_{nm}}}{A_{nm}}$: représente l'incertitude relative sur la probabilité de transition

Dans nos calculs, nous avons utilisé les valeurs de A_{mn} publiées par Weast [IV/4]. La précision sur les valeurs de A_{mn} est donnée dans le paragraphe (VI.6.1).

Cette méthode nécessite l'étalonnage absolue de la chaîne de mesure par une lampe étalon.

IV.1.2. Méthode de l'intensité relative des raies (Méthode de la pente de Boltzmann)

L'équation (I-7) donnant l'intensité totale $J(r, \lambda_{nm})$ peut se mettre sous la forme :

$$\ln\left(\frac{J(r, \lambda_{nm}) \lambda_{nm}}{A_{nm}}\right) = -\frac{E_m}{kT} + \ln\left(\frac{g_m n(T) hc}{4\pi Q(T)}\right) \quad (IV-4)$$

c : vitesse de la lumière

Pour une température donnée, le terme $\ln\left(\frac{g_m n(T) hc}{4\pi Q(T)}\right)$ est une constante.

Si on considère maintenant plusieurs raies, le premier terme $\ln\left(\frac{J(r, \lambda_{nm}) \lambda_{nm}}{A_{nm}}\right)$ est une fonction linéaire de E_m , la pente de la droite $\left(-\frac{1}{kT}\right)$ permet de déterminer la température $T(r)$.

Cette méthode est aussi connue sous le nom de la méthode de la pente de Boltzmann dans le cas de deux raies. On considère les transitions $m_1 \rightarrow n_1$ et $m_2 \rightarrow n_2$, pour chacune de ces deux raies de longueurs d'onde λ_1 et λ_2 ; on peut calculer la température à partir de la relation suivante :

$$T = \frac{E_2 - E_1}{k \ln\left(\frac{J_1 \lambda_1 A_2 g_2}{J_2 \lambda_2 A_1 g_1}\right)} \quad (IV-5)$$

J_1 et J_2 sont respectivement les intensités totales de chaque raie, A_1 et A_2 sont les probabilités de transition et g_1 et g_2 sont les poids statistiques de chaque raie : $E_2 - E_1$ est la différence d'énergie des deux raies.

Un calcul d'erreur sur la température nous conduit à l'expression suivante :

$$\left(\frac{s_T}{T}\right)^2 = \left(\frac{kT}{|E_2 - E_1|}\right)^2 \left[\left(\frac{s_{J_2}}{J_2}\right)^2 + \left(\frac{s_{J_1}}{J_1}\right)^2 + \left(\frac{s_{A_2}}{A_2}\right)^2 + \left(\frac{s_{A_1}}{A_1}\right)^2 \right] \quad (IV-6)$$

qui nous amène à faire plusieurs remarques quant à l'utilisation pratique de cette méthode.

D'après l'équation (IV-6), on remarque que l'incertitude relative $\left(\frac{s_T}{T}\right)$ sur cette méthode est inversement proportionnelle à l'écart entre les énergies des deux niveaux émetteurs. Donc l'incertitude relative est d'autant plus grande que la valeur $|E_2 - E_1|$ est faible. Pour minimiser cette incertitude le couple de raies choisi doit-être caractérisé par une différence d'énergie

d'excitation $\Delta E = E_2 - E_1$ relativement importante. Mais ce choix de raies est parfois difficilement réalisable ; c'est le cas de l'atome d'argon neutre dans le visible dont l'écart maximum entre les énergies des niveaux émetteurs est de l'ordre de l'électronvolt. Alors que pour avoir un ΔT faible il faut avoir un ΔE élevé par exemple [IV/5] :

pour une température de 5 000 K, pour obtenir une précision $\Delta T = 100$ K, la valeur de ΔE doit-être de 9,9 eV. L'incertitude relative sur la température est $\frac{\Delta T}{T} = 0,66 \%$.

Dans le cas de l'argon l'utilisation de cette méthode est peu précise car on ne trouve pas $\Delta E \approx 9,9$ eV.

Cependant, cette méthode sera employée à titre de comparaison seulement dans le cas de l'argon pur ; elle nous permet de donner un ordre de grandeur sur le calcul de la température sans étalonnage absolu de l'appareillage de mesure ; c'est l'avantage de cette méthode.

IV.2. APPLICATION DE L'INVERSION D'ABEL À LA DETERMINATION DU COEFFICIENT D'EMISSION $J(r, \lambda)$ A PARTIR DES VALEURS DE LA LUMINANCE TOTALE $L(y, \lambda)$ D'UNE RAIE

En considérant que le plasma est un milieu optiquement mince, c'est-à-dire que le phénomène d'autoabsorption est négligeable par rapport à celui d'émission, nous pouvons dire que l'intensité lumineuse $L(y, \lambda)$ émise par une tranche parallèle à la direction d'observation correspond à la somme des émissions locales $J(r, \lambda)$ de tous les éléments de volume concernés, figure (IV.1)

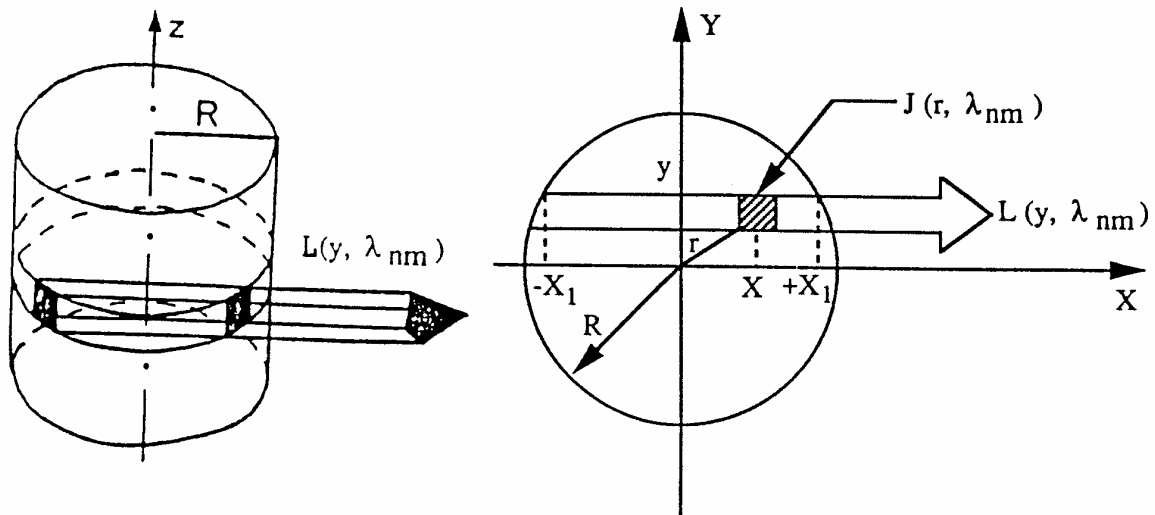


Figure (IV.1) : Section de la colonne de plasma dans le plan XOY.

L'intensité mesurée correspondant à un balayage horizontal dans la direction d'observation à la hauteur y est donnée par la relation :

$$L(y, \lambda) = \int_{-x_1}^{x_1} J(r, \lambda) dx = 2 \int_0^{x_1} J(r, \lambda) dx \quad (IV-7)$$

avec $x^2 + y^2 = r^2$

la relation devient :

$$L(y, \lambda) = \int_y^R J(r, \lambda) \frac{r dr}{\sqrt{r^2 - y^2}} \quad (IV-8)$$

La transformation mathématique pour accéder au calcul conduisant à la distribution radiale $J(r, \lambda)$ à partir des mesures d'intensité lumineuse est appelée inversion de l'équation intégrale d'Abel. D'où :

$$J(r, \lambda) = -\frac{1}{\pi} \int_r^R \frac{dL(y, \lambda)}{dy} \times \frac{1}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad (IV-9)$$

Nous exposons ici les difficultés rencontrées dans le calcul numérique pour obtenir la valeur de l'intensité radiale $J(r, \lambda_{nm})$:

- pour $r = 0$, nous obtenons une forme indéterminée car $\frac{dL(y, \lambda)}{dy} = 0$ au sommet c'est-à-dire (sur l'axe de symétrie de la décharge) ; il en est de même pour $r = R$,
- les valeurs au bord de la décharge sont toujours entachées d'une erreur importante du fait de la plus faible émissivité du plasma,
- les valeurs mesurées de la luminance totale sont des valeurs discrètes et le calcul de la dérivée $\frac{dL(y, \lambda)}{dy}$ nécessite un lissage des points expérimentaux par une fonction.

La dérivée étant très sensible aux fluctuations des valeurs expérimentales de $L(y, \lambda)$, la dérivation numérique est de ce fait un problème délicat.

Une méthode d'interpolation à partir des points expérimentaux est apparue nécessaire pour éliminer les fluctuations dues aux irrégularités ou aux instabilités de la décharge. La fonction de régression qu'il faut appliquer doit être choisie avec précaution en fonction de la forme des données de $L(y, \lambda)$.

L'application de la méthode d'inversion aux valeurs mesurées de $L(y, \lambda)$, conduit à l'obtention d'une expression de la distribution radiale du coefficient d'émission $J(r, \lambda_{nm})$ recherché.

Les mesures de la luminance totale $L(y, \lambda)$ d'une raie spectrale sont réalisées en utilisant le dispositif expérimental décrit au chapitre III.

Deux méthodes d'interpolation des valeurs expérimentales mesurées ont été utilisées : une méthode polynomiale et une méthode de splines d'ordre 2.

IV.2.1. Méthode polynomiale

Quand les données expérimentales constituent une distribution présentant peu de fluctuations, on peut utiliser un lissage des valeurs expérimentales par un polynôme.

Le lissage est effectué avec un logiciel qui utilise une méthode de moindres carrés.

La fonction $L(y, \lambda)$ peut alors être mise sous la forme d'un polynôme de degré P . Les polynômes donnant les meilleurs résultats sont ceux de degrés 6 à 8. Dans ces conditions, l'intégrale donnant $J(r, \lambda)$ peut être calculée de façon analytique [IV//2].

Nous allons expliciter l'expression analytique de l'intensité radiale $J(r, \lambda)$:

La fonction de la distribution expérimentale de l'intensité $L(y, \lambda)$ est représentée par un polynôme de degré P et de coefficients a_i sur l'intervalle $[r, R]$, figure (IV.2).

La dérivée $\frac{dL(y, \lambda)}{dy}$ est de degré $P - 1$ et de la forme :

$$\frac{dL(y, \lambda)}{dy} = \sum_{j=0}^{P-1} a_j y^j \quad (\text{IV-10})$$

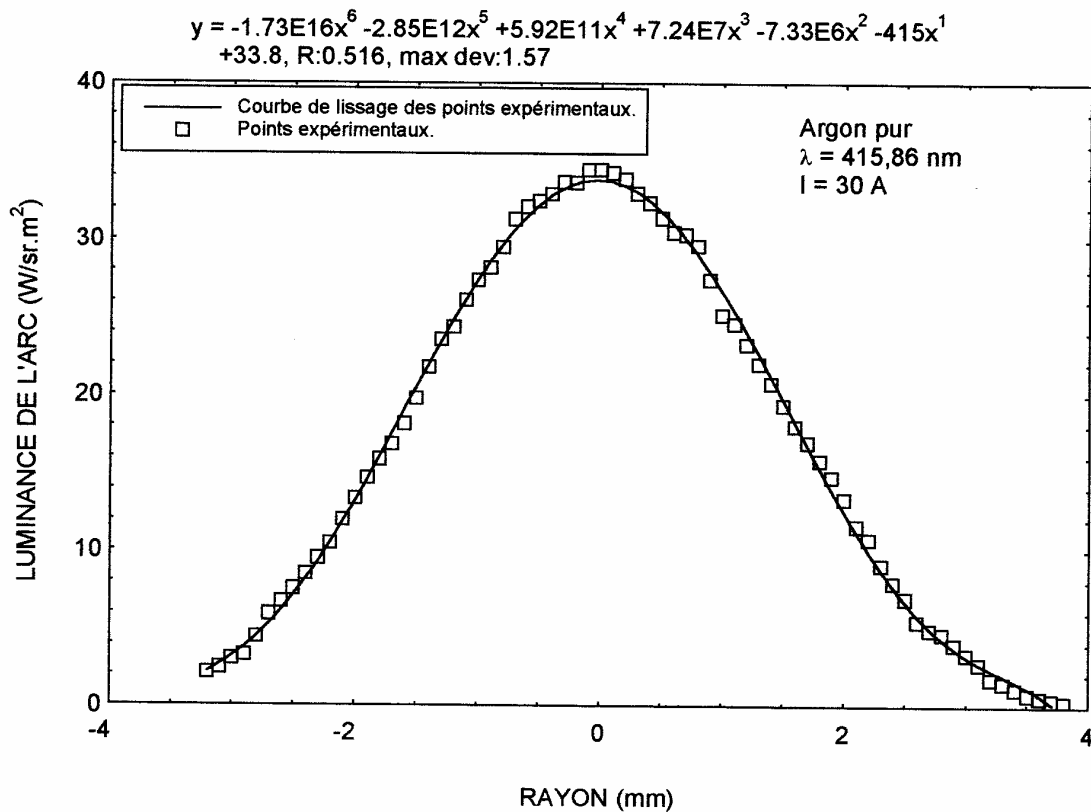


Figure (IV.2) : Courbe de lissage des valeurs expérimentales de la luminance de l'arc par un polynôme de degré 6 dans le cas de l'argon pur.

Sur l'intervalle $[r, R]$ l'intégrale (IV-9) s'écrit :

$$J(r, \lambda) = -\frac{1}{\pi} \int_r^R \frac{\sum_{j=0}^{P-1} a_j y^j}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad (IV-11)$$

$$J(r, \lambda) = \sum_{j=0}^{P-1} \left(-\frac{a_j}{\pi} \int_r^R \frac{y^j}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \right) = \sum_{j=0}^{P-1} \left(-\frac{a_j}{\pi} I_j \right) \quad (IV-12)$$

$$\text{En posant : } I_j = \int_r^R \frac{y^j}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad 0 \leq j \leq P-1 \quad (IV-13)$$

I_j s'intègre par partie, d'où :

$$I_j = - \left[y^{j-1} \sqrt{y^2 - r^2} \right]_r^R - (j-1) \int_r^R y^{j-2} \sqrt{y^2 - r^2} dy \quad (IV-14)$$

ce qui conduit à la formule de récurrence suivante :

$$j I_j = \left[y^{j-1} \sqrt{y^2 - r^2} \right]_r^R + (j-1) r^2 I_{j-2} \quad (IV-15)$$

$$\text{avec : } I_0 = \int_r^R \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} = \left[\ln \left| \frac{y}{r} + \sqrt{\frac{y^2}{r^2} - 1} \right| \right] = \left[\ln \left| \frac{R}{r} + \sqrt{\frac{R^2}{r^2} - 1} \right| \right] \quad (IV-16)$$

$$I_1 = \int_r^R \frac{y dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} = \left[\sqrt{y^2 - r^2} \right]_r^R = \sqrt{R^2 - r^2} \quad (IV-17)$$

Les relations (IV-15), (IV-16) et (IV-17) permettent de calculer $J(r, \lambda)$ quel que soit le degré P du polynôme.

Pour le cas particulier $r = 0$, l'expression (IV-11) devient :

$$J(r, \lambda) = -\frac{1}{\pi} \int_{r+d\epsilon}^R \frac{A_{P-1} y^{P-1} + \dots + A_1 y + A_0}{y} dy \quad (IV-18)$$

$$J(r, \lambda) = -\frac{1}{\pi} \left[\frac{A_{P-1} y^{P-1}}{P-1} + \dots + A_1 y + A_0 \ln y \right]_{r+d\epsilon}^R \quad (IV-19)$$

$r + d\epsilon$ tend vers $d\epsilon$ quand $r = 0$.

Si la colonne de plasma, assimilée à un cylindre de rayon R , est vraiment symétrique, la mesure des points expérimentaux est symétrique ; ceci nous permet de lisser les résultats par un polynôme d'ordre pair et le problème du point de singularité à la limite inférieure de l'intégrale c'est-à-dire quand r tend vers 0 dans le cas où $r = 0$ n'existe plus.

Mais ce cas idéal ne correspond pas à la réalité expérimentale.

IV.2.2. Méthode des splines

Les courbes de la distribution expérimentale de l'intensité lumineuse $L(y, \lambda)$ sont déterminées en effectuant des mesures de $L(Dy, \lambda)$ pour des valeurs discrètes de y espacées d'un pas régulier. Notre première méthode d'intégration a été réalisée par un polynôme obtenu par un lissage de l'ensemble des points expérimentaux.

La figure (IV.3) montre que dans certains cas le polynôme est un peu éloigné des valeurs expérimentales, notamment au sommet et sur les ailes des courbes. Dans ce cas nous avons utilisé la méthode d'interpolation par des splines d'ordre 2.

Les polynômes obtenus sont raccordés de manière continue en imposant que les dérivées première et seconde soient continues [IV/6].

Donc il semble préférable de choisir la méthode d'interpolation par les fonctions splines détaillées dans l'annexe B.1, qui est celle utilisée dans le programme que nous avons mis au point lorsque la distribution des valeurs mesurées présente de grandes fluctuations.

Nous avons validé le programme de calcul de l'inversion d'Abel pour des fonctions test dont les fonctions inverses sont connues. Ces fonctions sont utilisées par différents auteurs : BRUNNER [IV/7], FAN et SQUIRE [IV/8], PIESSE [IV/9], BOCKHSTEN [IV/10].

La comparaison des nos résultats théoriques pour chaque fonction test est donnée dans l'annexe B.2.

L'écart maximal entre les valeurs analytiques et notre code numérique est au maximum de 6 % dans le cas le plus défavorable ($r = 0$) et en moyenne pour tous les autres points de 0,2 % environ.

IV.3. CHOIX DES RAIES

Le choix des raies utilisées pour la détermination des profils de température doit tenir compte d'un certain nombre de critères pour appliquer la méthode de l'intensité totale des raies atomiques :

- les raies doivent être assez intenses,
- les raies ne doivent pas être autoabsorbées,
- la probabilité de transition de chaque raie doit être connue,
- l'écart entre les valeurs des énergies d'excitation correspondant aux différents états excités des raies choisies doit être supérieur à 2 eV pour qu'on puisse utiliser la méthode de la pente de Boltzmann de manière satisfaisante,
- les raies doivent être expérimentalement bien séparées des raies voisines.

Les raies d'émission des atomes d'argon que nous avons étudiées dans ce mémoire pour la détermination de la température sont ($\lambda_1 = 415,86 \text{ nm}$; $\lambda_2 = 427,22 \text{ nm}$; $\lambda_3 = 696,54 \text{ nm}$). Ces raies ont été étudiées par de nombreux auteurs [IV/11], [IV/12], [IV/13], [IV/14].

Les raies de longueur d'onde ($\lambda_1 = 415,86 \text{ nm}$; $\lambda_2 = 427,22 \text{ nm}$) ont été choisies en raison de leur forte intensité et parce qu'elles ne sont pas autoabsorbées [IV/13]. La raie de longueur d'onde ($\lambda_3 = 696,54 \text{ nm}$) a été retenue à cause de sa faible autoabsorption [IV/13] [IV/14] dans notre domaine d'intensité de courant ($I \leq 50 \text{ A}$). Nous l'avons plus précisément choisie pour appliquer la méthode de la pente de Boltzmann.

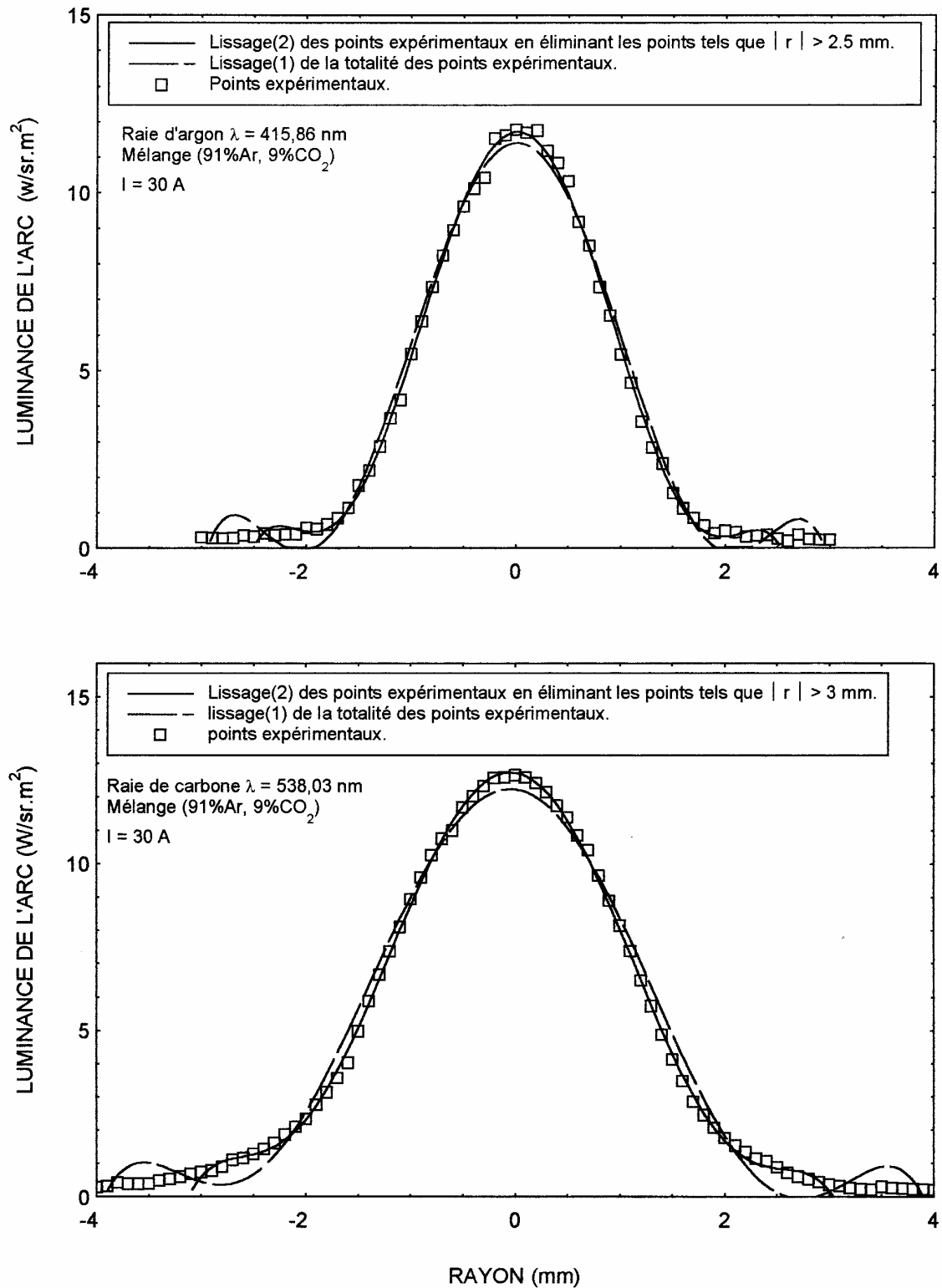


Figure (IV.3) : Courbes de lissage des valeurs expérimentales de la luminance de l'arc dans le cas d'un plasma Ar-CO₂ par un polynôme de degré 6.

Pour ce qui est des raies atomiques de l'argon une fois ionisé, nous n'avons pu observer que la raie $\lambda = 480,6$ nm pour un courant de 40 A et malheureusement elle n'était ni assez intense ni assez séparée des autres raies pour pouvoir l'utiliser. Les autres raies d'argon une fois ionisé n'ont pas été observées tant dans le plasma d'argon pur que dans le plasma de mélange Ar-CO₂ car le courant est limité à 40 A pour des raisons techniques.

Les raies atomiques du carbone que nous avons étudiées dans le plasma Ar-CO₂ en raison de leur forte intensité et du fait que leurs caractéristiques spectrales sont bien connues, elles ont les longueurs d'onde suivantes : $\lambda_4 = 538,03$ nm ; $\lambda_5 = 477,175$ nm ; $\lambda_6 = 493,205$ nm.

Nous représentons sur les figures (VI.4, VI.5) les profils résultants de l'intensité lumineuse en unité arbitraire (u.a) en fonction de la longueur d'onde en (u.a) de la raie de carbone de longueur d'onde $\lambda_6 = 493,205$ nm au milieu de la colonne d'arc pour différentes valeurs de courant et de pourcentage de CO₂.

L'observation et l'analyse de ces deux figures, montrent que les profils obtenus de cette raie sont auto-inversés dans certaines cas, c'est-à-dire que ces profils présentent un minimum dans la partie centrale de cette raie ; donc à cause de l'autoabsorption de cette raie, le plasma émet moins de photons au centre de la raie que sur les ailes. Nous pouvons en déduire que cette raie de longueur d'onde $\lambda_6 = 493,205$ nm présente une autoabsorption plus au moins marquée suivant les conditions expérimentales comme l'illustrent les deux figures (VI.4, VI.5).

Pour les faibles courants ($I = 10$ et 20 A), l'autoabsorption n'est pas visible pour les pourcentages de CO₂ injectés (figures (IV.4)).

Pour $I = 30$ A, l'autoabsorption a été observée pour de faibles pourcentages injectés inférieurs à 1,8 % CO₂, figure (IV.4).

Pour $I = 40$ A, l'autoabsorption est bien marquée quel que soit le pourcentage injecté, figure (IV.5).

De même, si on compare les profils de cette raie pour un même pourcentage de CO₂ (0,9 %) mais pour deux valeurs de courant différents $I = 30$ A (figure VI.4a) et $I = 40$ A (figure VI.5a), nous remarquons que le profil de la figure (VI.11a) est plus large que celui de la figure (VI.4a) et présente ainsi un creux au centre de la raie. Donc l'autoabsorption augmente avec le courant ce qu'a déjà été montré par d'autres auteurs [VI/13].

Nous présentons dans les tableaux (IV.1) et (IV.2) les caractéristiques des raies d'argon et de carbone que nous avons sélectionnées dans cette étude [IV/4] et [IV/15].

Nous avons aussi observé et étudié le triplet de l'oxygène aux longueurs d'onde $\lambda_7 = 777,3$ nm, $\lambda_8 = 777,5$ nm, $\lambda_9 = 777,6$ nm et nous en indiquons les caractéristiques spectrales dans le tableau (IV.3).

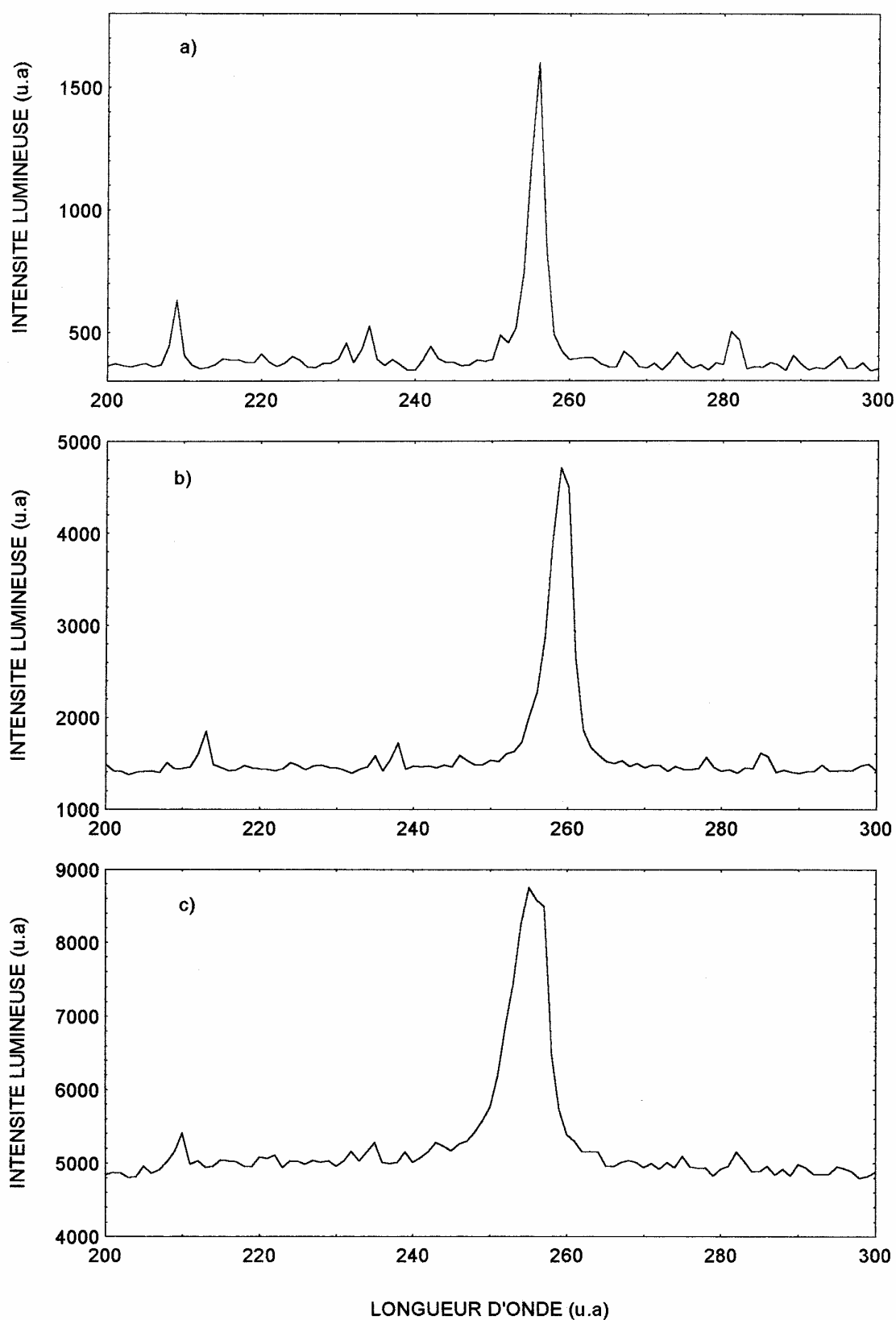


Figure (IV-4) : Représentation des profils de la raie de carbone ($\lambda = 493,205$ nm) pour un pourcentage de (0,9 % CO_2) au milieu de la colonne d'arc pour différentes valeurs de courant : a) 10 A, b) 20 A, c) 30 A).

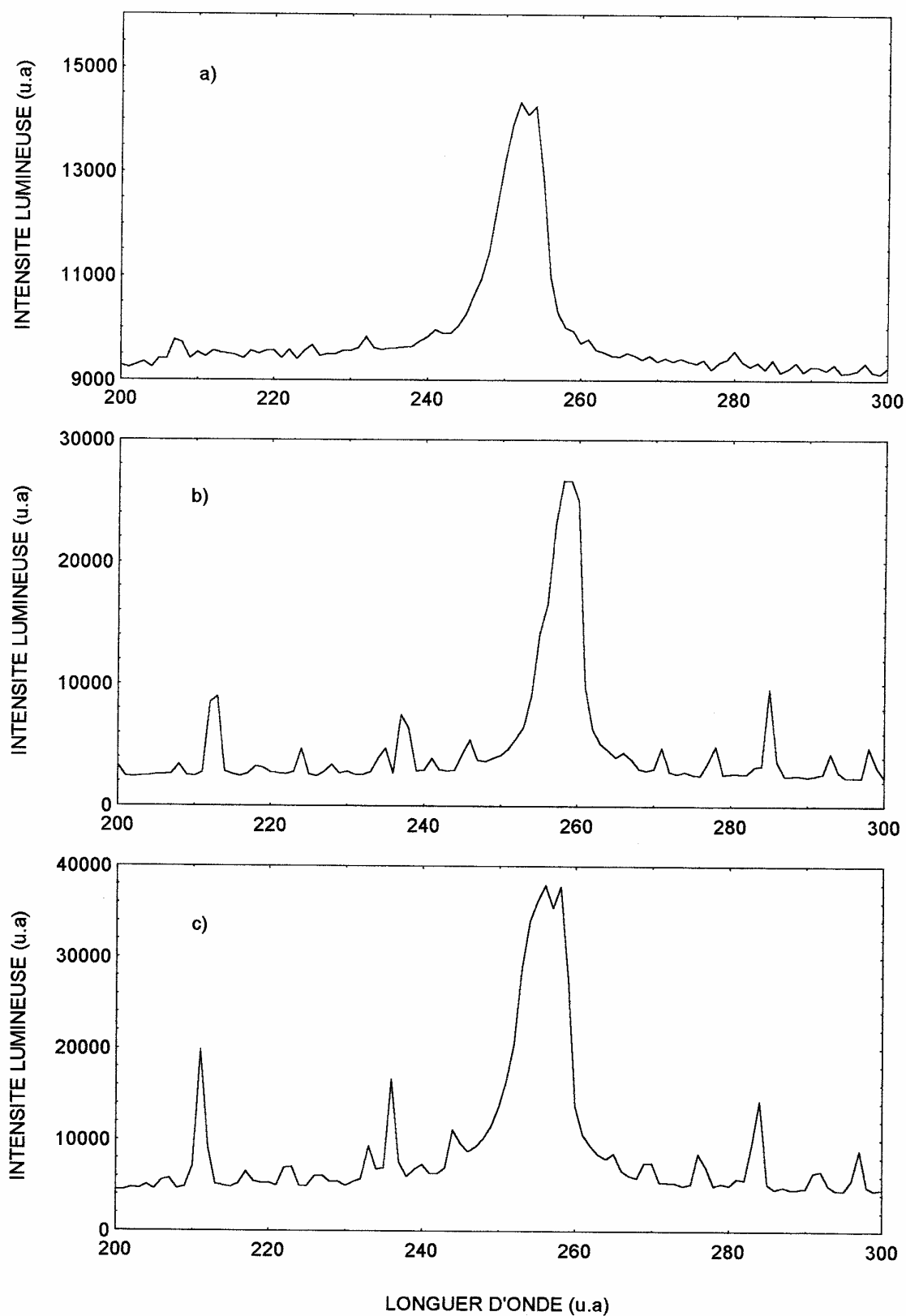


Figure (IV-5) : Représentation des profils de la raie de carbone ($\lambda = 493,205 \text{ nm}$) pour un courant de 40 A et au centre de la colonne d'arc pour différentes valeurs du pourcentage de CO_2 : a) 0,9 % ; b) 12 % ; c) 25 %.

Tableau (IV.1) : Caractéristiques des raies de l'argon sélectionnées dans cette étude.

Longueurs d'onde (nm)	Transitions état n - état m	Energie d'excitation E_m (cm ⁻¹)	Poids statistique	Probabilité de transition A (10 ⁸ s ⁻¹)	Précision sur les valeurs de la probabilité de transition
415,86	1S ₅ - 3P ₆	117184	5	0,0145	25 %
427,22	1S ₄ - 3P ₇	117151	3	0,0084	25 %
696,54	1S ₅ - 2P ₂	107496	3	0,067	25 %

Tableau (IV.2) : Caractéristiques des raies de carbone sélectionnées dans cette étude.

Longueurs d'onde (nm)	Transitions état n - état m	Energie d'excitation E_m (cm ⁻¹)	Poids statistique	Probabilité de transition A (10 ⁸ s ⁻¹)	Précision sur les valeurs de la probabilité de transition
538,03	3s ¹ P ⁰ - 4p ¹ P	80563	3	0,016	50 %
493,205	3s ¹ P ⁰ - 4p ¹ S	82252	1	0,046	50 %
477,175	3s ³ P ⁰ - 4p ³ P	81344	5	0,012	50 %

Tableau (IV.3) : Caractéristiques des raies d'oxygène sélectionnées dans cette étude.

Longueurs d'onde (nm)	Transitions état n - état m	Energie d'excitation E_m (cm ⁻¹)	Poids statistique	Probabilité de transition A (10 ⁸ s ⁻¹)	Précision sur les valeurs de la probabilité de transition
777,19	3s ⁵ S ⁰ - 3p ⁵ P	86631	7	0,340	10 %
777,42	3s ⁵ S ⁰ - 3p ⁵ P	86628	5	0,340	10 %
777,54	3s ⁵ S ⁰ - 3p ⁵ P	86626	3	0,340	10 %

IV.4. TRAITEMENT DES VALEURS EXPERIMENTALES PAR INVERSION D'ABEL : CHOIX DE LA METHODE DE LISSAGE

L'objectif de ce paragraphe est de justifier notre choix de la méthode de lissage compte tenu des données expérimentales.

D'autre part, comme nous l'avons vu précédemment, la stabilité et la symétrie de l'arc jouent un rôle important ; nous avons donc commencé par les vérifier.

IV.4.1. Vérification de la stabilité et de la symétrie de l'arc

Pour toute mesure, nous nous sommes assurés de la stabilité de l'arc en comparant les intensités lumineuses obtenues pour une raie donnée à des instants différents.

D'autre part, la symétrie de la colonne d'arc est une condition nécessaire pour l'emploi de la méthode numérique de l'inversion de l'intégrale d'Abel pour accéder à la valeur du coefficient d'émission $J(r, \lambda_{nm})$, et en déduire la température $T(r)$ en un point à la distance r de l'axe de l'arc.

Sur la figure (IV.6), nous représentons des enregistrements bruts de l'intensité lumineuse en fonction du rayon de l'arc en unité arbitraire pour l'argon pur ($\lambda = 415,86$ nm) et pour un débit de 0,7 l/min ainsi qu'un courant de 40 A. La figure (IV.7) est analogue à la précédente pour un mélange Ar-CO₂ (91 % Ar, 9 % CO₂) dans le cas des raies d'argon de longueur d'onde $\lambda = 415,86$ nm et de carbone $\lambda = 538,03$ nm. Sur ces deux figures, nous observons l'absence de fluctuations des profils des intensités lumineuses et une symétrie de l'arc donc une configuration d'arc stable ce qui nous permet d'employer l'inversion d'Abel.

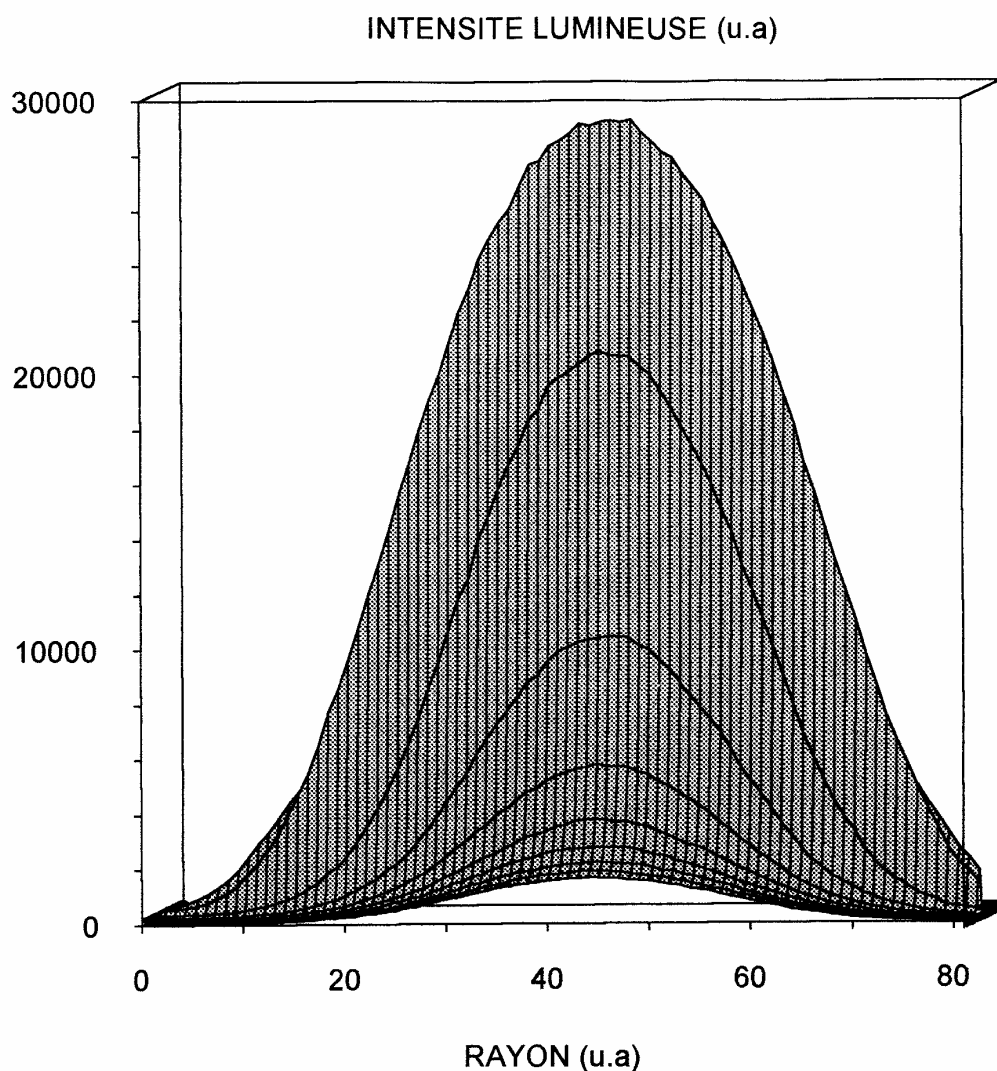


Figure (IV.6) : Enregistrement de l'intensité lumineuse d'une raie d'argon ($\lambda = 415,86 \text{ nm}$) dans le cas d'un plasma d'argon pur pour un courant de 40 A.

Nous présentons des exemples de résultats obtenus sur les profils de température dans le cas de l'argon pur, figure (IV.8) et du mélange, figure (IV.9). Nous remarquons que la symétrie de l'arc est correcte.

Les profils de températures par les raies de carbone et d'oxygène choisies (paragraphe IV.3) sont calculés de la même manière que pour l'argon. A partir des mesures de l'intensité totale de ces raies on peut évaluée la température soit par la méthode absolue de raie (si on connaît la densité numérique de l'espèce choisie (n_C , n_O) et la fonction de partition), soit par la méthode de l'intensité relative à condition que la différence d'énergie d'excitation des deux raies considérées soit supérieur à 2 eV. La différence d'énergie entre les raies du carbone (λ_4 , λ_5) est de $\Delta E_C = 0,1 \text{ eV}$, nous ne pouvons pas déterminer la température par la méthode relative.

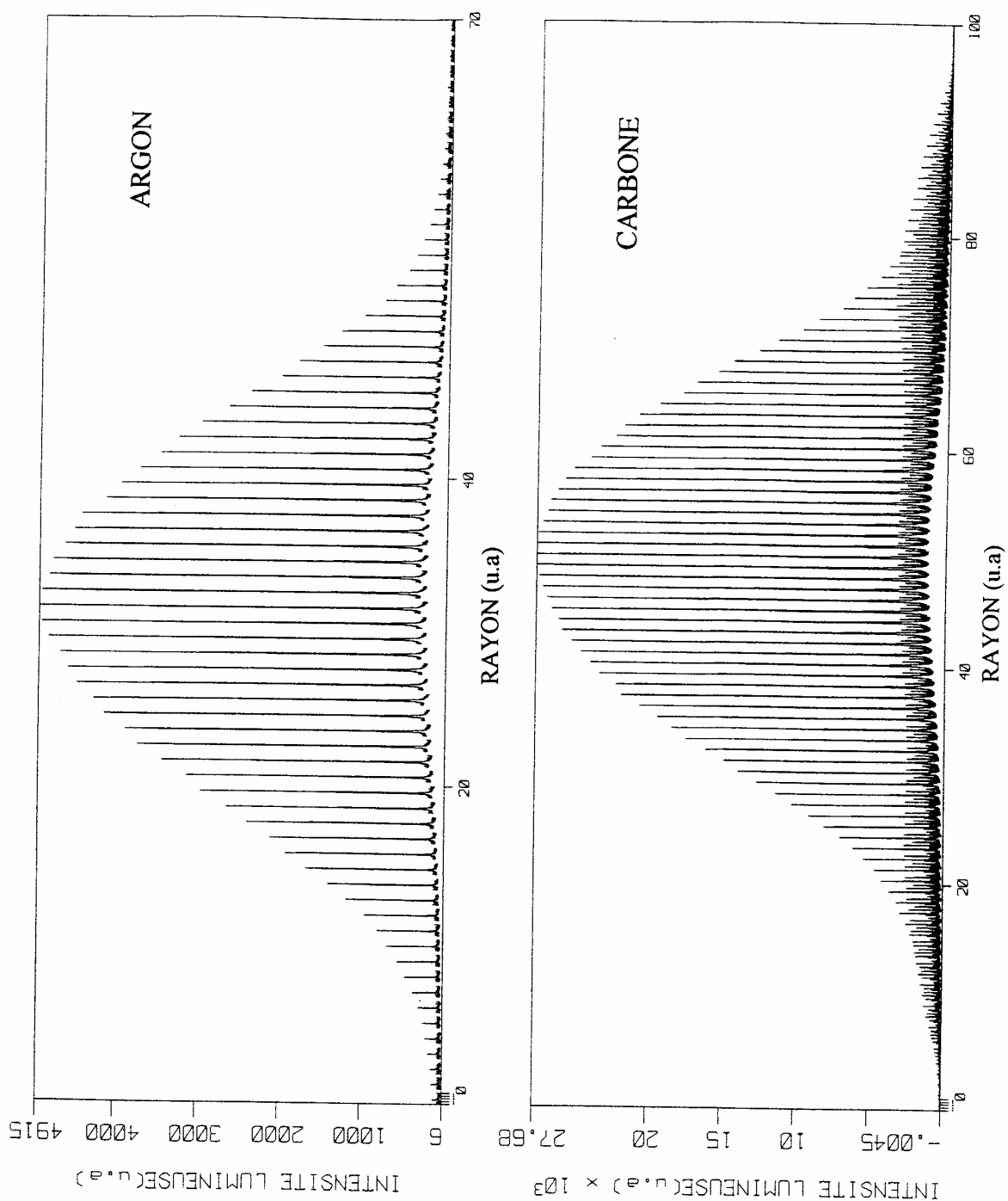


Figure (IV.7) : Enregistrement de l'intensité lumineuse en (u.a) d'une raie d'argon ($\lambda = 415,86$ nm) et d'une raie de carbone ($\lambda = 538,03$ nm) en fonction du rayon (u.a), pour un courant de 30 A et un pourcentage de 9 % de CO_2 .

ARGON PUR

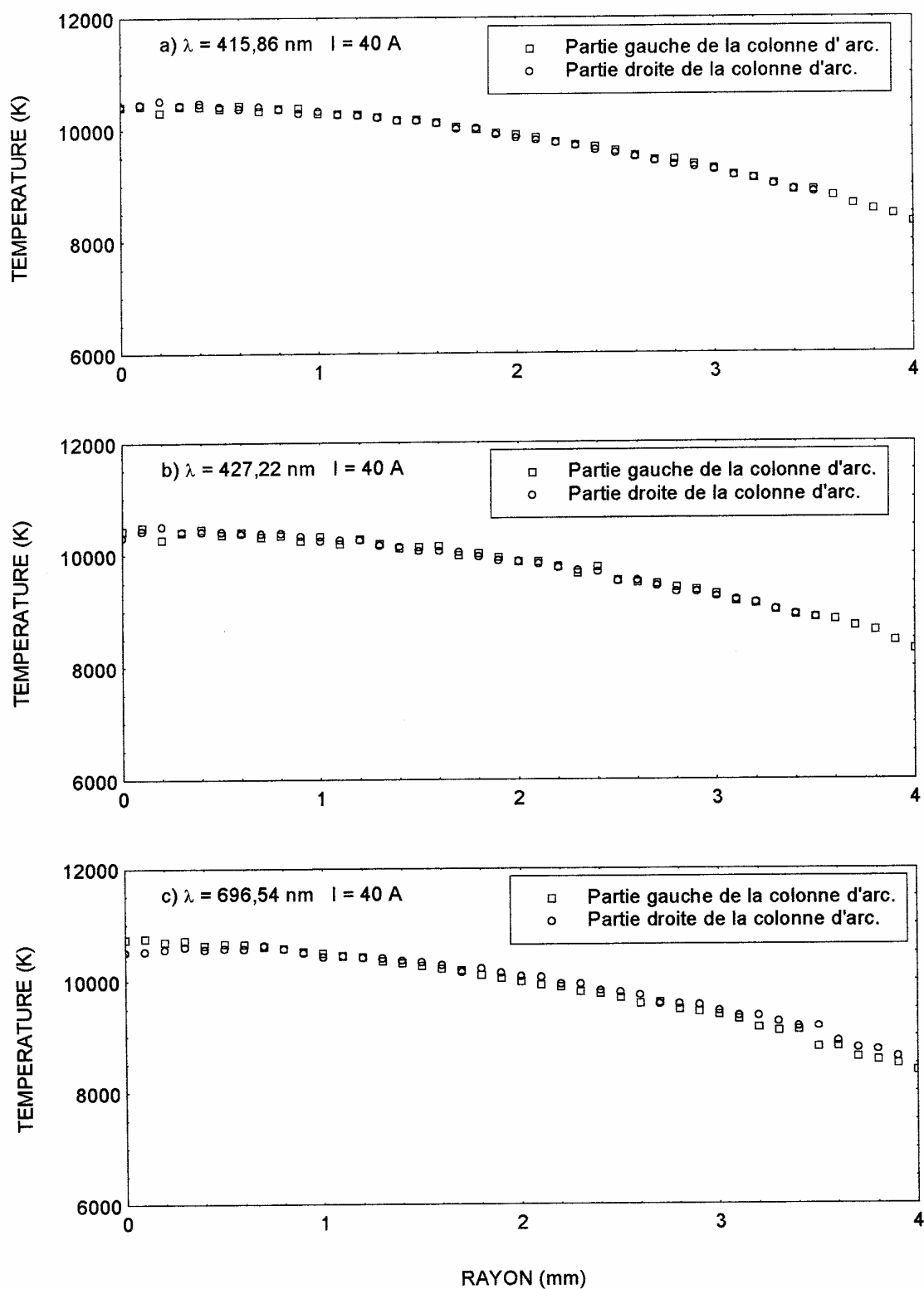
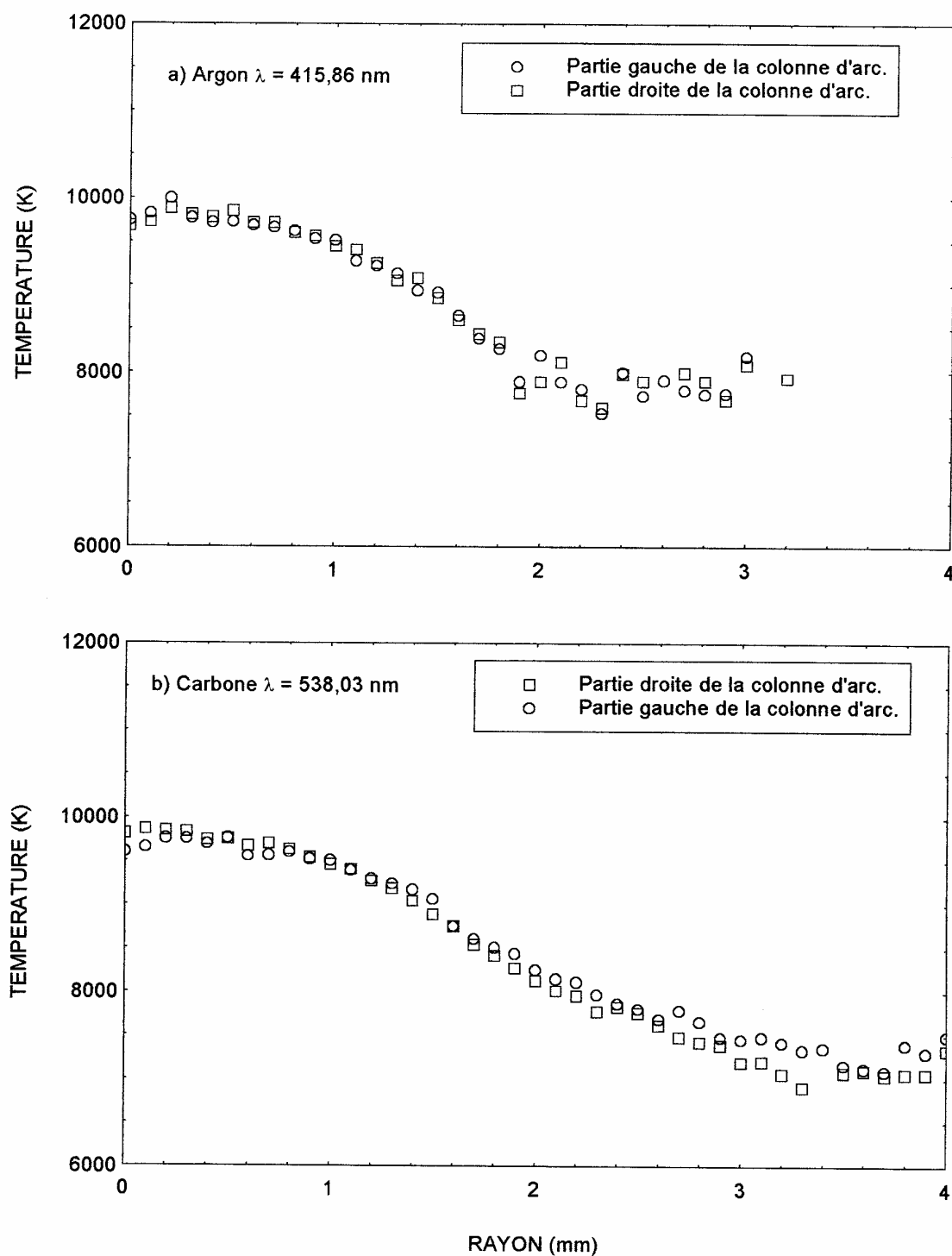


Figure (IV.8) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour un courant $I = 40$ A et différentes longueurs d'onde d'argon neutre : a) $\lambda = 415,86$ nm, b) $\lambda = 427,22$ nm, c) $\lambda = 696,54$ nm.

MELANGE Ar-CO₂



Figure(IV.9) : Comparaison de l'évolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique des deux parties de la colonne d'arc, pour un courant $I = 30$ A, et un pourcentage de (91 % Ar, 9 % CO₂) : a) raie d'argon ($\lambda = 415,86$ nm), b) raie de carbone ($\lambda = 538,03$ nm).

IV.4.2. Choix de la méthode de lissage

Nous avons comparé les résultats obtenus pour chacune des deux méthodes de lissage dans le cas de l'argon et du mélange Ar-CO₂.

Nous présentons, figure (IV.2) le lissage des valeurs expérimentales dans le cas de l'argon pur par un polynôme de degré 6. La figure (IV.10) représente les résultats obtenus pour les profils de températures après inversion d'Abel par les deux méthodes de lissage. Nous constatons que les deux méthodes donnent pratiquement le même résultat.

Dans le cas du mélange Ar-CO₂, nous remarquons, figure (IV.3) que les intensités lumineuses sont plus faibles que dans le cas de l'argon pur. La figure (IV.3) représente les lissages par un polynôme de degré 6 des raies d'argon et de carbone. Le lissage par un polynôme de degré 6 ne reproduit pas correctement les valeurs expérimentales ; l'essai avec des polynômes de degré supérieur à 6 ne conduit pas non plus à des lissages satisfaisants.

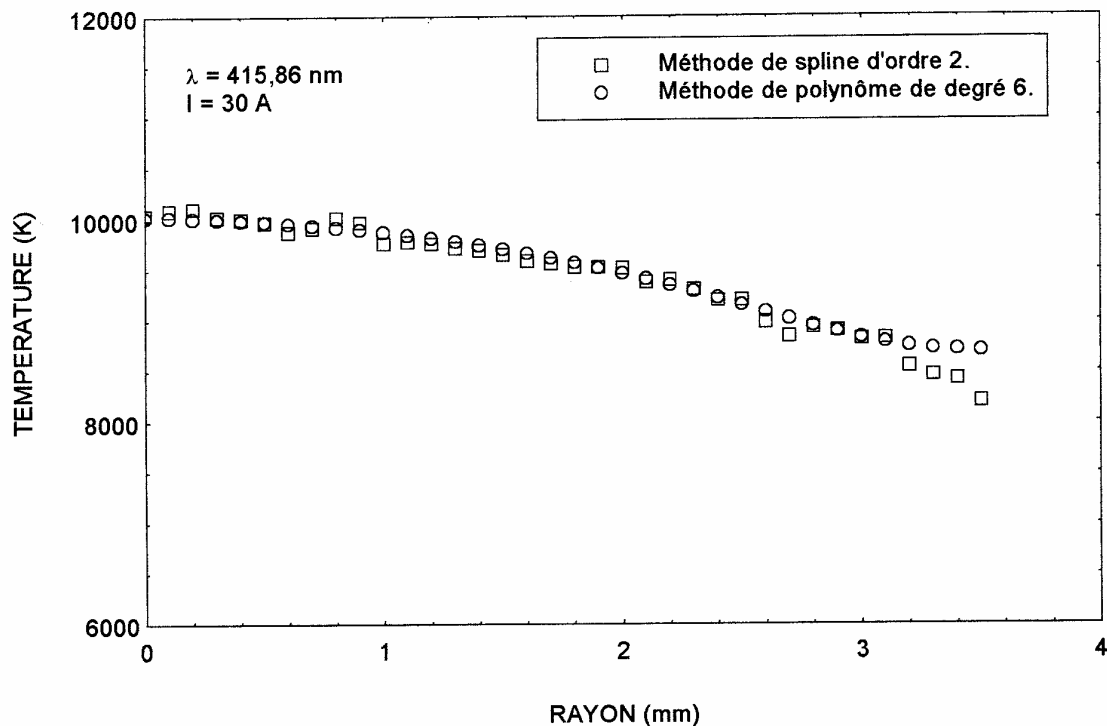


Figure (IV.10) : Comparaison des profils de température obtenus par les deux méthodes de lissage des valeurs expérimentales de la luminance de l'arc.

La figure (IV-11) représente les résultats obtenus pour la température $T(r)$ après inversion d'Abel dans les trois cas suivants :

- lissage en éliminant les points correspondant à $|r| > 3 \text{ mm}$,
- lissage de toutes les valeurs expérimentales par un polynôme de degré 6,
- lissage par des splines.

Pour les valeurs de $|r| \leq 3 \text{ mm}$, les deux derniers lissages donnent les mêmes résultats.

Donc en fait, la méthode des splines d'ordre 2 est la méthode qui donne le plus de satisfaction dans tous les cas ; c'est celle que nous avons retenue pour toutes les mesures de température.

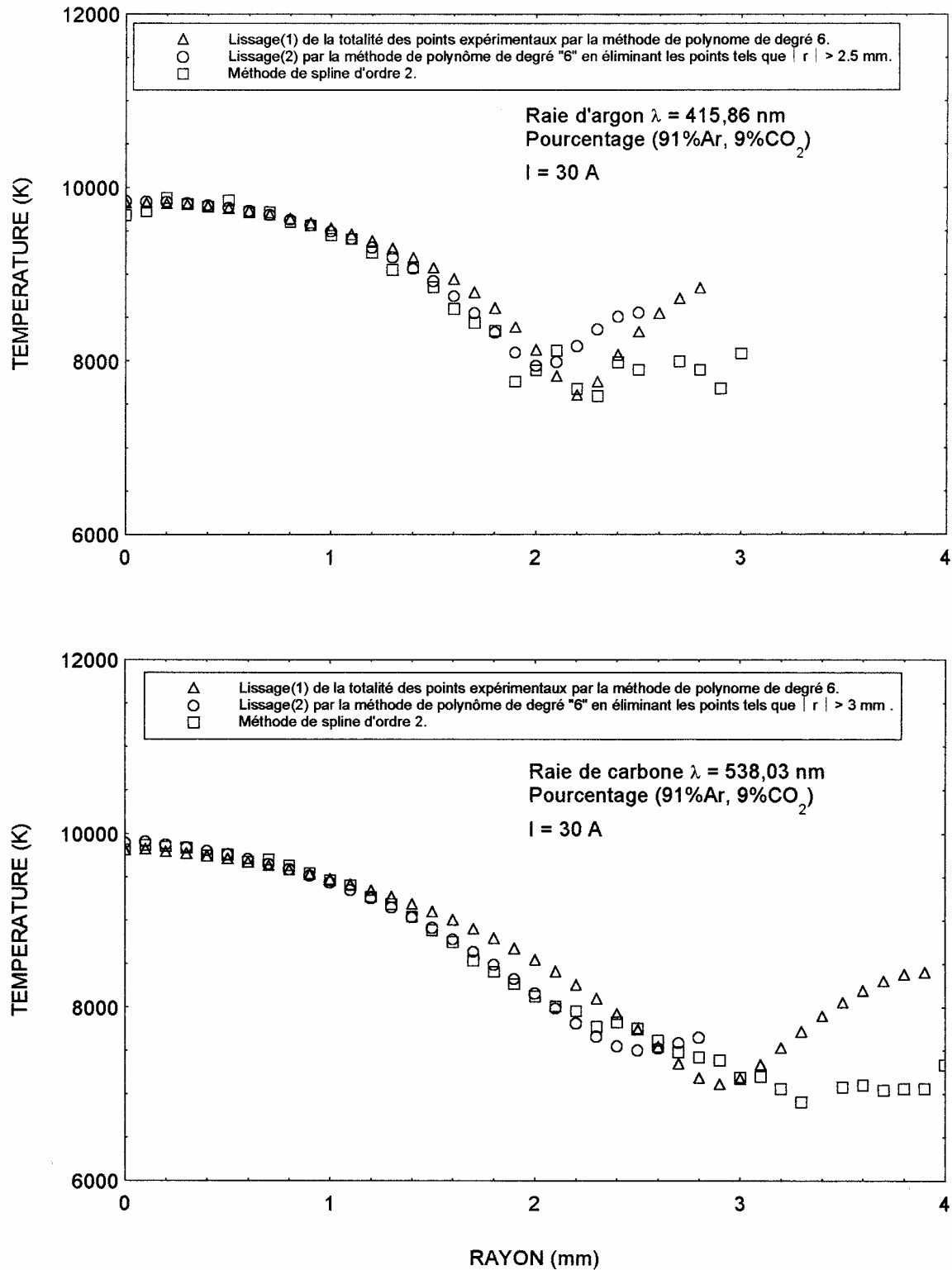


Figure (IV.11) : Comparaison des profils de température obtenus par les méthodes de lissage des valeurs de la luminance de l'arc dans le cas du mélange Ar-CO₂

IV.5. EVALUATION DES DIFFERENTES INCERTITUDES SUR LE CALCUL DE LA TEMPERATURE D'EXCITATION

Nous avons donné dans le paragraphe IV.1.1 l'incertitude $\frac{s_T}{T}$ sur la température pour la méthode absolue de raie. Dans ce qui suit, nous dénombrons les différentes causes d'incertitude et nous les évaluons afin de donner l'ordre de grandeur de $\frac{s_T}{T}$ pour la méthode absolue de raie.

IV.5.1. Influence de la probabilité de transition

Les probabilités de transition des raies atomiques que nous avons choisies sont connues avec une précision de 8,33 % dans le cas des raies d'argon et de 16,66 % dans le cas des raies du carbone [IV/4].

Nous avons calculé l'incertitude $\frac{s_T}{T}$ due à l'incertitude sur les probabilités de transition à partir de l'équation (IV-2) en supposant nulles toutes les autres incertitudes. Ce calcul est fait dans le cas d'un courant de 30 A, avec un pourcentage de 9 % de CO₂ et pour $r = 0$ (axe de la décharge). Nous donnons dans le tableau (IV.4) les résultats obtenus pour les raies d'argon et pour les raies de carbone sélectionnées pour notre étude. L'incertitude $\frac{s_T}{T}$ ainsi obtenue est inférieure à 0,55 % dans le cas de l'argon et à 1,4 % pour le carbone.

λ_{nm}	Argon 415,86 nm	Argon 427,22 nm	Argon 696,54 nm	Carbone 538,03 nm	Carbone 493,205 nm
$\frac{s_T}{T}$	0,50 %	0,50 %	0,55 %	1,43 %	1,40 %

Tableau (IV.4) : Evaluation de l'incertitude relative sur la température d'excitation due à l'incertitude sur les probabilités de transition des raies atomiques d'argon et de carbone ($I = 30$ A, Ar-CO₂ : 91 % - 9 %).

IV.5.2. Influence du code de calcul de l'inversion d'Abel

Comme nous l'avons expliqué précédemment (paragraphe IV.2.2) nous avons validé le code de calcul de l'inversion d'Abel par des fonctions tests (annexe B.2).

L'incertitude moyenne ainsi obtenue est de l'ordre de 0,4 %, qui est due au code mathématique employé.

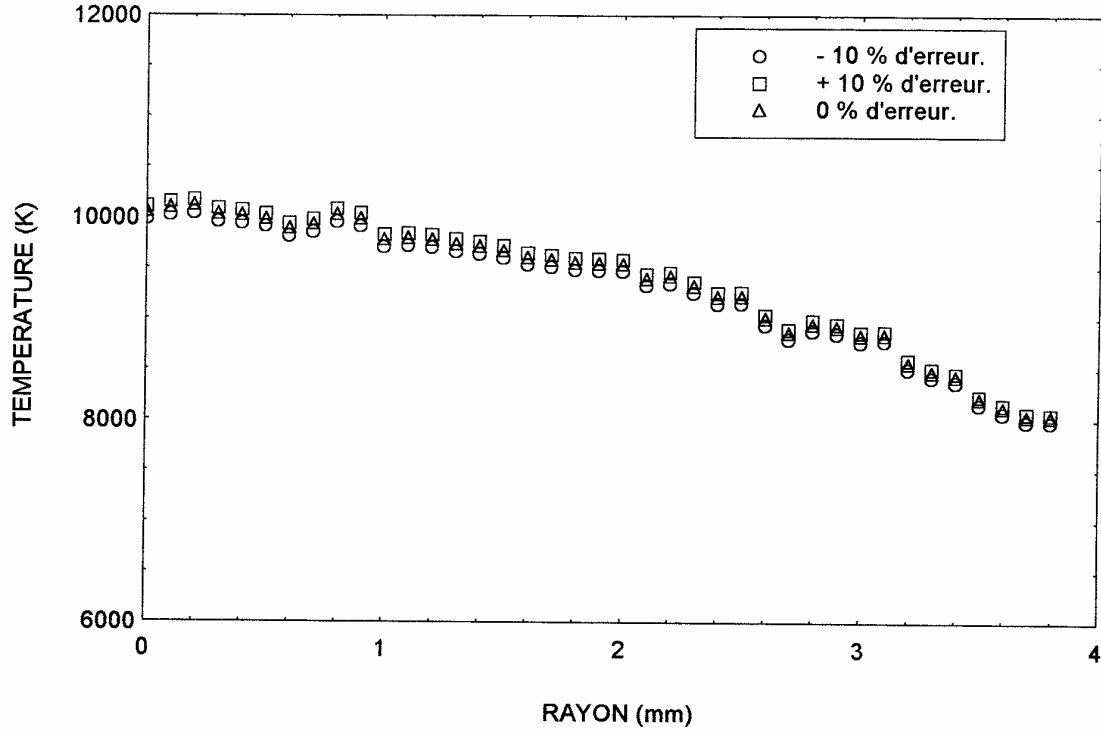
IV.5.3. Influence du calcul de la surface de l'intensité de raie

La principale cause d'incertitude affectant le terme $J(r, \lambda_{nm})$ est l'incertitude sur le calcul de la surface de l'intensité de la raie émise. Cette incertitude est très faible dans le cas de raies bien séparées des autres raies ; par contre elle peut devenir importante si les raies ne sont pas bien isolées. C'est le cas de la raie du carbone $\lambda = 477,175$ nm et celle de l'argon $\lambda = 427,22$ nm pour un plus fort pourcentage de CO₂.

Nous avons évalué cette incertitude en calculant la température à partir de valeurs différentes de la surface de la raie.

Nous avons estimé $\frac{S_T}{T} = 1 \%$ pour $\frac{S_J}{J} = 12 \%$ pour les raies de carbone. Pour les raies d'argon ($\lambda = 427,22 \text{ nm}$), $\frac{S_J}{J}$ est égale à 11 % dans le cas d'un fort pourcentage de CO_2 .

La figure (IV.12) présente la comparaison de profils des températures déterminés à partir de l'intensité absolue de raie en supposant qu'on introduit une erreur de 10 % sur le calcul de l'intensité totale de raie J après l'inversion d'Abel. On constate sur cette figure que l'intensité totale de raie n'a que peu d'influence sur la température.



Figure(IV-12) : Comparaison de profils de température déterminés à partir de l'intensité absolue de raie en supposant $\pm 10 \%$ d'erreur sur le calcul de l'intensité totale de raie après l'inversion d'Abel.

En conclusion, à partir de la relation (IV-3), si on suppose que les probabilités de transition A_{nm} sont connues avec $\frac{S_{A_{nm}}}{A_{nm}}$ de 8,33 %, l'intensité totale de raie avec $\frac{S_J}{J} = 11 \%$, dans le cas des raies d'argon et pour une température de 10 000 K par exemple, en utilisant la méthode absolue de raie, la température est obtenue avec $\frac{S_T}{T} = 0,8 \%$.

Dans le cas des raies de carbone, les probabilités de transition sont connues avec $\frac{S_{A_{nm}}}{A_{nm}} = 16,66 \%$, l'intensité totale de raie avec $\frac{S_J}{J} = 12 \%$, pour la même valeur de température 10 000 K, la température est donnée avec une précision de 1,8 %.

Dans les mêmes conditions que pour la méthode absolue de raie, la température calculée par la méthode relative de raie est évaluée avec une incertitude relative $\frac{S_J}{J}$, déterminée à partir de la relation (IV-6), et de l'ordre de 14 % pour les raies d'argon neutre ($\Delta E = 1,2$ eV).

Donc la méthode relative sera utilisée juste pour nous donner un ordre de grandeur de l'évaluation de la température des raies atomiques.

IV.6. SPECTRES MOLECULAIRES EMIS PAR LE PLASMA Ar-CO₂

Du fait de la présence des molécules CN et radicaux C₂, nous nous sommes proposés d'étudier le milieu réactionnel par voie spectroscopique en analysant les spectres de ces molécules émis par le plasma Ar-CO₂ pour déterminer la température rotationnelle afin d'aboutir à une meilleure compréhension des phénomènes physiques dans ce milieu.

A partir des spectres expérimentaux de ces deux radicaux (C₂, CN) nous avons employé deux méthodes pour déterminer la température rotationnelle :

- méthode du diagramme de Boltzmann,
- méthode de la simulation numérique de spectres moléculaires.

IV.6.1. Méthode du diagramme de Boltzmann

A partir de la relation (I-12) on peut écrire l'intensité de la raie rotationnelle correspondant à une transition ($J' \rightarrow J''$) et la fréquence $\nu_{J'J''}$ sous la forme suivante :

$$I(J', J'') = C_{J'J''} n(J') \nu_{J'J''} A_{J'J''} \quad (IV-20)$$

$C_{J'J''}$ est une constante qui dépend du volume émissif et de la réponse du système de détection

Si on suppose que l'on a une distribution de Boltzmann sur le niveau de rotation J' , la densité $n(J')$ de la population du niveau supérieur de la transition est donnée par [IV/16] :

$$n(J') = n(v') \frac{g_{J'}}{Q(J')} \exp\left(-\frac{E_{J'}}{kT}\right) \quad (IV-21)$$

où : $n(v')$: population du niveau vibrationnel étudié
 $g_{J'}$: poids statistique égal à : $g_{J'} = (2J' + 1)\phi(J')$
 $\phi(J')$: facteur qui tient compte de la parité du niveau
 $Q(J')$: fonction de partition rotationnelle
 $E_{J'}$: énergie du niveau rotationnel J'

L'expression de $N(J')$ devient :

$$n(J') = n(v') \frac{(2J'+1)}{Q(J')} \exp\left(-\frac{hc F_v(J')}{kT_r}\right) \quad (IV-22)$$

En introduisant dans la formule (IV-20) la formule (IV-22) et l'expression de la probabilité de transition (I-13), l'intensité d'une raie rotationnelle peut être mise sous la forme suivante :

$$I(J', J'') = D v_{J', J''}^4 S(J', J'') \exp \left(- \frac{hc}{kT_r} F_v(J') \right) \quad (IV-23)$$

D est une constante

$S(J', J'')$: facteur de Höln-London, défini dans le chapitre I

On obtient finalement :

$$\ln \left[\frac{I(J', J'')}{v_{J', J''}^4 S(J', J'')} \right] = \text{Cte} - \frac{F_v(J') hc}{kT_r} \quad (IV-24)$$

avec : $F_v(J') = B'_v J'(J'+1) - D'_v J^2 \times (J+1)^2 + \dots$

B'_v et D'_v sont des constantes rotationnelles de l'état de vibration de la molécule [IV/17].

La courbe $\ln \left[\frac{I(J', J'')}{v_{J', J''}^4 S(J', J'')} \right] = f(F_v(J'))$ de l'équation (IV-24) peut être représentée par une droite de pente $-\frac{hc}{kT_r}$. Donc dans le cas où les niveaux sont en équilibre de Boltzmann, on

peut, par l'intermédiaire des spectres rotationnels, remonter à la température rotationnelle de la molécule si on connaît les constantes rotationnelles B' des niveaux et les facteurs de Höln-London $S(J', J'')$.

Mais quand il y a superposition de raies, le problème de déconvolution se pose, ce qui rend la mesure de la température rotationnelle, en utilisant cette méthode, délicate et moins précise. C'est ce que nous allons voir dans le chapitre suivant en donnant quelques résultats de calcul de température rotationnelle par cette méthode.

IV.6.2. Méthode de simulation numérique des spectres moléculaires

Comme la méthode du diagramme de Boltzmann est moins fiable dans le cas où il y a superposition des raies, nous avons utilisé la méthode de simulation des spectres moléculaires pour déterminer la température rotationnelle moléculaire. Les spectres synthétiques que nous avons utilisés ont été calculés par G. Faure.

Le principe de la méthode employée pour leur évaluation se décompose en trois parties :

- calcul des fréquences des différentes transitions rotationnelles,
- calcul des intensités associées à chaque transition rotationnelle,
- convolution du spectre ainsi obtenu par la fonction d'appareil (fonction gaussienne).

Pour chaque valeur de température rotationnelle donnée, le code de calcul permet d'établir les spectres rotationnels synthétiques. Par comparaison de ces spectres simulés avec le spectre rotationnel expérimental, on détermine la température rotationnelle moléculaire dans les conditions de l'expérience.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter les résultats de calcul des températures d'excitation et de rotation par les différentes méthodes décrites dans ce chapitre ainsi que la comparaison des valeurs obtenues.

BIBLIOGRAPHIE

- [IV/1] COITOUT H., FAURE G.,
Spectroscopy Letters, Vol. 29, n° 7 (1996) pp. 1201-1214.
- [IV/2] ANDANSON P., CHEMINAT B., HALBIQUE A.M.,
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol. 11, n° 1 (1978) p. 209-215.
- [IV/3] PELLETIER J.P.,
"Techniques numériques appliquées au calcul scientifique". Masson, Paris (1982).
- [IV/4] WEAST R.C., ASTLE M.J., BEYER W.M.,
Handbook of chemistry and physics. CRC Press, Florida (1984).
- [IV/5] JAROCZ J., Doctorat ès Sciences, n° I-DE-78-001,
Université Claude Bernard, Lyon I (1978).
- [IV/6] FORSYTHE G.E., MALCOLM M.A., MOLER C.B.,
"Computer methods for mathematical computations". Prentice- Hall, NJ, USA
(1977).
- [IV/7] BRUNNER H.J., Comp. Phys., 12 (1973) pp. 412-16.
- [IV/8] FAN L.S., SQUIRE W., Comp. Phys. Com., 10 (1975) pp. 98-103.
- [IV/9] PIESENS R., Comp. Phys. Com., 5 (1973) pp. 294-98.
- [IV/10] BOCKHSTEN K., J. Opt. Soc. Am., 51 (1961) pp. 943-47.
- [IV/11] CHEMINAT B., Doctorat ès Sciences Physiques, n° 311,
Université de Clermont-Ferrand (1983).
- [IV/12] ABBAOUI M., Doctorat de 3ème cycle en Electronique, n° 22,
Université de Clermont-Ferrand (1986).
- [IV/13] OLSEN H.N., J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 3 (1963) pp. 305-33.
- [IV/14] EL HAMIDI L., Doctorat d'Université, n° 1675, Université de Toulouse (1994).
- [IV/15] WEISE W.L., SMITH M.W., MILES B.M.,
"Atomic transition probabilities", Vol. 22.II, N.B.S., Washington (1969).
- [IV/16] HERZBERG G., "Molecular spectra and molecular structure. I- Spectra of diatomic
molecules", Di Van Nostand Company, New-York (1950).
- [IV/17] PIAR B., Doctorat d'Université, Ecole Centrale, Paris (1993).

ANNEXE B

B.1. Interpolation par des fonctions splines d'ordre 2

La courbe $L(y, \lambda)$ est connue pour les k points expérimentaux d'ordonnées L_i et d'abscisses y_i ; $1 \leq i \leq k$, les abscisses y_i sont équidistantes de $H = y_{i+1} - y_i$ quel que soit i .

Sur chaque intervalle $[y_i, y_i + H]$, nous faisons passer une fonction d'interpolation spline d'ordre 2 [IV/2] c'est-à-dire une fonction $S_i(y)$ telle que :

- $S_i(y)$ est un polynôme de degré 3,
- $S_i(y)$ et ses dérivées première et seconde sont continues.

Cette fonction $S_i(y)$ peut s'écrire sous la forme :

$$S_i(y) = \frac{M_i}{6H}(y_{i+1} - y)^3 + \frac{M_{i+1}}{6H}(y - y_i)^3 + \left(\frac{L_{i+1}}{H} - \frac{M_{i+1}H}{6}\right)(y - y_i) + \left(\frac{L_i}{H} - \frac{M_iH}{6}\right)(y_{i+1} - y) \quad (B-1-1)$$

Avec : $y_i \leq y \leq y_{i+1}$ et $1 \leq i \leq k$

La fonction et sa dérivée seconde sont continues :

$$S_{i-1}(y_i) = S_i(y_i) = L_i \quad ; \quad S_{i+1}(y_{i+1}) = S_i(y_{i+1}) = L_{i+1} \quad (B-1-2)$$

$$S_i''(y_i) = S_{i-1}''(y_i) = M_i \quad ; \quad S_{i+1}''(y_{i+1}) = S_i''(y_{i+1}) = M_{i+1} \quad (B-1-3)$$

Les coefficients M_i sont choisis de façon que la continuité de la dérivée première soit vérifiée :

$$S_{i-1}'(y_i) = S_i'(y_i) \quad (B-1-4)$$

ce qui donne :

$$S_i'(y_i) = -\frac{2M_iH}{6} - \frac{M_{i+1}H}{6} + \frac{L_{i+1}}{H} - \frac{L_i}{H} \quad (B-1-5)$$

$$\text{et : } S_{i-1}'(y_i) = \frac{2M_{i-1}H}{6} + \frac{M_iH}{6} + \frac{L_i}{H} - \frac{L_{i-1}}{H} \quad (B-1-6)$$

L'égalité (B-1-4) nous conduit à l'expression suivante :

$$M_{i-1} + 4M_i + M_{i+1} = \frac{6}{H^2}(L_{i+1} - 2L_i + L_{i-1}) \quad (B-1-7)$$

$$\text{En posant : } d_i = \frac{6}{H^2}(L_{i+1} - 2L_i + L_{i-1}) \quad (B-1-8)$$

A partir des valeurs expérimentales aux points $i - 1, i, i + 1$; on peut déterminer la valeur de d_i .

Les coefficients M_i sont obtenus à partir de la résolution du système de k équations à $k + 2$ inconnues, suivant :

$$\begin{cases} d_1 = M_0 + 4M_1 + M_2 \\ d_i = M_{i-1} + 4M_i + M_{i+1} \\ d_k = M_{k-1} + 4M_k + M_{k+1} \end{cases} \quad (\text{B-1-9})$$

Ce système admet une infinité de solutions. On suppose de plus que la courbe à l'extérieur de l'intervalle $(1, k)$ est assimilée à une droite ; alors :

$$M_0 = M_{k+1} = 0 \quad (\text{B-1-10})$$

Donc le système de k équations à k inconnues peut être résolu. Cette résolution se fait par éliminations successives de M_i .

L'élimination de M_1 donne comme équation :

$$S_2 = d_1 - 4d_2 = (1 - 4 \times 4)M_2 - 4M_3 \quad (\text{B-1-11})$$

L'élimination de M_2 :

$$S_3 = S_2 - (1 - 4 \times 4)d_3 = (-4 - 4(1 - 4 \times 4))M_3 - (1 - 4 \times 4)M_4 \quad (\text{B-1-12})$$

si on affecte le coefficient P_j à M_j ; S_j peut s'écrire sous la forme suivante :

$$S_j = P_j M_j - P_{j-1} M_{j+1} \quad (\text{B-1-13})$$

De même à l'aide d'un raisonnement par récurrence P_j s'écrit :

$$P_j = -P_{j-2} - 4P_{j-1} \quad (\text{B-1-14})$$

Donc à partir de l'équation (B-1-11) on déduit que $P_1 = 4$; et de l'équation (B-1-14) $P_0 = -1$.

Ainsi de l'équation (B-1-12) et (B-1-14) nous écrivons S_j sous la forme suivante :

$$S_j = S_{j-1} - P_{j-1} d_j \quad (\text{B-1-15})$$

$$\text{d'où : } \begin{cases} S_1 = d_1 \\ S_0 = 0 \end{cases}$$

Donc à la $k^{\text{ième}}$ équation nous obtenons :

$$S_k = P_k M_k - P_{k-1} M_{k+1} \quad (\text{B-1-16})$$

et comme $M_{k+1} = 0$ par hypothèse :

$$M_k = \frac{S_k}{P_k} \quad (\text{B-1-17})$$

S_k est déterminé par la relation (B-1-15)

P_k est déterminé par la relation (B-1-14)

On peut calculer maintenant tous les M_j à partir de l'équation (B-1-16) ; donc M_j est déterminé par la relation suivante :

$$M_j = \frac{S_j + P_{j-1} M_{j+1}}{P_j}$$

B.2. Inversion d'Abel pour différentes fonctions test

Pour les trois fonctions test B, C, D la première colonne représente la position radiale (r), les deux suivantes représentent Y(y) et J(r) déterminés de manière analytique, la quatrième colonne représente le résultat obtenu par notre code de calcul et la cinquième colonne représente l'écart relatif entre notre valeur calculée et la valeur analytique.

Fonction test de Cremers (D)

Position y ou r	Y (y) donnée	J _{th} (r) théorique	J _{cal} (r) calculé	J _{cal} (r) - J _{th} (r) (%)
0,0	1,1875	0,7500	0,7697	2,6327
0,0333	1,1888	0,7621	0,7635	0,1949
0,0667	1,1918	0,7939	0,7948	0,1140
0,1000	1,1943	0,8380	0,8390	0,1227
0,1333	1,1938	0,8875	0,8882	0,8203
0,1667	1,1876	0,9352	0,9359	0,8141
0,2000	1,1732	0,9740	0,9750	0,1034
0,2333	1,1488	0,9968	0,9977	0,0943
0,2667	1,1144	0,9985	0,9997	0,1197
0,3000	1,0719	0,9873	0,9881	0,0855
0,3333	1,0221	0,9657	0,9666	0,1027
0,3667	0,9657	0,9349	0,9359	0,1111
0,4000	0,9036	0,8960	0,8969	0,1064
0,4333	0,8368	0,8500	0,8507	0,0905
0,4667	0,7664	0,7978	0,7985	0,0986
0,5000	0,6935	0,7407	0,7415	0,1114
0,5333	0,6192	0,6797	0,6804	0,1090
0,5667	0,5447	0,6157	0,6161	0,0760
0,6000	0,4713	0,5499	0,5504	0,0924
0,6333	0,4000	0,4833	0,4839	0,1288
0,6667	0,3319	0,4170	0,4175	0,1340
0,7000	0,2681	0,3520	0,3522	0,0720
0,7333	0,2097	0,2894	0,2896	0,1005
0,7667	0,1574	0,2301	0,2303	0,1001
0,8000	0,1121	0,1754	0,1755	0,0888
0,8333	0,0743	0,1262	0,1263	0,1270
0,8667	0,0444	0,0836	0,0835	0,0285
0,9000	0,0226	0,0486	0,0487	0,2875
0,9333	0,0085	0,0223	0,0222	0,1761
0,9667	0,0016	0,0058	0,0056	2,5978

Fonction test B

Position y ou r	Y (y) donnée	J _{th} (r) théorique	J _{cal} (r) calculé	J _{cal} (r) - J _{th} (r) (%)
0,0	1,0666	1,0000	0,9416	5,8337
0,05	1,0600	0,9950	0,9921	0,2843
0,10	1,0402	0,9801	0,9805	0,0444
0,15	1,0077	0,9555	0,9554	0,0058
0,20	0,9632	0,9216	0,9218	0,0238
0,25	0,9077	0,8789	0,8788	0,0008
0,30	0,8426	0,8281	0,8280	0,0102
0,35	0,7694	0,7700	0,7700	0,0065
0,40	0,6898	0,7056	0,7056	0,0113
0,45	0,6058	0,6360	0,6359	0,0057
0,50	0,5196	0,5625	0,5624	0,0063
0,55	0,4334	0,4865	0,4865	0,0122
0,60	0,3495	0,4096	0,4096	0,0064
0,65	0,2703	0,3335	0,3334	0,0037
0,70	0,1981	0,2601	0,2666	0,0087
0,75	0,1350	0,1914	0,1915	0,0589
0,80	0,0828	0,1296	0,1292	0,2399
0,85	0,0433	0,0770	0,0769	0,0715
0,90	0,0168	0,0361	0,0361	0,1547
0,95	0,0032	0,0095	0,0093	1,9819

Fonction test C

Position y ou r	Y (y) donnée	J _{th} (r) théorique	J _{cal} (r) calculé	J _{cal} (r) - J _{th} (r) (%)
0,0	1,0000	1,0000	0,9397	6,0252
0,05	0,9931	0,9950	0,9925	0,2454
0,10	0,9724	0,9800	0,9804	0,0411
0,15	0,9384	0,9550	0,9550	0,0060
0,20	0,8915	0,9200	0,9200	0,0040
0,25	0,8327	0,8750	0,8749	0,0091
0,30	0,7631	0,8200	0,8199	0,0085
0,35	0,6842	0,7550	0,7550	0,0093
0,40	0,5979	0,6800	0,6799	0,0051
0,45	0,5060	0,5950	0,5951	0,0195
0,50	0,4151	0,5000	0,4997	0,0488
0,55	0,3292	0,4050	0,4049	0,0131
0,60	0,2527	0,3200	0,3200	0,0057
0,65	0,1861	0,2450	0,2450	0,0051
0,70	0,1300	0,1800	0,1800	0,0082
0,75	0,0845	0,1250	0,1250	0,0447
0,80	0,0495	0,0800	0,0799	0,1200
0,85	0,0247	0,0450	0,0449	0,1638
0,90	0,0092	0,0200	0,0200	0,1888
0,95	0,0017	0,0050	0,0049	0,5298

CHAPITRE V

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

Dans la première partie de ce chapitre nous étudions le cas d'un plasma d'argon pur. Ce gaz plasmagène a été utilisé par de nombreux auteurs, en particulier au sein de notre laboratoire [V/1], [V/2], [V/3].

Les résultats des profils de température obtenus dans le cas de l'argon pur nous servent de référence pour l'étude du mélange Ar-CO₂ et nous permettent comme nous l'avons vu précédemment de valider nos codes de calcul ; d'autre part nous avons dû injecter de l'argon au niveau des électrodes afin de les protéger de l'érosion.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous allons considérer l'étude de l'influence de la molécule de CO₂ sur les caractéristiques d'un plasma d'argon pur pour en déduire des grandeurs physiques telles que les températures d'excitation et de rotation des différentes espèces chimiques présentes dans le plasma.

Nous déterminons dans un premier temps les profils de température d'excitation (T_{ex}) des différentes espèces atomiques (Ar, C, O) à différents pourcentages de CO₂ et à des courants différents.

Puis nous établissons les températures rotationnelles (T_r) du plasma à partir des spectres moléculaires du système de Swan de C₂ et du système violet de CN observés dans le milieu réactionnel à différents pourcentages de CO₂

Nous étudions l'influence du pourcentage de CO₂ et du courant de décharge sur les profils de température d'excitation et de rotation des différentes particules atomiques et diatomiques en injectant le mélange Ar-CO₂ au milieu de la colonne d'arc, une fois l'arc créé.

Enfin, nous interprétons les résultats des profils de température d'excitation obtenus pour les atomes en les comparant aux valeurs des températures rotationnelles obtenues pour les particules diatomiques.

V.1. MESURES DE PROFILS DE TEMPERATURE D'EXCITATION ATOMIQUE POUR UN PLASMA D'ARGON PUR

Le dispositif d'acquisition spectroscopique dont nous disposons nous permet de déduire, à partir des spectres de raies atomiques enregistrés, la valeur de l'intensité d'émission totale de raie qui est la grandeur nécessaire pour déterminer les profils de température quelle que soit la méthode de calcul de température choisie.

V.1.1. Conditions expérimentales

Toutes les séries de mesures effectuées avec l'argon pur ont été réalisées dans les conditions expérimentales suivantes :

- utilisation du réseau de 600 tr/mm,
- temps d'exposition $t_{\text{aqs}} = 100$ ms, sauf dans le cas de la raie de longueur d'onde $\lambda_3 = 696,54$ nm et pour un courant de 40 A, où nous avons dû prendre un temps d'acquisition de 50 ms,
- débit d'argon injecté au niveau des électrodes égal à 0,7 l/min.

V.1.2. Détermination des profils de température à partir de la méthode absolue de raie

Nous nous sommes assurés de la bonne reproductibilité des mesures ainsi que de la symétrie de l'arc (paragraphe IV.3.1).

Les profils de température sont calculés par la méthode de l'intensité absolue de raie après inversion d'Abel en utilisant la méthode d'interpolation faite à partir de fonctions splines d'ordre 2.

L'étude a été réalisée pour les trois raies d'argon ($\lambda_1 = 415,86$ nm, $\lambda_2 = 427,22$ nm, $\lambda_3 = 696,54$ nm).

Les figures (V.1), (V.2), (V.3), (V.4), (V.5) présentent, les variations de la température d'excitation en fonction du rayon de la décharge pour les trois longueurs d'onde précédentes et pour différentes valeurs d'intensité de 5 à 40 A.

En règle générale, les résultats obtenus pour les différentes raies sont en bon accord entre eux. Dans le cas où $I = 40$ A et pour la longueur d'onde $\lambda_3 = 696,54$ nm, on note une surestimation de la température. Ceci est probablement dû au fait que nous avons dû abaisser le temps d'acquisition de 100 à 50 ms. C'est un effet de fermeture et d'ouverture de l'obturateur mécanique, les temps d'ouverture et de fermeture de celui-ci étant de l'ordre de 15 ms.

L'examen de ces figures montre que, dans la colonne d'arc, il existe une zone relativement large dans laquelle la température ne diminue que progressivement du centre de l'arc de la décharge jusqu'au bord de l'arc ($r < 2$ mm), pour des courants supérieurs à 10 A.

D'autres auteurs trouvent des résultats comparables aux nôtres, pour des conditions expérimentales similaires :

- Vacquié et al [V/4] montrent que la température varie peu dans la zone centrale de la décharge,

- Bott [V/5] signale que le profil de température présente un gradient de température dans la zone centrale qui diminue quand le courant augmente.

Dans le cas de courants inférieurs à 30 A, les intensités lumineuses au bord de l'arc ($r > 2$ mm) sont faibles, ce qui nous donne une plus grande dispersion pour les valeurs de température.

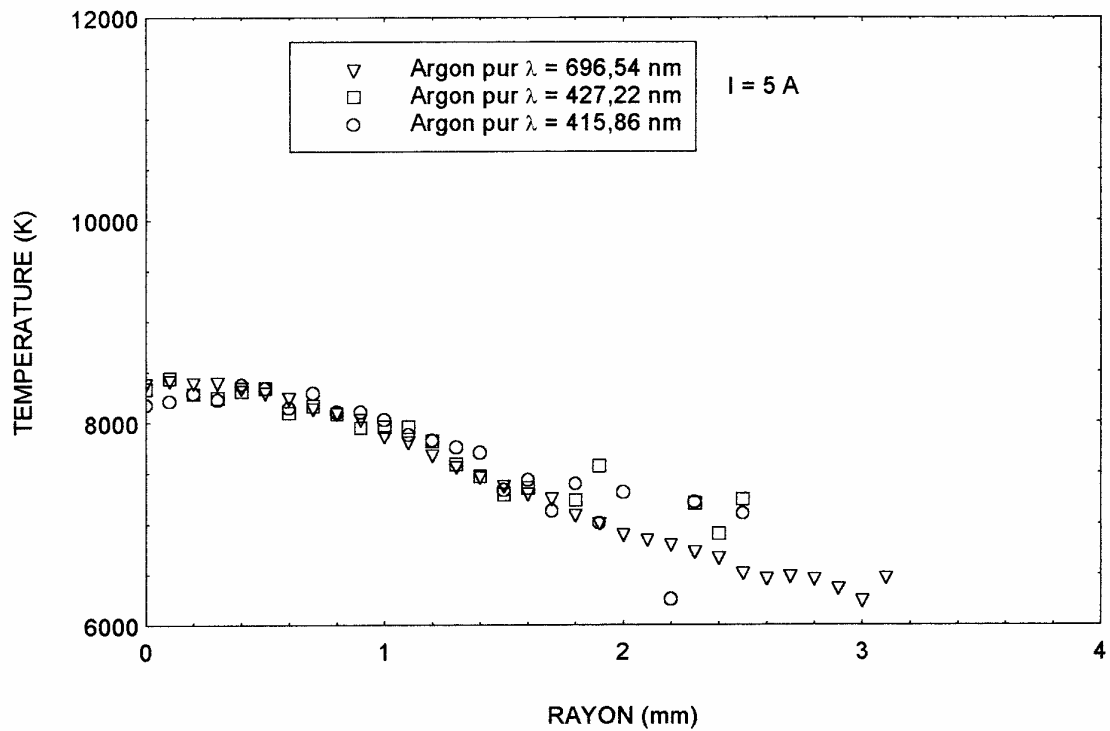


Figure (V.1) : Profils de température déterminés à partir de l'intensité absolue de raies en fonction du rayon, pour différentes raies d'argon neutre, pour un courant de 5 A.

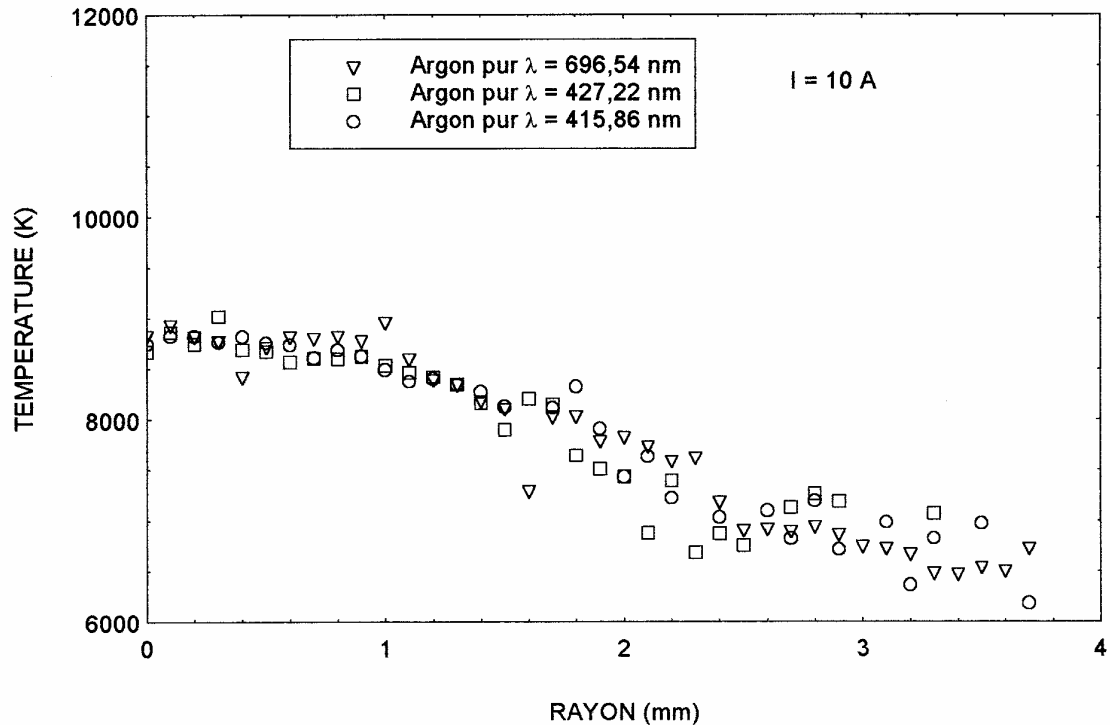


Figure (V.2) : Profils de température en fonction du rayon, déterminés à partir de l'intensité absolue de raies pour différentes raies d'argon neutre, pour un courant de 10 A.

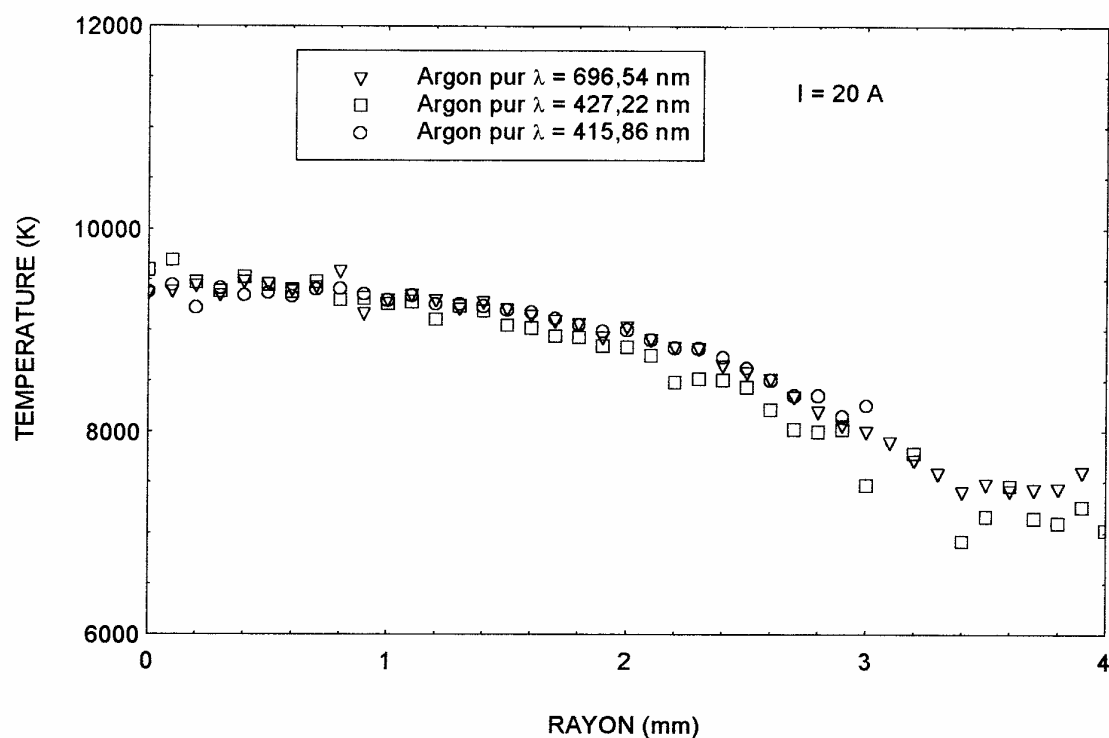


Figure (V.3) : Profils de température en fonction du rayon, déterminés à partir de l'intensité absolue de raies pour différentes raies d'argon neutre, pour un courant de 20 A.

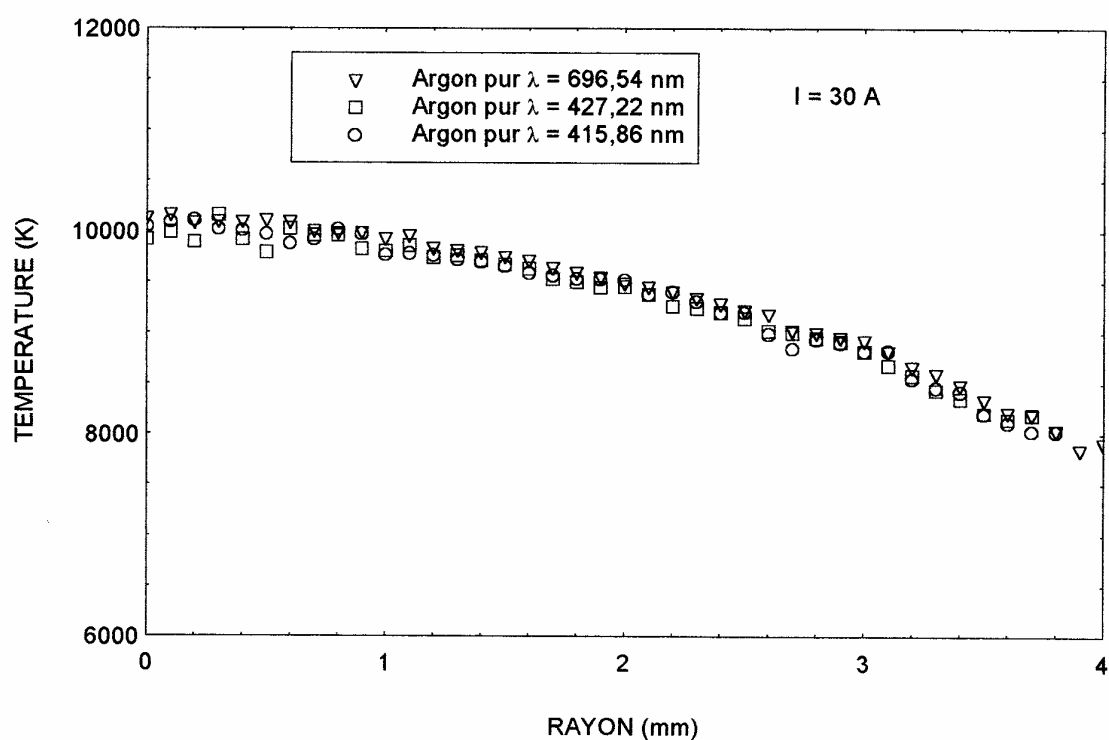


Figure (V.4) : Profils de température en fonction du rayon, déterminés à partir de l'intensité absolue de raies pour différentes raies d'argon neutre, pour un courant de 30 A.

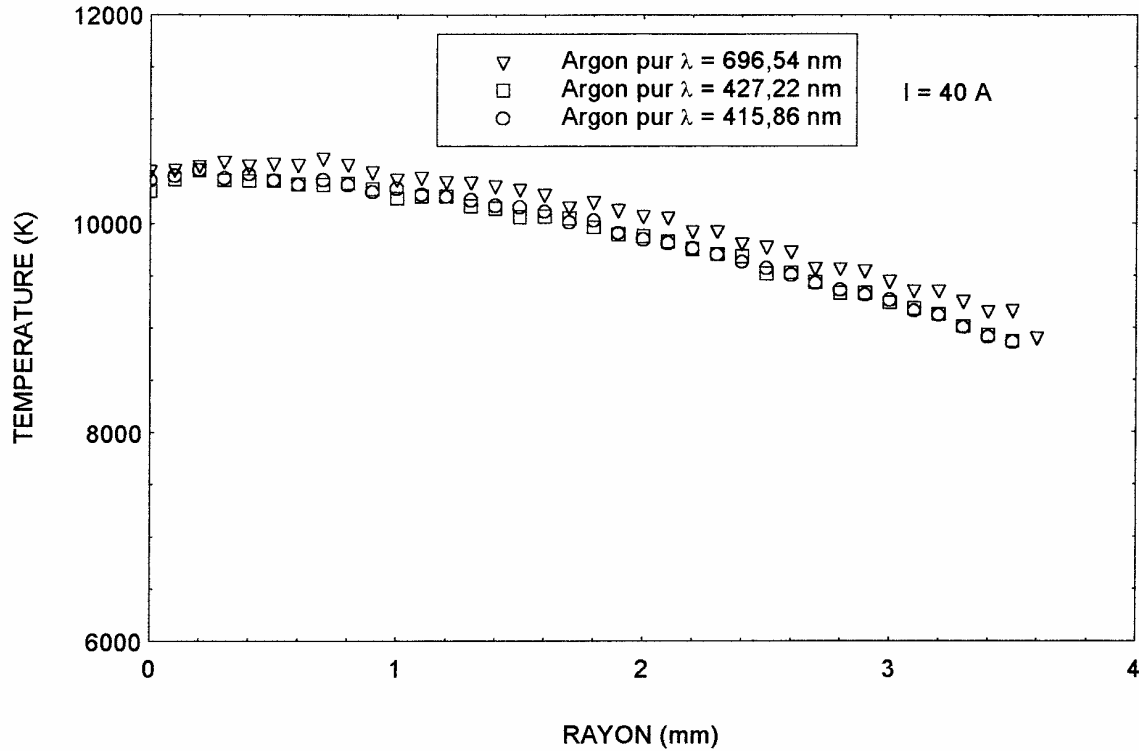


Figure (V.5) : Profils de température en fonction du rayon, déterminés à partir de l'intensité absolue de raies pour différentes raies d'argon neutre, pour un courant de 40 A.

Nous présentons sur la figure (V.6) l'évolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique pour les différentes valeurs de courant et pour chaque longueur d'onde.

L'analyse de ces courbes montre un élargissement notable du coeur de la décharge quand le courant augmente. D'autre part les températures sont mieux déterminées pour des courants supérieurs à 20 A. Les valeurs des températures augmentent quand le courant augmente.

La figure (V.7) représente la température en fonction du courant de décharge, à la pression atmosphérique, au centre de l'axe de la décharge et à une distance de 2 mm de l'axe de la décharge ; les valeurs des températures correspondent aux moyennes des valeurs déterminées à partir des trois raies d'argon neutre choisies. Cette figure confirme la croissance de la température en fonction de l'intensité du courant. Le gradient diminue quand le courant augmente. On peut constater un fort gradient pour les faibles courants ; il est de l'ordre de 600 K/mm pour $I = 5$ A et $I = 10$ A. Pour les courants supérieurs à 20 A il est plus faible et de l'ordre de 200 K/mm.

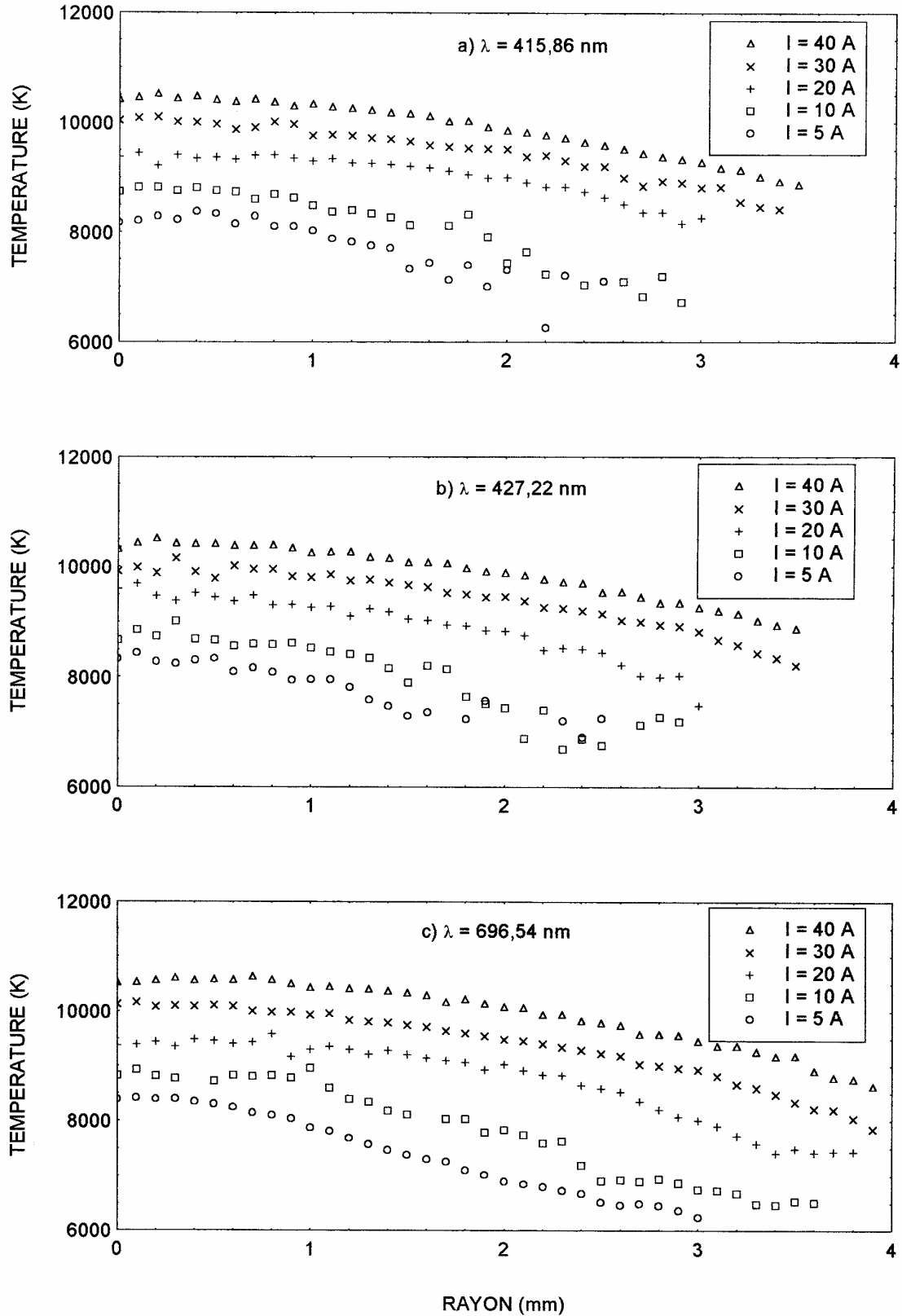


Figure (V.6) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour différentes valeurs de courants et différentes longueurs d'ondes d'argon neutre
a) $\lambda = 415,86 \text{ nm}$, b) $\lambda = 427,22 \text{ nm}$, c) $\lambda = 696,54 \text{ nm}$.

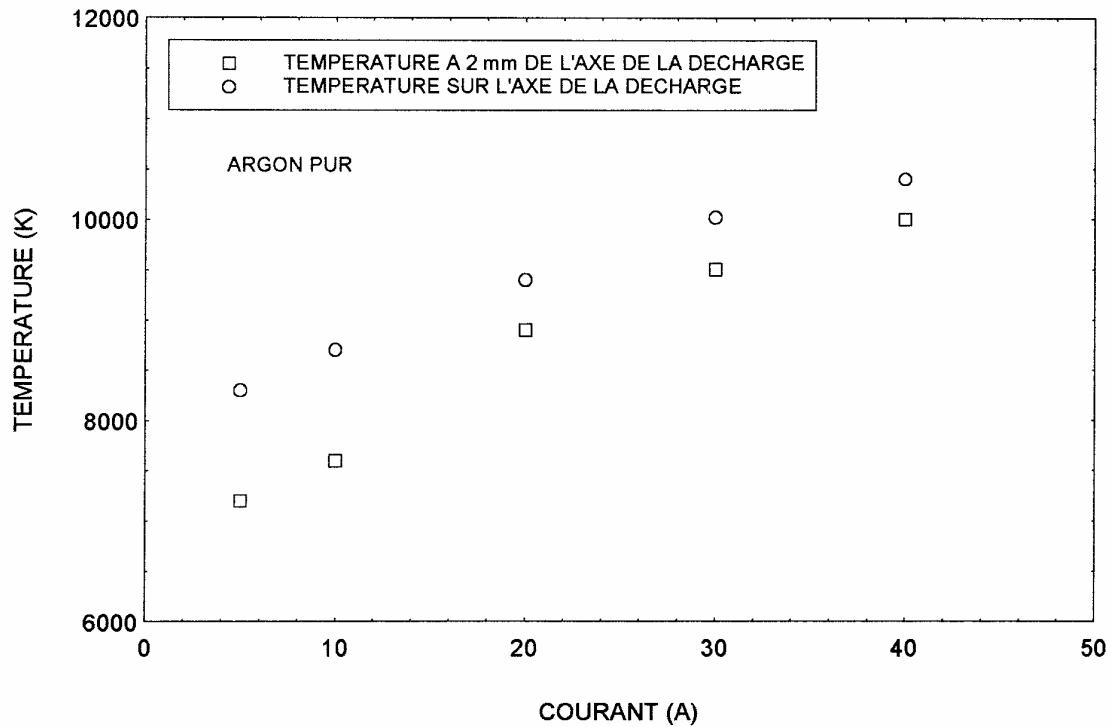


Figure (V.7) : Température en fonction de différentes valeurs de courant à la pression atmosphérique.

V.1.3. Détermination des profils de température à partir de la méthode relative de raie

Comme nous l'avons montré au chapitre IV, la température peut être calculée par la méthode de la pente de Boltzmann à partir de la relation (IV-4).

La figure (V.8) représente le profil radial de la température en fonction du rayon pour un courant de 30 A. Cette méthode a été appliquée aux deux raies de l'argon pur ($\lambda_1 = 415,86 \text{ nm}$, $\lambda_3 = 696,54 \text{ nm}$) ; elle a abouti à des valeurs très dispersées de la température comme le montre la figure (V.8).

La dispersion de ces points peut s'expliquer de la façon suivante :

- les caractéristiques des deux raies données dans le tableau (IV.1) ne permettent pas l'emploi de cette méthode et l'incertitude sur la température est élevée.

Sur la figure (V.8), on présente aussi les résultats obtenus par la méthode de l'intensité absolue de raie.

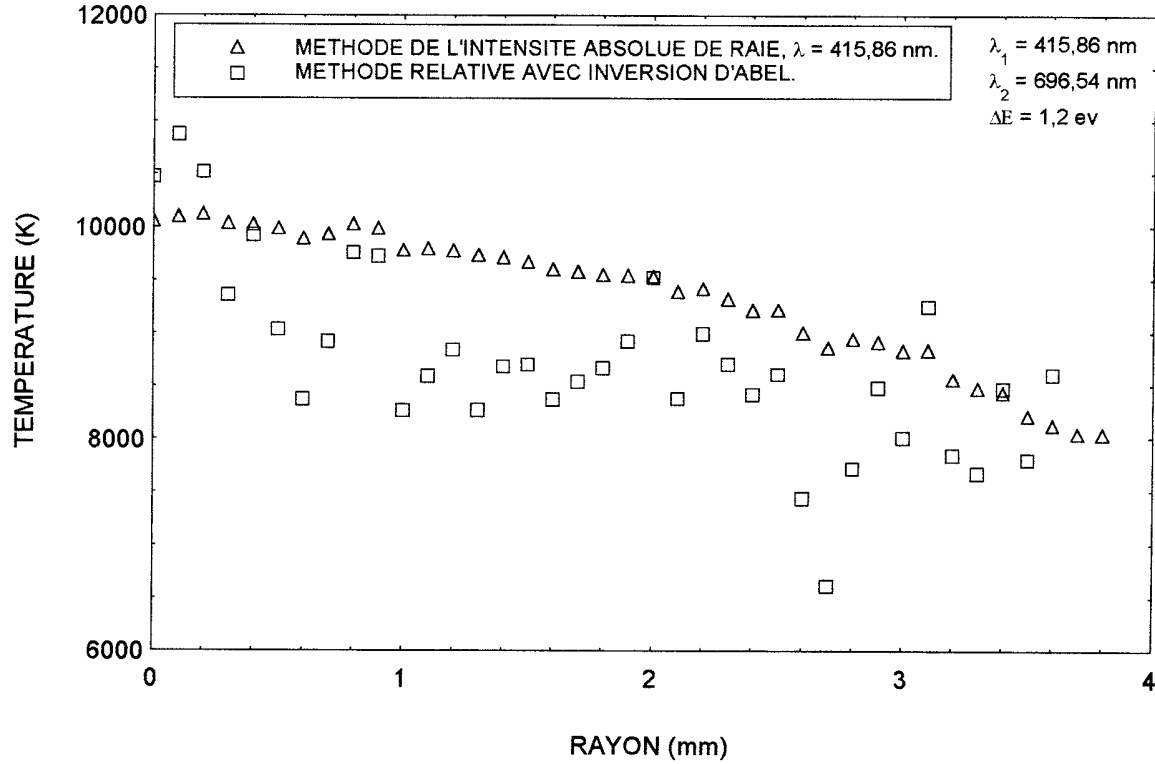


Figure (V.8) : Evolution de la température en fonction du rayon déterminé à partir de l'intensité relative et de l'intensité absolue de raie pour un courant de 30 A.

Or, d'après Kurskov [V/6], si l'on considère deux raies dont la différence des énergies d'excitation (ΔE) est élevée, ces deux méthodes donnent les mêmes résultats, figure (V.9). Dans le cas de leurs conditions expérimentales ($I = 180$ A et $I = 90$ A, courbes a) et b)), ces auteurs ont pu utiliser la raie d'ArII de longueur d'onde $\lambda = 480,6$ nm et la raie d'ArI de longueur d'onde $\lambda = 714,7$ nm, séparées de $\Delta E = 6$ eV. Mais dans ce cas, la loi de Saha-Eggert intervient pour déterminer le rapport $\frac{n_{\text{ArI}}}{n_{\text{ArII}}}$. Ces courbes montrent un bon accord entre ces trois méthodes.

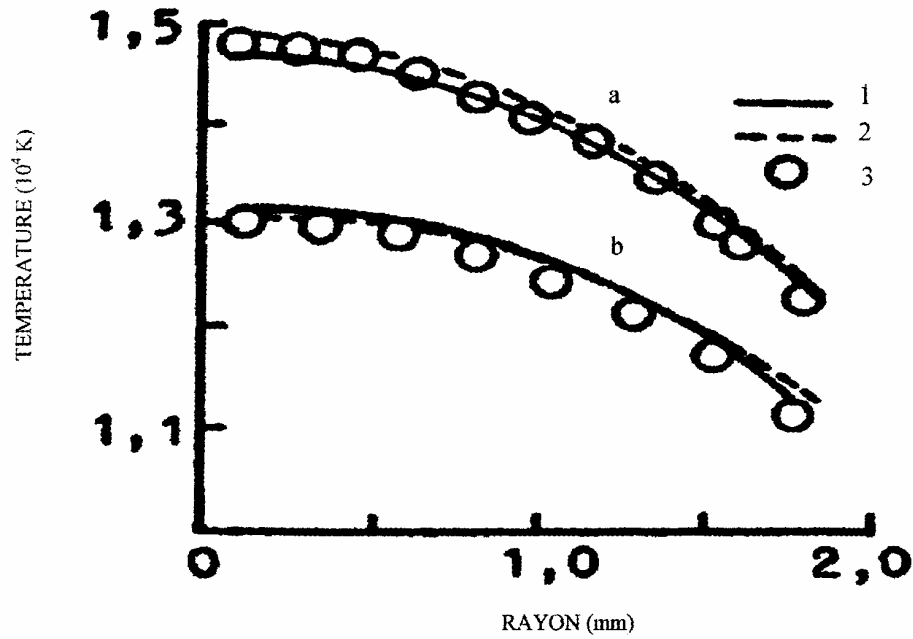


Figure (V.9) : Représentation des résultats des profils de température en fonction du rayon obtenus par Kurskov et al [V/6] par trois méthodes différentes et pour deux intensités de courant (courbe a) $I = 180$ A, courbe b) $I = 90$ A). Les résultats marqués d'un rond (O) correspondent à la méthode de l'intensité absolue de raie, les pointillés correspondent à la méthode relative avec inversion d'Abel et les traits pleins correspondent une méthode relative sans inversion d'Abel avec un facteur correctif $\sqrt{\frac{E_{ArII}}{E_{ArI}}}$.

Cette méthode n'a été appliquée dans notre cas que pour vérifier si l'ordre de grandeur de la température était le même que par la méthode absolue de raie.

Les calculs de profils de température ultérieurs sont déterminés par la méthode absolue de raie, la méthode de lissage des points expérimentaux étant faite par des fonctions splines d'ordre 2.

V.2. RESULTATS DES PROFILS DES TEMPERATURES D'EXCITATION ATOMIQUE POUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO₂

V.2.1. Conditions expérimentales et comparaison des profils de température avec les deux réseaux

Etant dans l'impossibilité d'amorcer l'arc dans le mélange Ar-CO₂, nous avons dû tout d'abord l'établir dans l'argon pur puis injecter le mélange Ar-CO₂ dans la partie centrale de la colonne d'arc. Ce qui revient à dire que l'on introduit finalement un gaz froid (quelques centaines de K) dans un plasma à environ 10 000 K.

Les raies d'argon observées sont les mêmes que celles utilisées dans le cas de l'argon pur.

Les raies de carbone choisies sont au nombre de trois : $\lambda_4 = 538,03$ nm, $\lambda_5 = 477,175$ nm, $\lambda_6 = 493,205$ nm. Mais, au cours de l'expérimentation, nous avons constaté que les deux dernières raies de carbone ($\lambda_5 = 477,175$ nm, $\lambda_6 = 493,205$ nm) présentaient des inconvénients pour certaines valeurs de courants et certains pourcentages. La raie ($\lambda_5 = 477,175$ nm) se superpose avec une autre raie et la raie ($\lambda_6 = 493,205$ nm) est auto-absorbée comme nous l'avons signalé dans le chapitre IV. Les résultats des profils de température de ces deux raies ne seront pas présentés dans les cas défavorables.

Le but du choix de ces différentes raies provenant d'états d'excitation différents est de vérifier si l'équilibre de Boltzmann sur les différents niveaux excités est rempli en comparant les profils de température des trois raies d'argon et de celles de carbone.

Nous avons utilisé les mêmes conditions expérimentales que pour l'argon pur : mêmes intensités de courant (sauf 5 A). La composition du mélange Ar-CO₂ varie de 0,9 % à 25 % de CO₂.

Nous avons fait des expériences essentiellement avec le réseau 600 traits/mm et dans quelques cas avec le réseau 2 400 traits/mm ; nous avons donc préalablement comparé les résultats obtenus avec ce réseau pour les températures d'excitation avec ceux obtenus avec le réseau 2400 traits/mm.

Sur la figure (V.9), nous traçons les résultats des profils de température d'excitation en fonction du rayon obtenus par les deux réseaux 600 tr/mm et 2 400 tr/mm pour un courant de 30 A et un pourcentage de 5,3 % CO₂. Sur la figure (V.10), nous donnons les résultats pour un pourcentage de 12 % CO₂.

La comparaison des profils de température montre un bon accord entre les valeurs obtenues par les deux réseaux. L'écart observé reste très inférieur à la valeur de l'incertitude commise sur le calcul de la température d'excitation et évaluée précédemment.

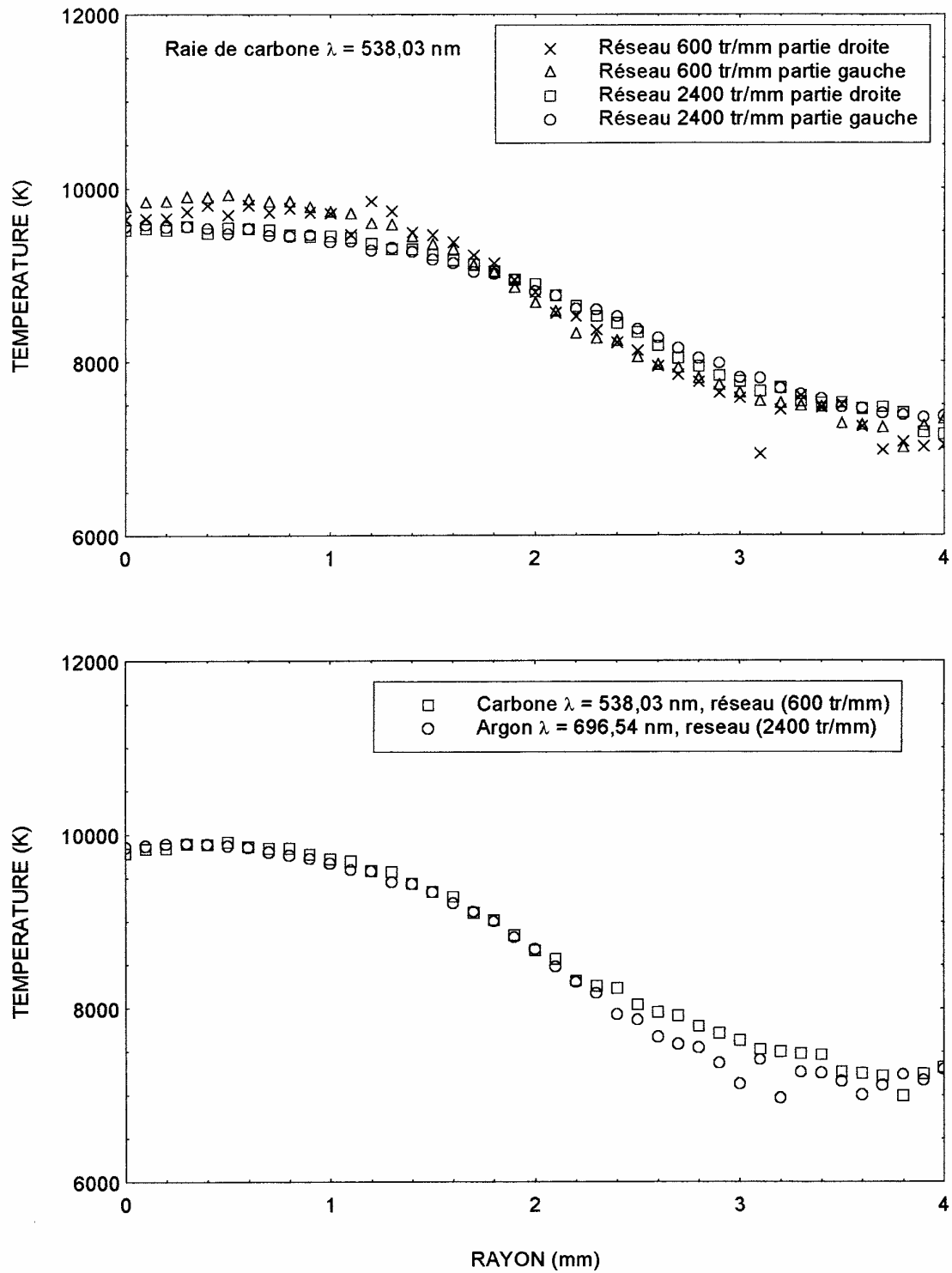


Figure (V.9) : Comparaison entre les résultats des profils de température en fonction du rayon obtenus par les deux réseaux 600 tr/mm et 2 400 tr/mm, pour un pourcentage de 94,7 % Ar, 5,3 % CO₂ et un courant de 30 A, pour des raies d'argon et de carbone.

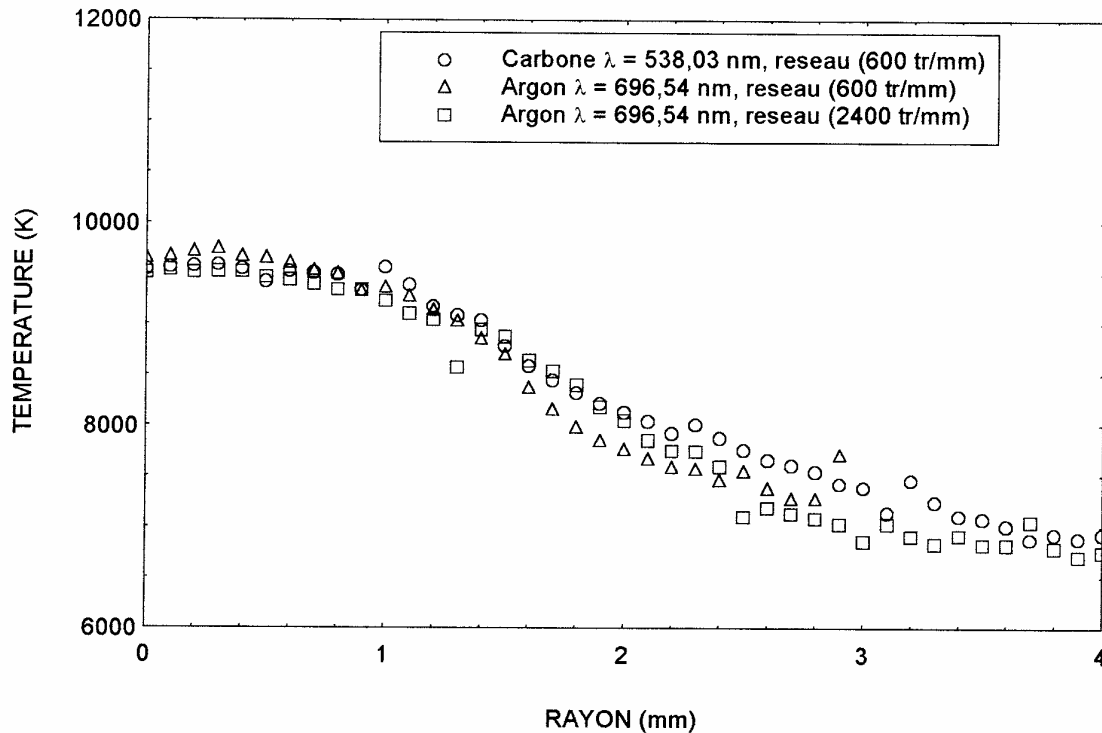


Figure (V.10) : Comparaison entre les résultats des profils de température en fonction du rayon obtenus par les deux réseaux 600 tr/mm et 2 400 tr/mm, pour un pourcentage de 88 % Ar, 12 % CO₂ et un courant de 30 A des raies d'argon et de carbone.

V.2.2. Détermination de la composition expérimentale réelle du mélange Ar-CO₂ à partir du calcul de la température d'excitation des raies atomiques

Nous utilisons le même principe de calcul de la température d'excitation des atomes neutres que dans le cas de l'argon pur.

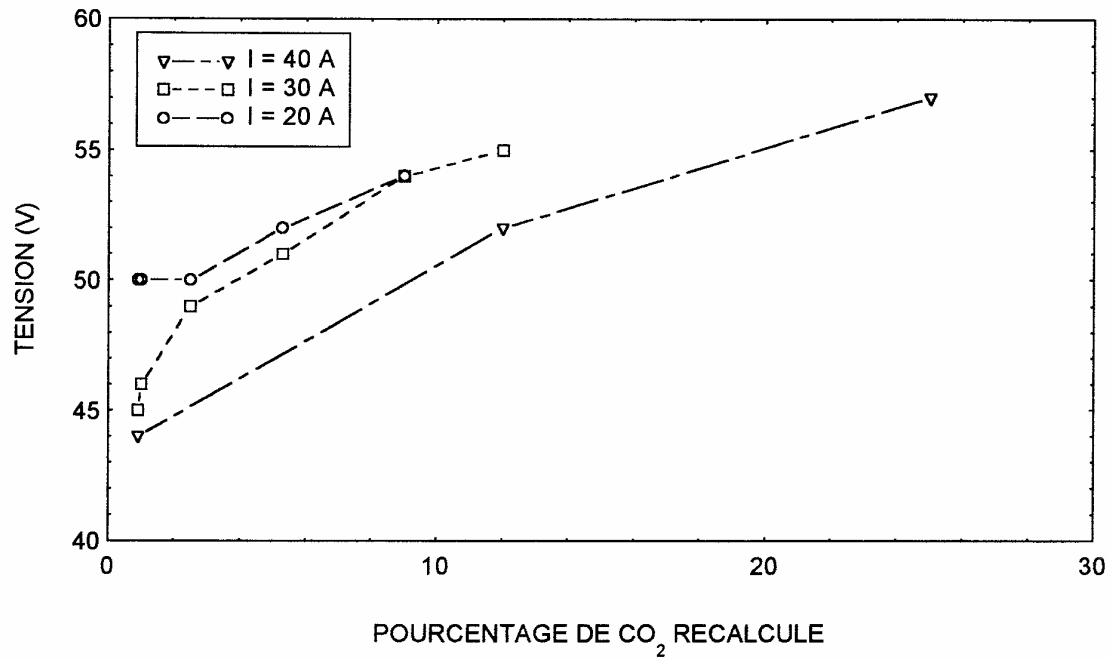
Au cours de l'étude expérimentale que nous développons ci-après, l'addition de pourcentage de CO₂ au milieu de la colonne d'arc est techniquement limitée selon les valeurs du courant :

- pour un courant de 10 A, l'addition est limitée à 1,15 % de CO₂,
- pour un courant de 20 A, la limite d'injection ne peut dépasser 11,5 % de CO₂,
- pour un courant de 30 A, on ne peut injecter plus de 17,5 % de CO₂,
- pour un courant de 40 A, on peut injecter jusqu'à 25 % de CO₂ au milieu de la colonne d'arc.

Les figures (V.11) et (V.12) illustrent ce phénomène.

La raison que l'on peut donner pour expliquer ceci est que lorsqu'on augmente le courant de l'arc, la conductivité électrique augmente. Plus on introduit dans le plasma de molécules, plus on doit fournir de l'énergie pour les dissocier. Si l'on veut injecter une forte proportion de CO₂ au milieu de la colonne d'arc, il faut donc augmenter l'énergie pour effectuer la dissociation de cette molécule.

Le calcul de la température d'excitation à partir d'une raie d'argon et d'une raie de carbone pour un courant donné de 30 A et un pourcentage de CO₂ de 12 % injecté au milieu de la colonne d'arc, y compris l'argon injecté aux électrodes, donne des valeurs différentes.



Figure(V.11) : Evolution de la tension aux bornes de l'alimentation de l'arc en fonction du pourcentage de CO_2 pour trois valeurs de courant (20A, 30A, 40A).

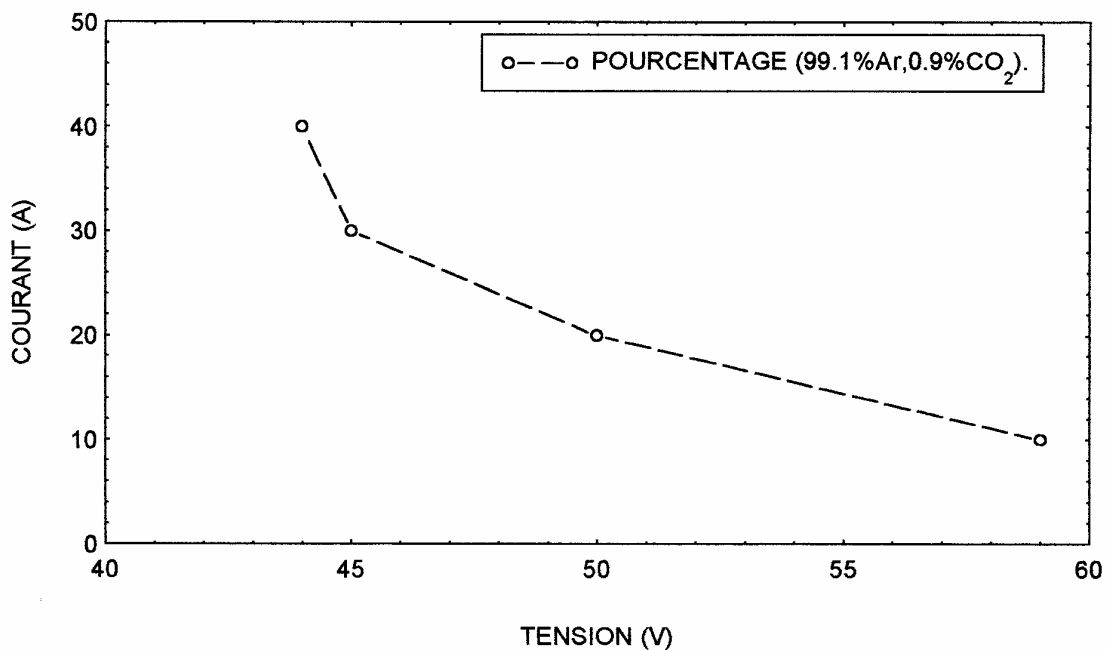


Figure (V.12) : Evolution du courant en fonction de la tension pour un pourcentage de 0,9 % de CO_2 .

Les résultats sont présentés sur la figure (V.13) et montrent l'écart existant entre ces deux profils de température dans la zone centrale de la colonne d'arc.

Il semblerait donc que les proportions des composants Ar- CO_2 dans le plasma ne soient pas celles injectées.

Les causes qui peuvent expliquer ces différences de température sont les suivantes :

- comme le signalent Bacri et al [V/7], le plasma créé dans un arc stabilisé par parois n'est pas homogène,
- cela peut-être dû à l'injection d'un gaz froid dans un plasma, le plasma final obtenu n'est pas homogène,
- l'équilibre thermodynamique local n'est pas atteint,
- certains phénomènes peuvent intervenir dans le milieu réactionnel de notre gaz plasmagène, par exemple l'air ambiant peut modifier la composition du plasma.

En supposant que l'on soit dans les conditions de l'E.T.L, nous faisons varier la proportion de CO₂ jusqu'à obtenir les mêmes profils de température pour l'argon et le carbone ; ainsi pour l'exemple présenté sur la figure (V.14), le pourcentage de CO₂ recalculé est alors de 9 % au lieu de 12 % injecté.

Nous présentons les différents profils de température d'excitation des trois raies d'argon sur la figure (V.15), nous observons un bon accord des résultats des profils de température obtenus entre ces différentes raies pour un mélange de 9 % de CO₂ injecté dans le milieu de la colonne d'arc pour un courant de 30 A. En conséquence, nous pouvons conclure que l'équilibre de Boltzmann a été atteint sur ces différents niveaux.

Pour les différents pourcentages de CO₂ injectés à la pression atmosphérique, on procède de la même façon : c'est-à-dire que l'on fait varier la composition théorique jusqu'à ce que l'on trouve les mêmes résultats des profils de température pour une raie d'argon et une raie de carbone.

Le tableau (V.1) donne les valeurs du pourcentage de CO₂ injecté au milieu de la colonne d'arc en tenant compte et sans tenir compte de l'argon au niveau des électrodes. Il donne aussi le pourcentage de CO₂ recalculé pour avoir la même température d'excitation de l'atome d'argon que celle de l'atome de carbone neutre. Le rapport R entre les valeurs de pourcentages de CO₂ injecté et les valeurs de pourcentages de CO₂ recalculées varie en fonction du pourcentage de CO₂ injecté au milieu de la colonne.

% de CO ₂ injecté au milieu de la colonne d'arc	% de CO ₂ injecté au centre de la colonne en tenant compte de l'argon des électrodes	% de CO ₂ recalculé	R = (% recalculé en tenant compte de l'argon des électrodes)/(% recalculé)
1,8	1,20	0,9	1,27
2,4	1,54	1,0	1,54
4,8	3,00	2,5	1,20
9,1	6,00	5,3	1,13
20,0	11,50	9,0	1,27
33,0	15,00	11,0	1,36
50,0	17,50	12,0	1,46
75,0	40,00	25,0	1,60

Tableau (V.1) : Comparaison entre les valeurs du pourcentage de CO₂ injecté au milieu de la colonne d'arc et du pourcentage recalculé pour avoir les mêmes températures des raies atomiques d'argon et de carbone.

Le rapport R tend à augmenter quand la proportion de CO₂ augmente.

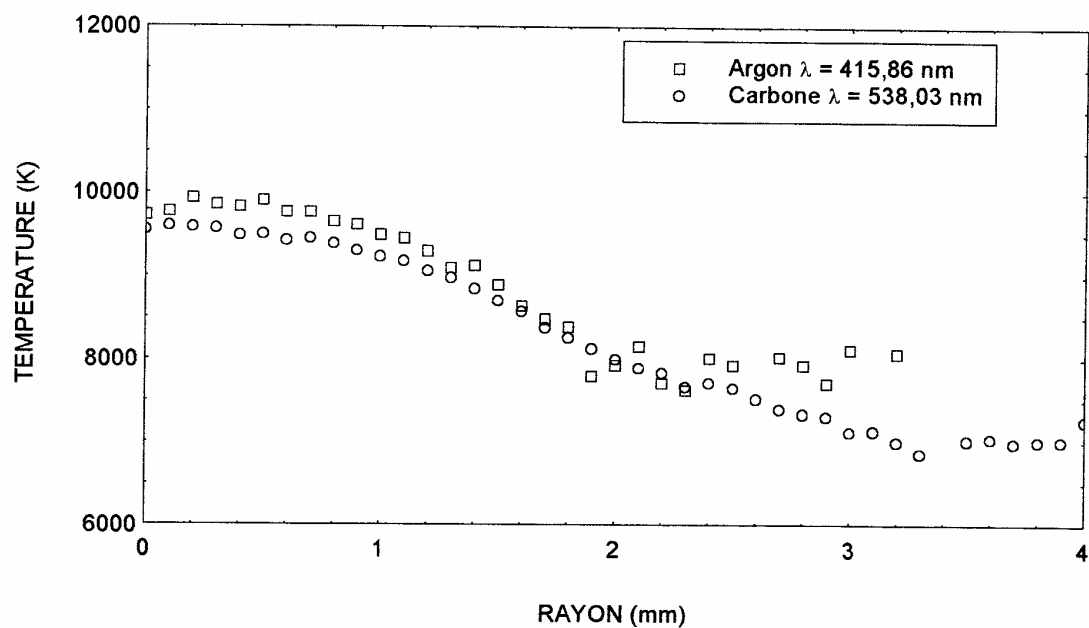


Figure (V.13) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage injecté dans la colonne d'arc de (88 % Ar, 12 % CO_2) et pour un courant de 30 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

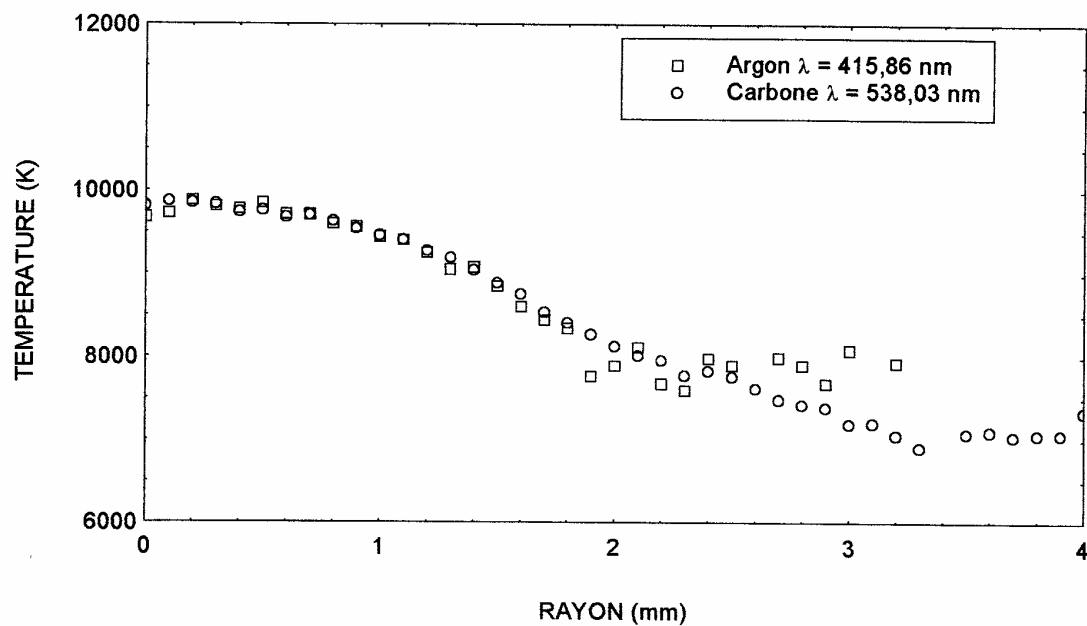


Figure (V.14) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage recalculé (91 % Ar, 9 % CO_2) et pour un courant de 30 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

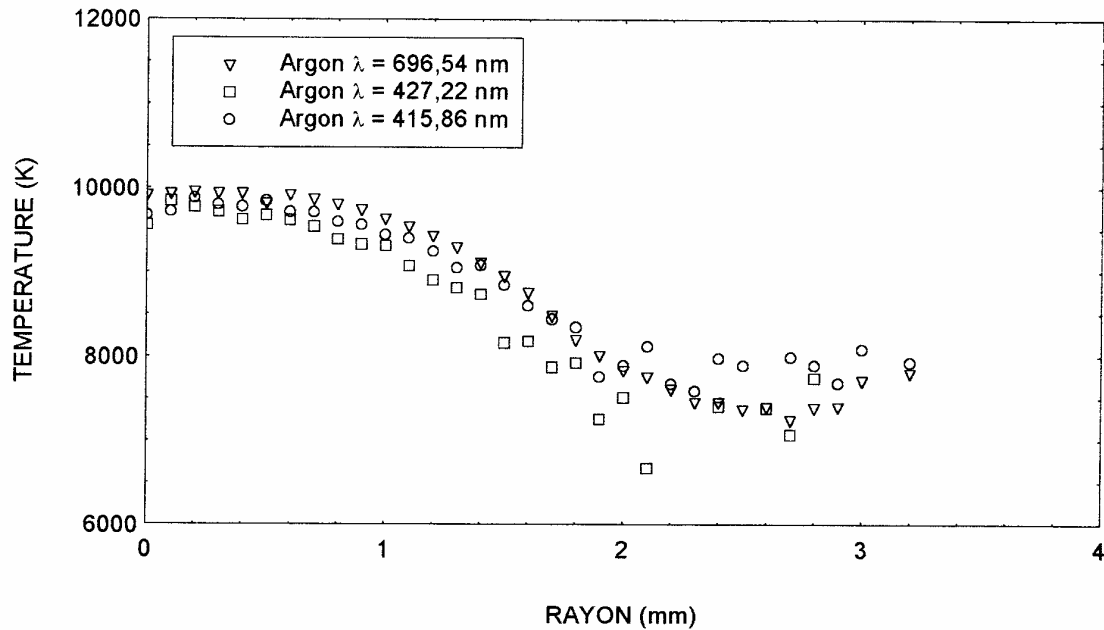


Figure (V.15) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage recalculé 91 % Ar, 9 % CO₂ et un courant de 30 A, pour différentes longueurs d'ondes observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon. Le pourcentage injecté est de 88 % Ar - 12 % CO₂.

De nombreuses études ont montré que lors de l'introduction de gaz froid dans des chambres à arc de plasma, le milieu réactionnel n'est pas homogène [V/7], [V/8]. Dans notre cas d'étude, étant dans l'impossibilité d'amorcer l'arc dans le mélange Ar-CO₂, comme nous l'avons signalé précédemment, on crée l'arc dans l'argon pur puis on injecte le mélange Ar-CO₂.

Pour mieux comprendre le rôle de l'injection du gaz CO₂ dans ce type de décharge, nous nous proposons de présenter les résultats des profils de températures d'excitation et de rotation quand on injecte le mélange Ar-CO₂ juste au niveau des électrodes sans rien injecter au milieu de la colonne d'arc afin d'étudier la différence entre ces deux cas d'injection.

Les mesures de l'injection du mélange Ar-CO₂ au niveau des électrodes à un courant et un pourcentage donnés ont été effectuées au cours d'un stage de D.E.A [V/9].

V.2.3. Profils de température d'excitation dans le cas où on injecte le mélange Ar-CO₂ juste au niveau des électrodes

Le but de ce paragraphe est d'expliquer et de comprendre pourquoi lorsqu'on injecte le mélange Ar-CO₂ au milieu de la colonne d'arc on trouve un écart entre les deux profils de température d'excitation des raies atomiques d'argon et des raies atomiques de carbone.

Pour obtenir un arc stable et pour qu'on puisse faire les mesures, nous n'avons pu injecter qu'un pourcentage de 0,7 % de CO₂ pour un courant de 30 A.

La figure (V.16) représente l'évolution du profil de température d'excitation de trois raies atomiques différentes (argon, carbone, triplet d'oxygène). Les courbes de ces profils de température sont tracées séparément pour faciliter la lecture. Les graphes a), b), c) de la figure (V.16) correspondent respectivement aux raies d'argon, de carbone et d'oxygène.

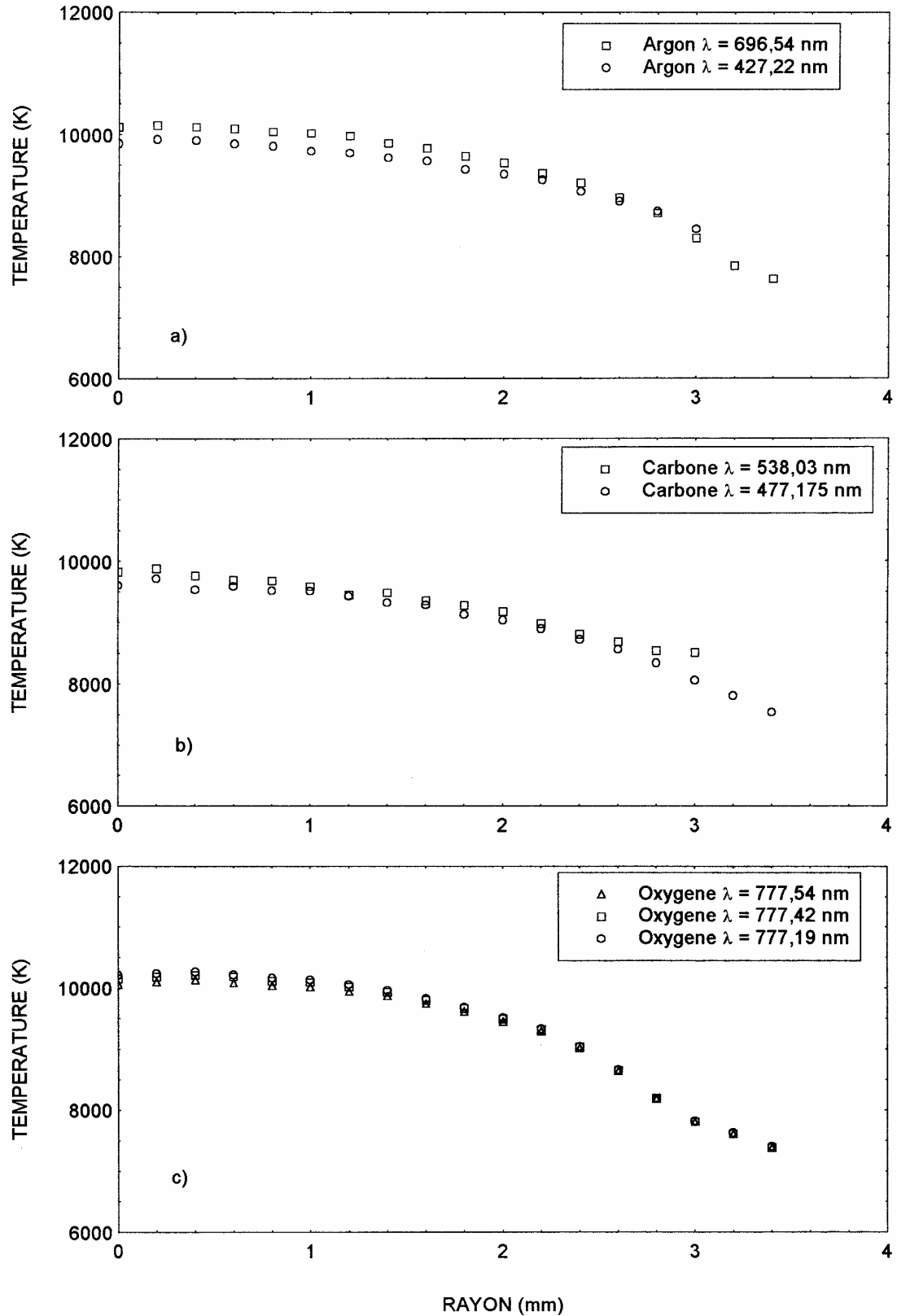


Figure (V.16) : Evolution de la température en fonction du rayon (mm) à la pression atmosphérique, pour un pourcentage de 0,7 % CO_2 injecté juste au niveau des électrodes et pour un courant de 30 A, pour différentes espèces présentes dans le plasma Ar- CO_2 : a) raies d'argon, b) raies de carbone, c) raies d'oxygène (réseau 2400 tr/mm).

Sur la figure (V.17), on établit la comparaison des profils de température d'excitation de deux raies atomiques différentes pour faciliter l'analyse et l'interprétation des résultats obtenus et sur la figure (V.18) l'ensemble des profils de température d'excitation de ces différentes raies atomiques est tracé.

L'observation et l'analyse de ces courbes montre un assez bon accord entre les températures de ces différentes raies atomiques. Cependant, un écart maximal de 500 K sur la température est observé. Si on compare ces résultats (pourcentage de CO_2 0,7 %) à ceux obtenus pour un pourcentage recalculé de 0,9 % de CO_2 injecté dans la zone centrale (figure (V.19)), on trouve les mêmes ordres de grandeur.

On ne peut conclure avec certitude que l'injection au niveau des électrodes améliore l'homogénéité du plasma.

De plus, l'inconvénient de l'injection du mélange Ar- CO_2 juste au niveau des électrodes est que d'une part, on est limité au niveau des valeurs du pourcentage de CO_2 , et d'autre part les spectres moléculaires de C_2 , et CN enregistrés présentent un fort fond continu et le dépouillement de ces fichiers est inexploitable.

V.2.4. Profils de température pour un courant donné, avec les nouveaux calculs de composition

Comme nous venons de le voir dans les paragraphes précédents, le mélange Ar- CO_2 au milieu de la colonne d'arc n'est pas tout à fait le même que celui injecté (tableau (V.1)). De ce fait, les résultats des profils de température des différentes espèces en présence dans le plasma que nous allons donner par la suite, correspondent aux pourcentages recalculés.

Les profils radiaux de la température pour les différentes longueurs d'onde d'argon et de carbone observées dans le plasma, à différents pourcentages de CO_2 recalculés et pour un courant de 30 A, sont tracés sur les figures (V.19 à V.26).

L'analyse des figures (V.19), (V.21), (V.24), (V.25), montre un parfait accord entre les trois différentes longueurs d'onde des raies d'argon.

Sur les figures (V.20), (V.22), (V.23), (V.26), nous représentons la comparaison des profils de température d'excitation en fonction du rayon à la pression atmosphérique, entre une raie d'argon et une raie de carbone pour les différents pourcentages recalculés de CO_2 et pour un courant de 30 A. L'analyse de ces courbes montre un parfait accord entre les deux profils de température des deux raies d'argon et de carbone.

La température dépend de nombreux paramètres et en particulier de la composition chimique locale du plasma de l'arc.

Les espèces qui présentent une énergie d'ionisation plus élevée comme l'argon se concentrent plus dans les zones axiales ; par contre les espèces de faible énergie d'ionisation comme le carbone se concentre au bord de l'arc. Sur les figures (V.22, 23, 26), la température à partir des raies d'argon n'a pu être calculée pour $r \geq 3$ mm à cause de la faible concentration en argon, ce qui indique que nous avons le phénomène de démixtion dans notre plasma. Ce résultat a été signalé aussi par Vukanovik [V/10].

Les propriétés du plasma sont influencées en particulier par les réactions chimiques qui se produisent entre les différents constituants.

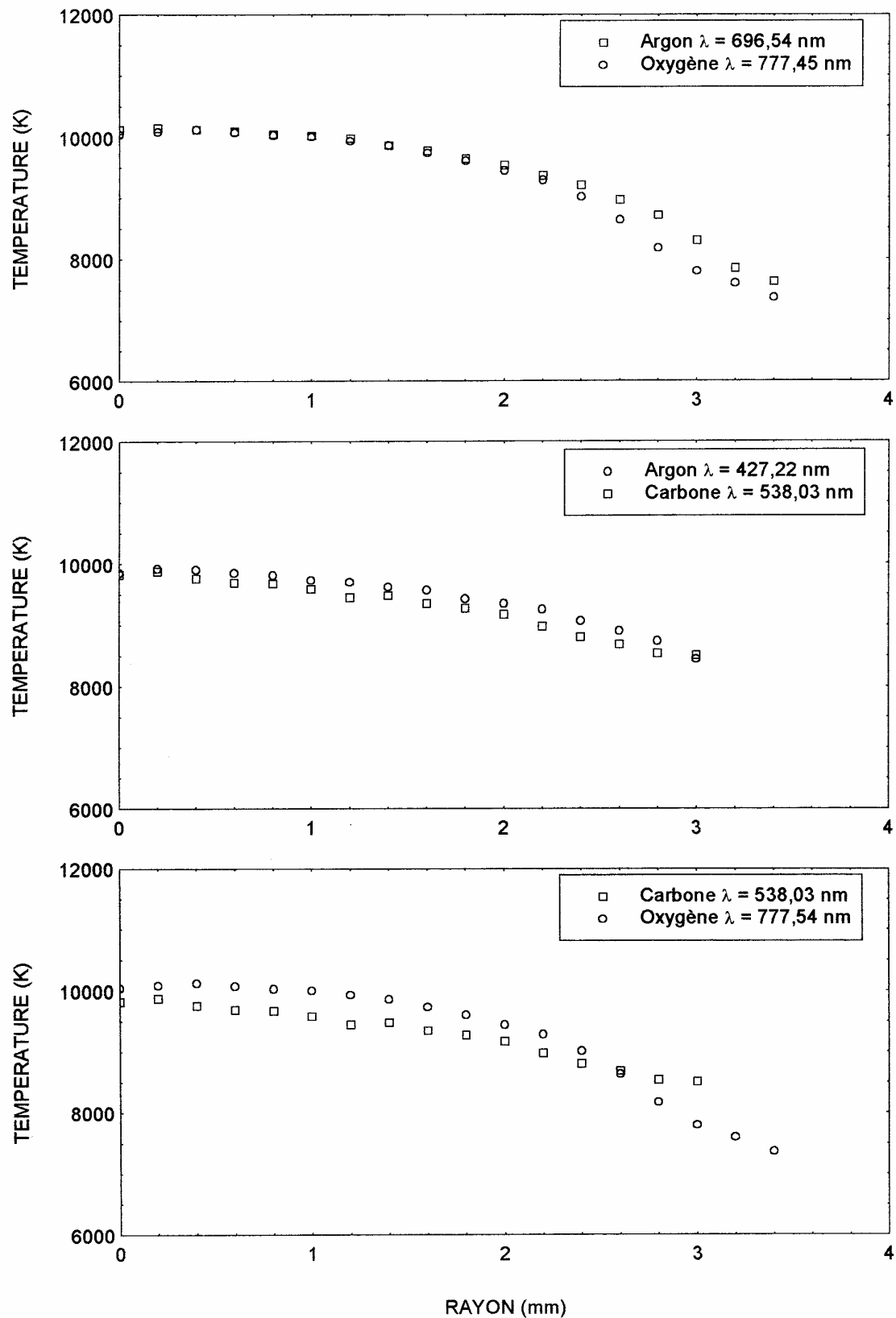


Figure (V.17) : Comparaison entre les profils des températures en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour un pourcentage de 0,7 % CO₂ injecté juste au niveau des électrodes et pour un courant de 30 A, pour différentes espèces présentes dans le plasma Ar-CO₂.

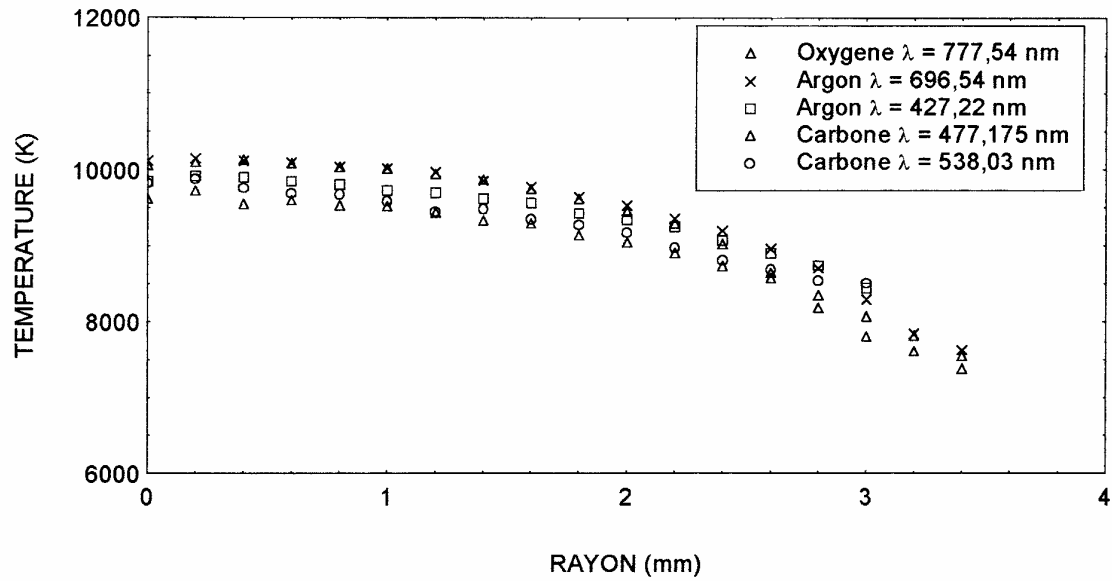


Figure (V.18) : Ensemble des profils des températures en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour un pourcentage de 0,7 % CO_2 injecté au niveau des électrodes, pour un courant de 30 A, pour différentes espèces présentes dans le plasma Ar- CO_2 .

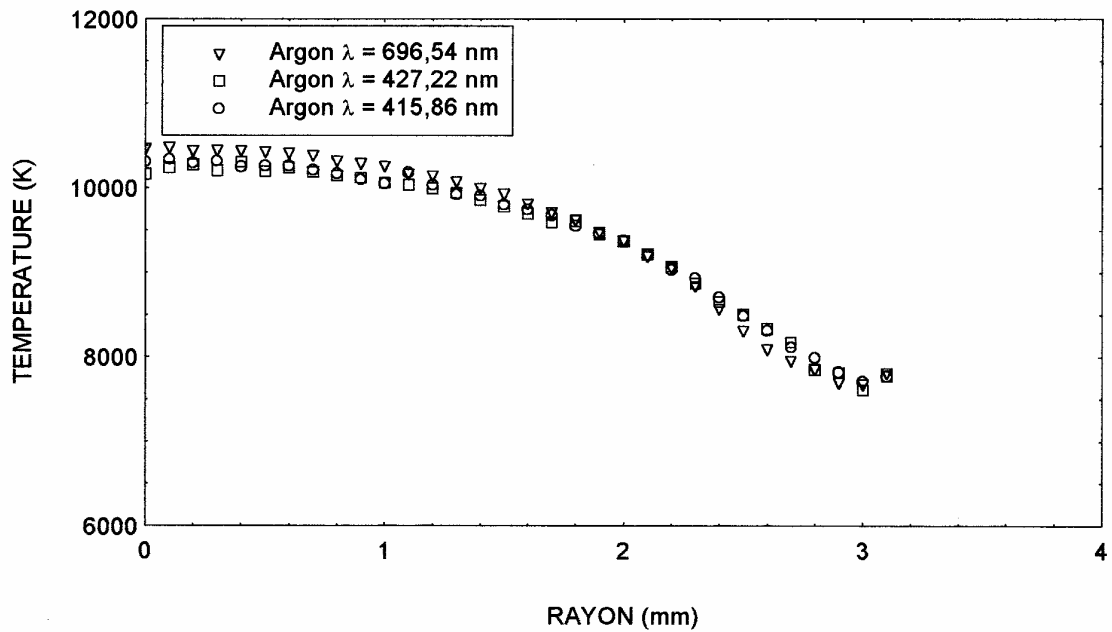


Figure (V.19) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage recalculé 99,1 % Ar, 0,9 % CO_2 et un courant de 30 A, pour différentes longueurs d'onde des raies d'argon observées dans le mélange Ar- CO_2 .

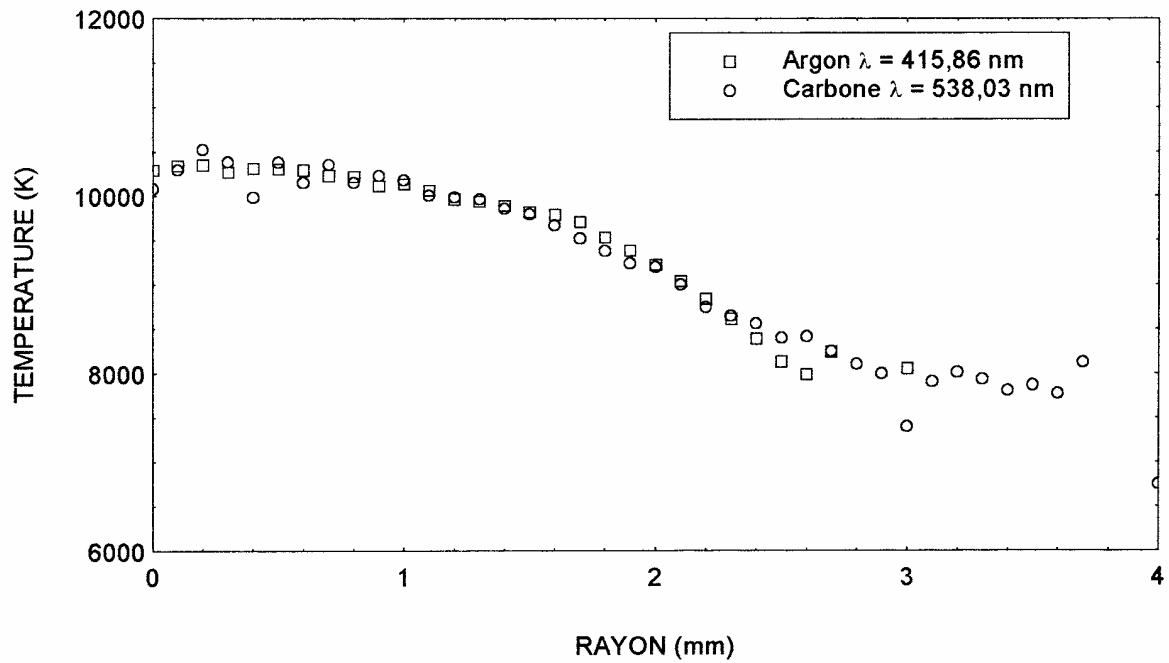


Figure (V.20) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 99,1 % Ar, 0,9 % CO₂ et pour un courant de 30 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

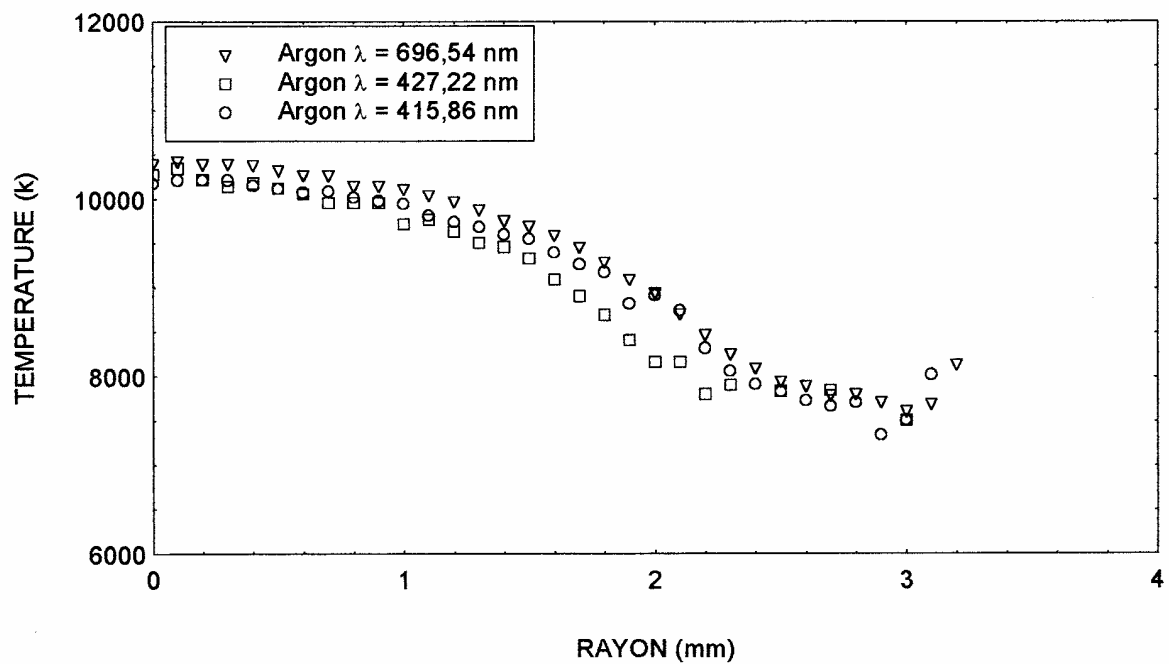


Figure (V.21) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 97,5 % Ar, 2,5 % CO₂ et un courant de 30 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

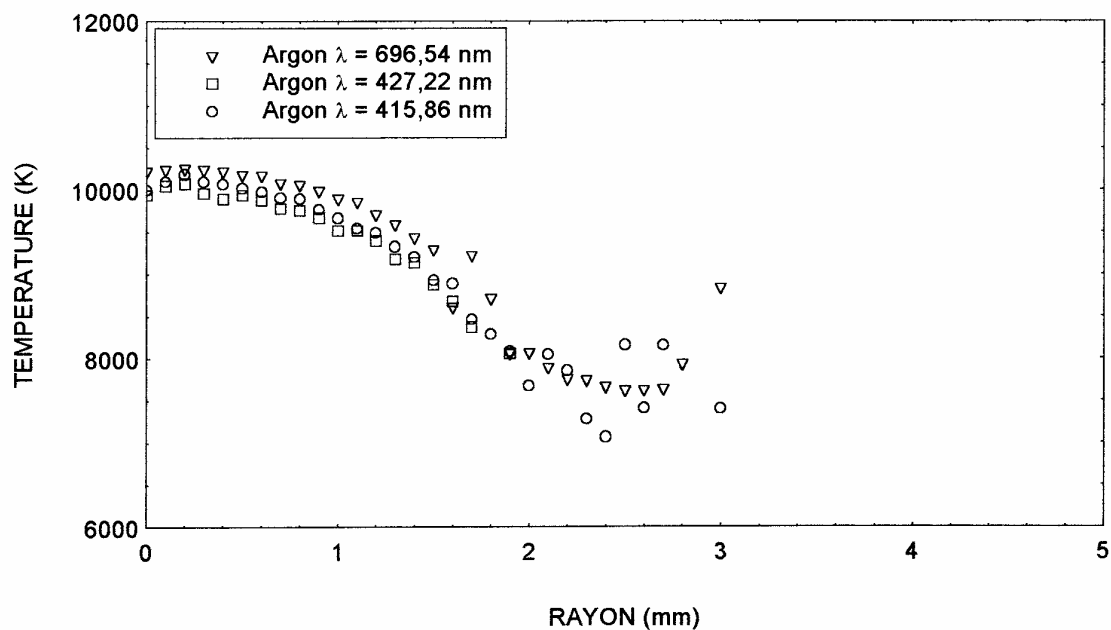


Figure (V.24) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 94,7 % Ar, 5,3 % CO₂ et un courant de 30 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

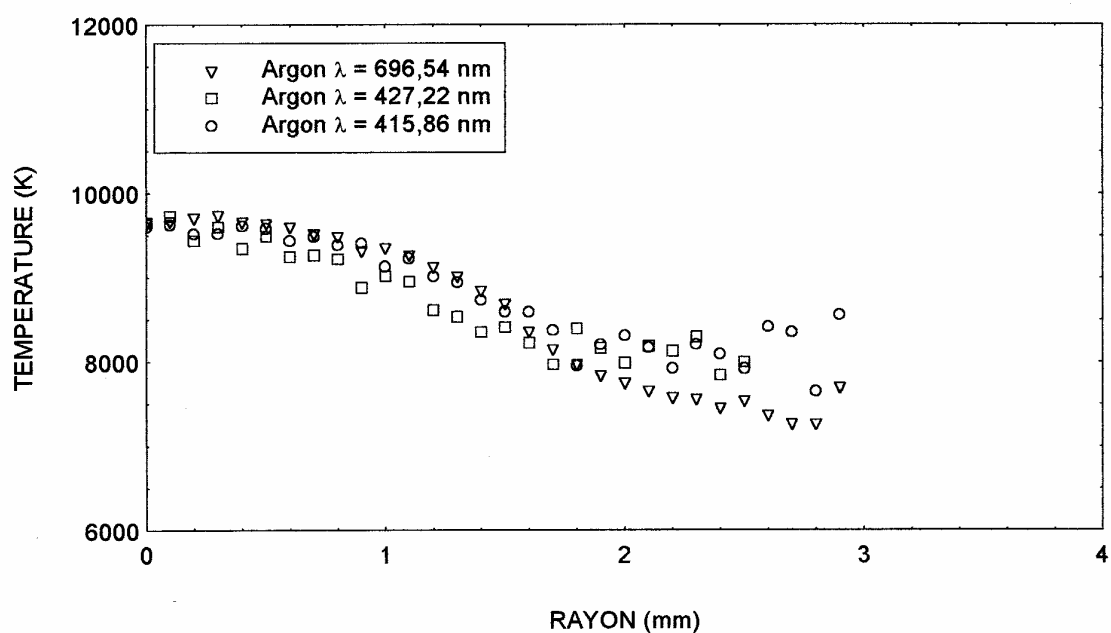


Figure (V.25) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 88 % Ar, 12 % CO₂ et un courant de 30 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

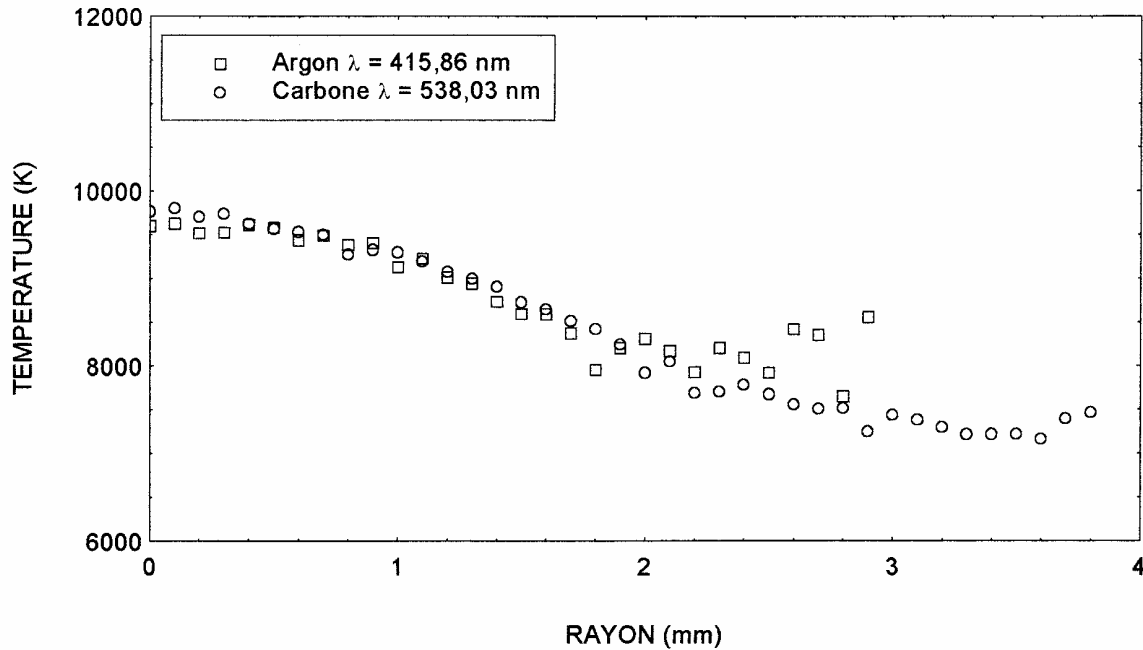
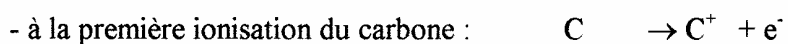
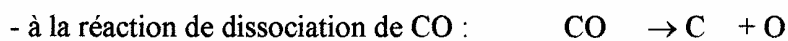


Figure (V.26) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 88 % Ar, 12 % CO_2 et pour un courant de 30 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

Si on compare les profils de températures des raies d'argon pour le mélange Ar- CO_2 (figure (V.27)) aux profils de température de l'argon pur, pour un courant $I = 30 \text{ A}$, on constate que leurs formes sont différentes. Dans le cas de l'argon pur, les profils de température ne présentent qu'un faible gradient de température. Pour le mélange Ar- CO_2 le gradient de température est beaucoup plus élevé. D'autre part entre 7000 K et 8500 K, un palier semble se dessiner bien que dans cette zone les mesures deviennent beaucoup moins précises. Ce palier pourrait être dû aux réactions de dissociation des molécules de CO, C_2 et aux réactions d'ionisation des atomes de carbone.

En effet, si l'on analyse les courbes de la chaleur massique (figure (II.6)), il y a absence de pic dans le cas de l'argon pur à ces températures. Par contre dans le cas du mélange Ar- CO_2 , la courbe de chaleur massique présente un pic correspondant :



Nous avons signalé dans le paragraphe II.4.4 que d'autres auteurs [V/11], [V/12] ont montré que les courbes représentant la chaleur massique ou la conductivité thermique en fonction de la température (figure II.11) présentent deux maxima entre 1 000 K et 8 000 K.

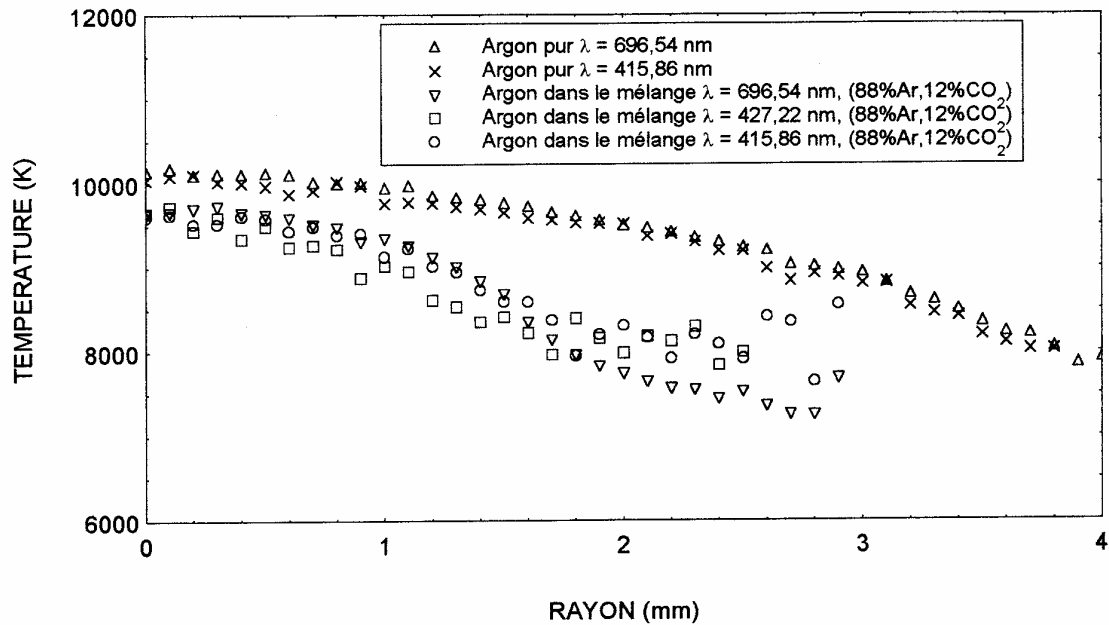


Figure (V.27) : Comparaison entre un profil de température dans le cas de l'argon pur et pour le mélange Ar-CO₂ (88 % Ar, 12 % CO₂) pour un courant de 30 A, à la pression atmosphérique.

On constate que le diamètre de la colonne d'arc diminue, si l'on compare les résultats des profils de température donnés par les raies d'argon dans le cas du mélange aux profils de température dans le cas de l'argon pur (figure(V.27)). Ce phénomène a été observé par d'autres auteurs dans une décharge d'argon en présence d'azote [V/13], dans des vapeurs d'iode [V/14], dans des arcs brûlants dans le dioxyde de carbone [V/12] et dans des arcs contaminés par des vapeurs d'isolants [V/2]. Ces auteurs expliquent que la diminution du rayon de la décharge est liée à la conductivité thermique, celle-ci étant plus élevée dans un gaz moléculaire que dans un gaz atomique [V/15], [V/16].

Vukanovik et al ([V/10], [V/17]) montrent que pour interpréter l'allure radiale de la température dans un arc, il est nécessaire de déterminer deux valeurs de températures : la température sur l'axe de la décharge de l'arc T_0 et la température à laquelle la conductivité thermique passe par un maximum $T_{\max}$. A partir des valeurs de ces deux températures, Vukanovik et al envisagent quatre catégories de l'allure radiale de température parmi lesquelles deux nous intéressent.

Dans le cas de l'argon pur, la chaleur massique ne présente aucun maximum pour une température comprise entre 4 000 et 10 000 K, (figure (II.6)). Il n'y a donc aucune réaction chimique dans cette zone de température. L'allure de la répartition radiale des profils de température ne présente pas une grande variation de gradient.

L'autre cas de figure qui nous intéresse est le suivant : la chaleur massique possède deux maxima. Vukanovik et al [V/10] donnent l'exemple de l'étude de la molécule de CO₂. En examinant les courbes de la chaleur massique du mélange Ar-CO₂, on note qu'il y a deux pics. L'un est compris entre 3 000 K et 4 000 K [V/11] et l'autre entre 6 000 K et 8 000 K [V/11]. Pour la conductivité thermique comme pour la chaleur massique, l'allure des courbes s'interprète en fonction des réactions qui ont lieu dans le plasma.

Vukanovic et al [V/10] montrent que si la température de l'un des deux pics de la chaleur massique correspond approximativement à la température de l'axe de la décharge, alors que l'autre pic apparaît à une température moins élevée, la répartition radiale de profils de température présente un noyau central et une zone dont le gradient de température est plus faible. Dans ce cas, ces auteurs ne prennent en considération que le deuxième pic où les deux valeurs de température ont même ordre de grandeur et ils négligent la présence du premier pic. Le phénomène de la formation du noyau dans l'axe de l'arc est moins prononcé.

En analysant les résultats du profil de température d'excitation que nous présentons sur les figures (V.24, 25, 26) pour un courant de 30 A, on constate qu'à 7 500 K environ, un palier dont le gradient de température est plus faible, semble apparaître.

Les conclusions de Vukanovic et al [V/10] confirment nos résultats de profils radiaux de températures dans le mélange Ar-CO₂.

V.2.5. Influence du courant sur les profils de température d'excitation

Nous avons signalé précédemment que le pourcentage de CO₂ recalculé pour avoir les mêmes résultats des profils de températures des raies d'argon avec ceux des raies de carbone est identique pour les différentes valeurs de courants.

Pour le courant de 20 A, nous donnons les résultats des profils de température correspondant aux pourcentages de CO₂ (0,9 %, 2,5 %, 5,3 %, 9 %). Les figures (V.28 à V.34) présentent les résultats obtenus des profils de température des raies d'argon et de carbone avec les pourcentages recalculés. Sur les figures (V.30, V.31, V.34) les résultats des profils de température correspondent aux raies d'argon. L'analyse de ces courbes montre une grande concordance entre les profils de température.

Pour le courant de 40 A, de la même façon, nous présentons les résultats obtenus pour trois différents pourcentages de CO₂ (0,9 %, 12 %, 25 %). Nous voyons que pour le courant $I = 40$ A nous avons pu augmenter le pourcentage de CO₂ jusqu'à 25 %, ce qui n'est pas le cas pour les autres courants comme nous l'avons signalé précédemment. Les figures (V.35 à V.39) présentent les résultats des profils de température pour des raies d'argon et de carbone. L'analyse des résultats de ces figures obtenus avec les pourcentages recalculés montre que les profils de température sont identiques.

La figure (V.40) donne les résultats obtenus pour un faible courant $I = 10$ A. On constate sur cette figure que les valeurs de température sont un peu dispersées pour les raies de carbone à cause de la faible intensité lumineuse des raies de carbone dans ce cas.

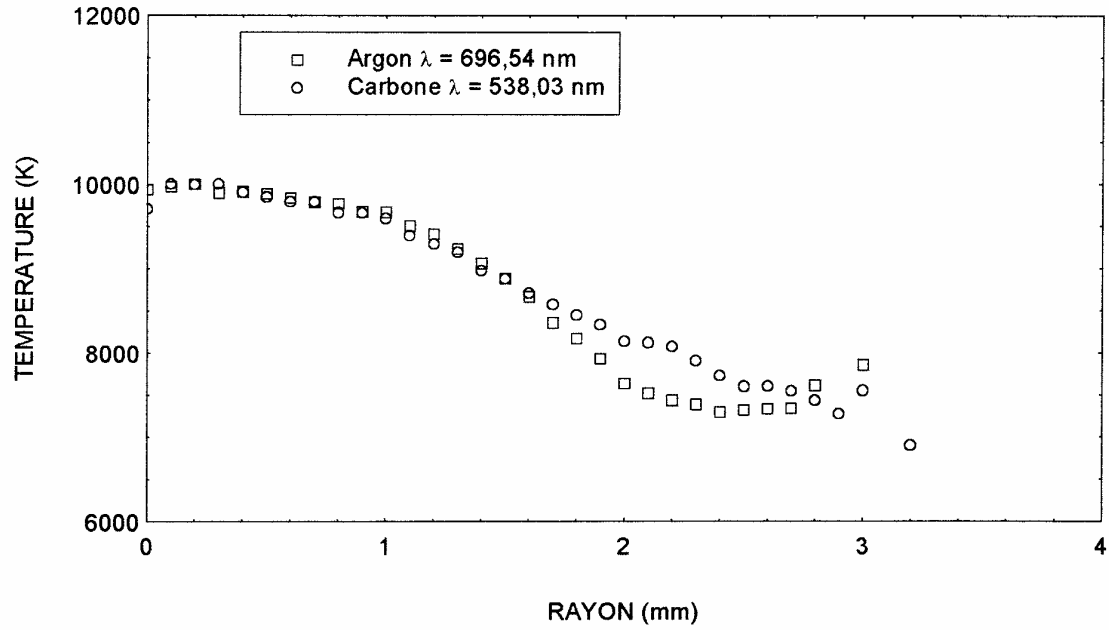


Figure (V.28) : Evolution du profil de température en fonction du rayon pour un pourcentage de 99,1 % Ar, 0,9 % CO_2 .

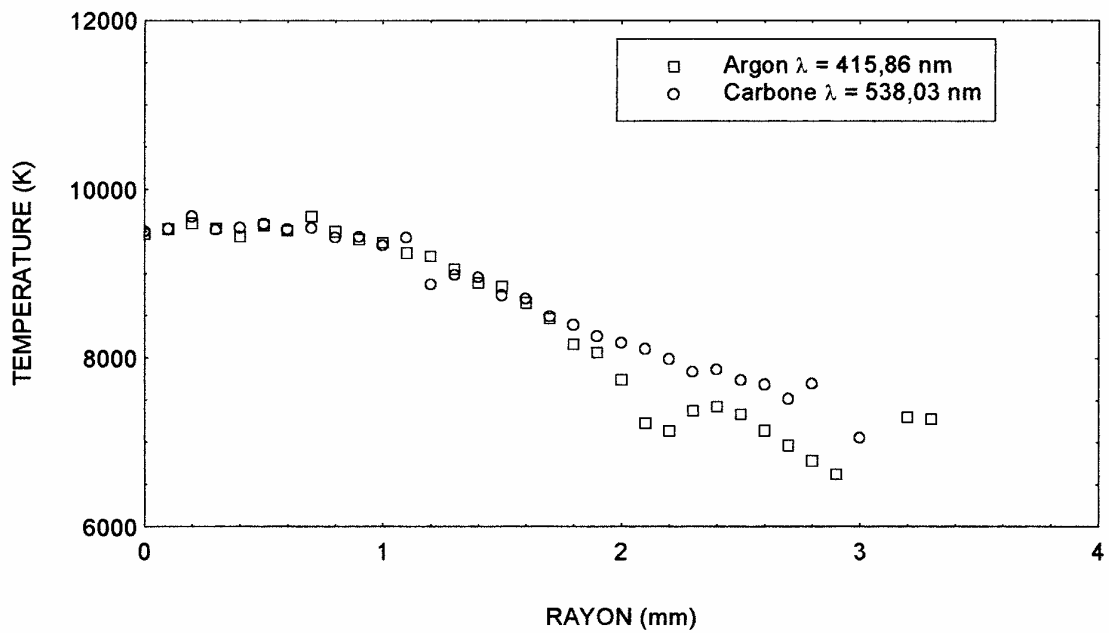


Figure (V.29) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage dans la colonne d'arc de 97,5 % Ar, 2,5 % CO_2 et pour un courant de 20 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

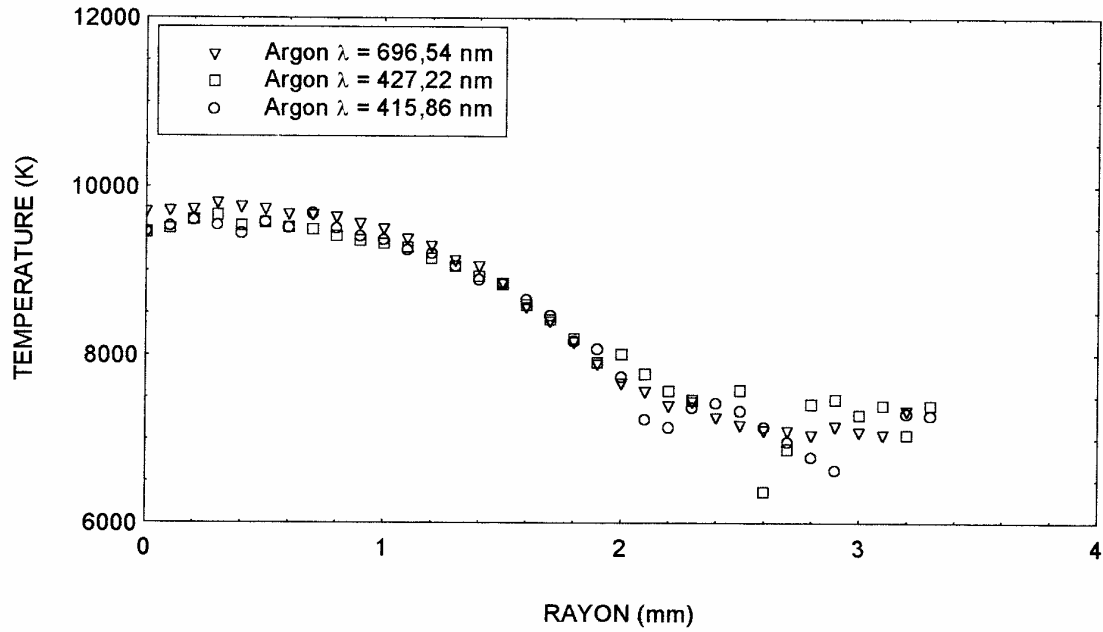


Figure (V.30) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 97,5 % Ar, 2,5 % CO₂ et un courant de 20 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

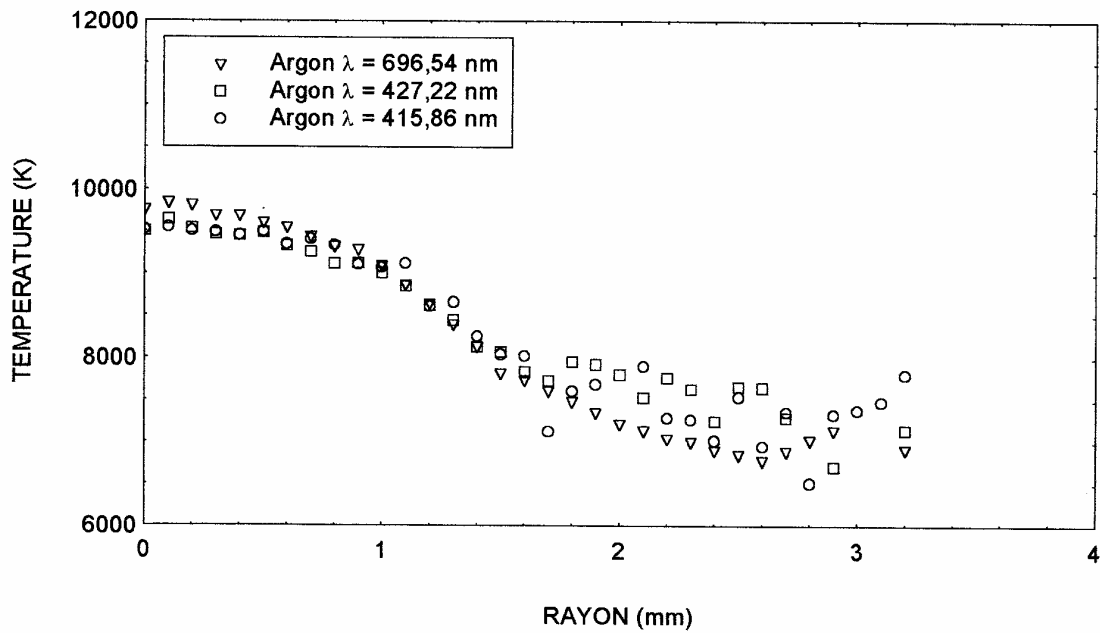


Figure (V.31) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 94,7 % Ar, 5,3 % CO₂ et un courant de 20 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

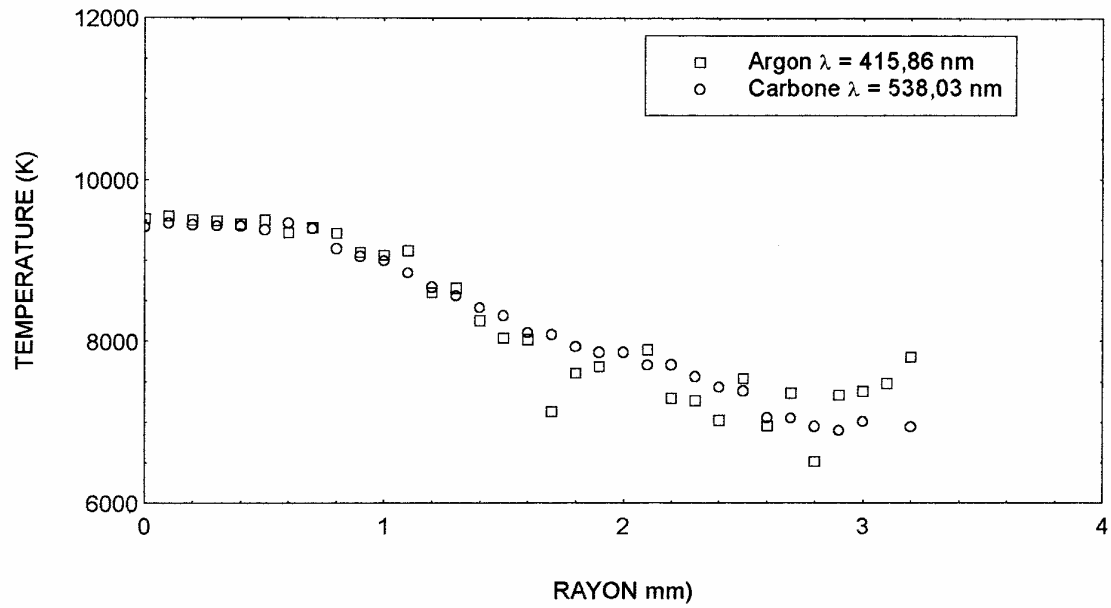


Figure (V.32) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 94,7 % Ar, 5,3 % CO_2 et pour un courant de 20 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

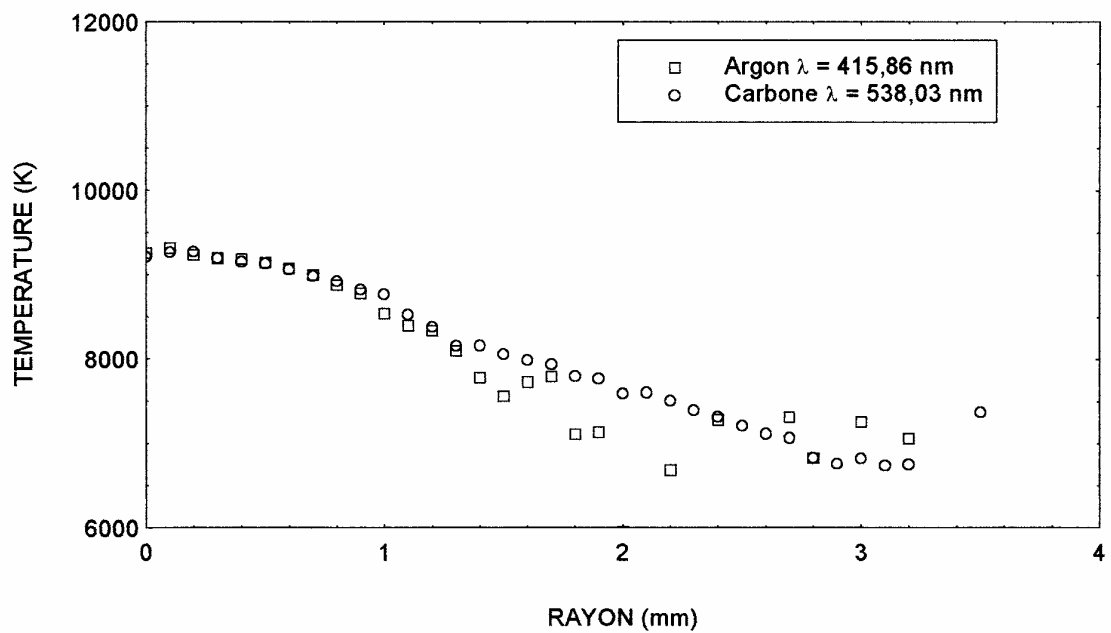


Figure (V.33) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage dans la colonne d'arc de 91 % Ar, 9 % CO_2 et pour un courant de 20 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

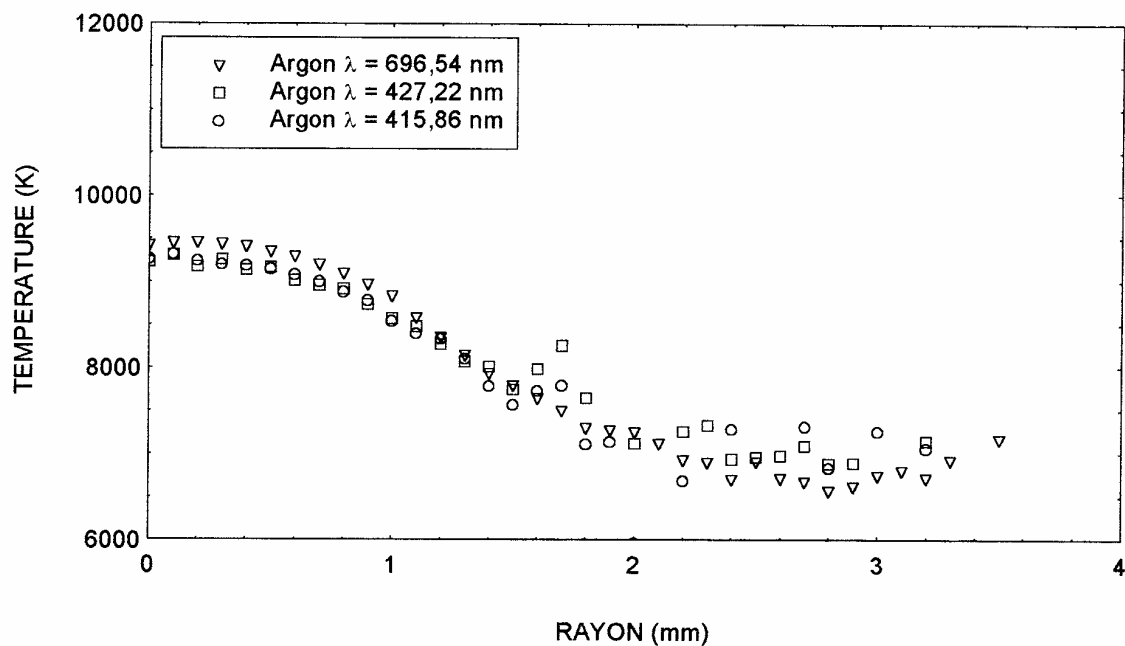


Figure (V.34) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 91 % Ar, 9 % CO₂ et un courant de 20 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar-CO₂ : raies d'argon.

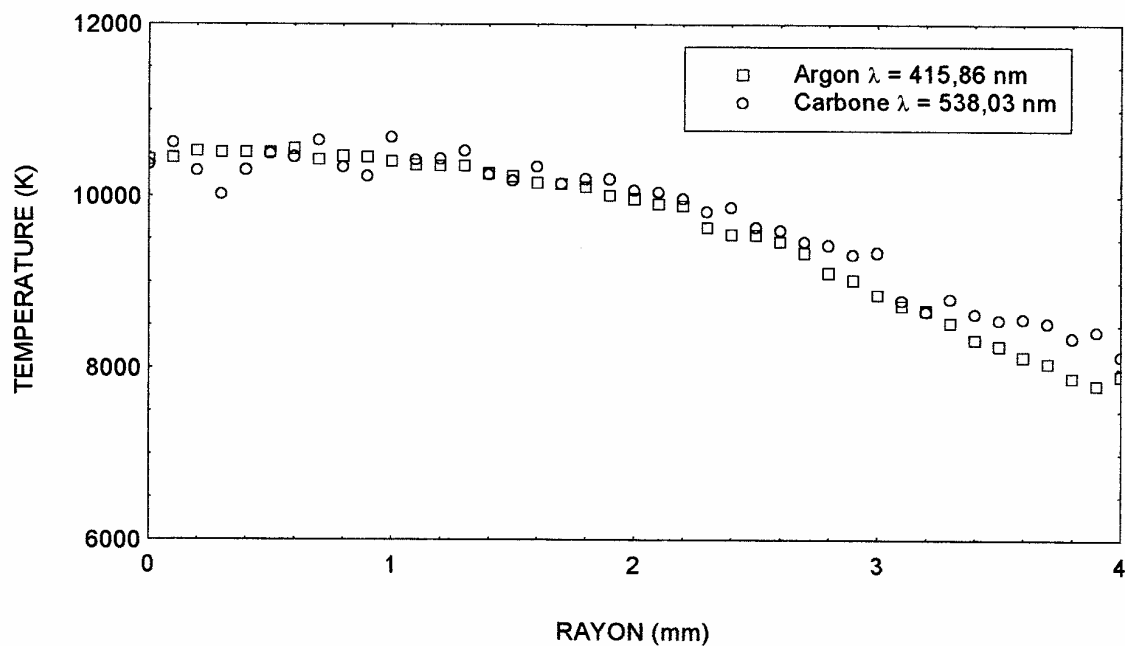


Figure (V.35) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 99,1 % Ar, 0,9 % CO₂ et pour un courant de 40 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

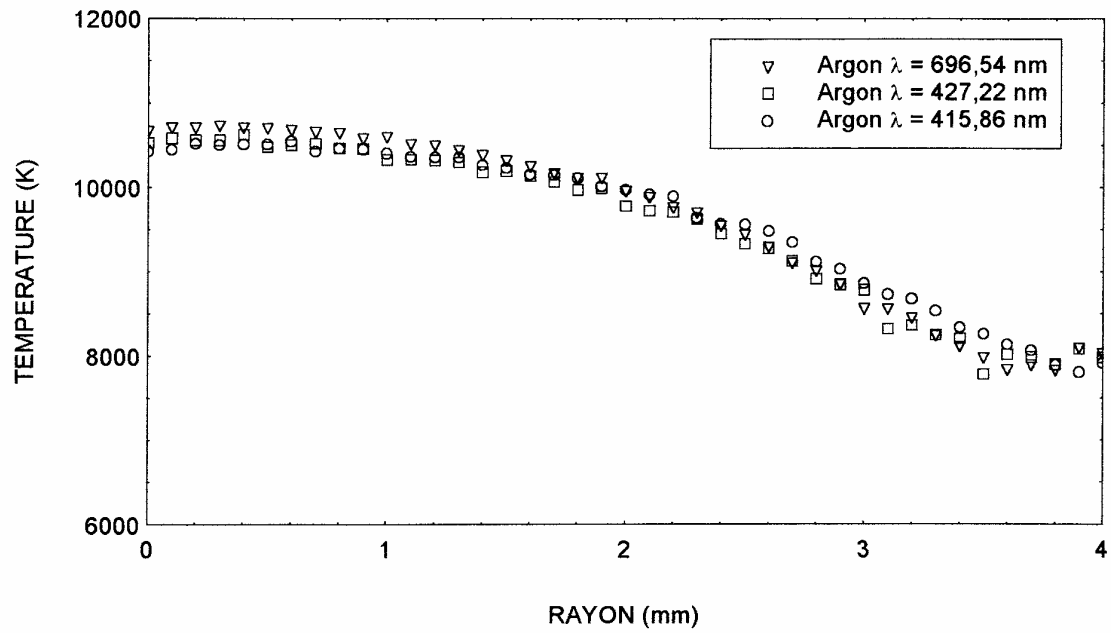


Figure (V.36) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 99,1% Ar, 0,9 % CO_2 et pour un courant de 40 A.

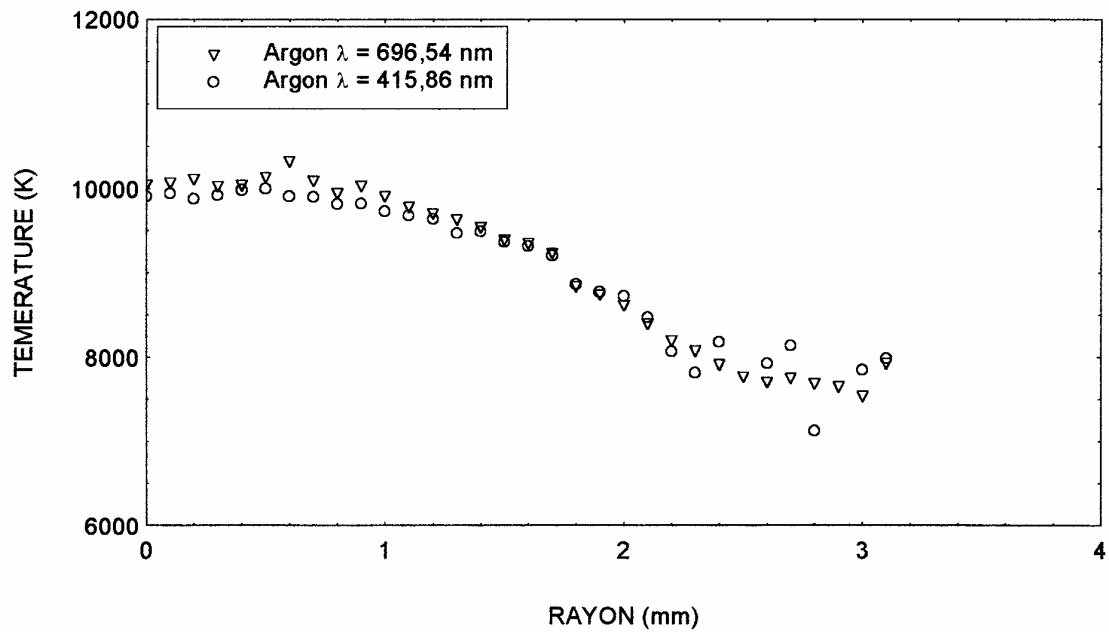


Figure (V.37) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 88 % Ar, 12 % CO_2 et un courant de 40 A, pour différentes longueurs d'onde observées dans le mélange Ar- CO_2 : raies d'argon.

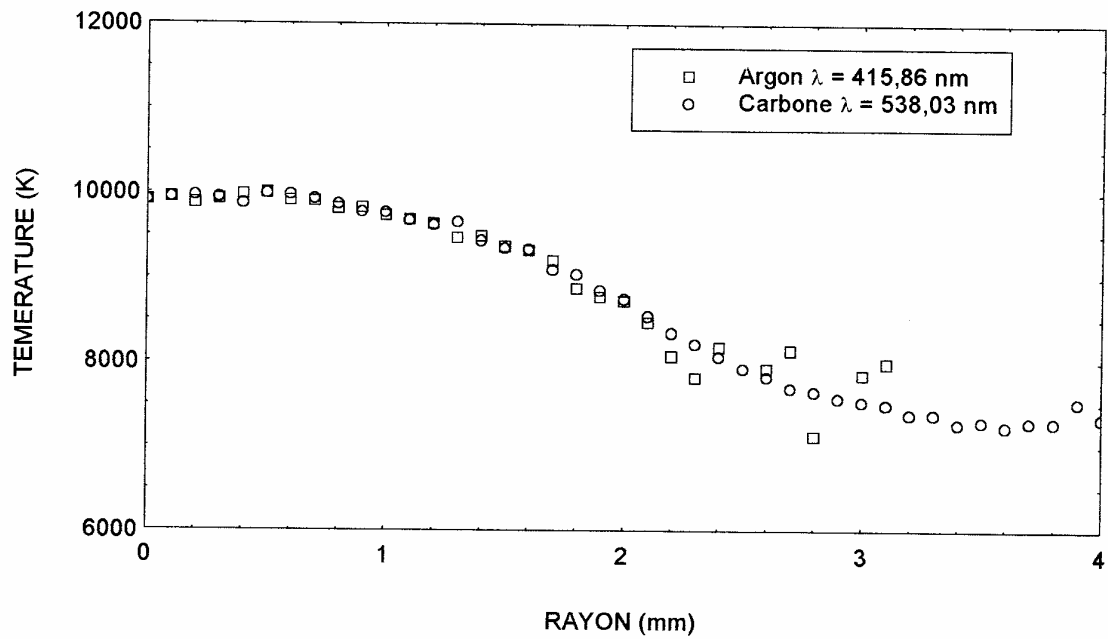


Figure (V.38) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 88 % Ar, 12 % CO₂ et pour un courant de 40 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

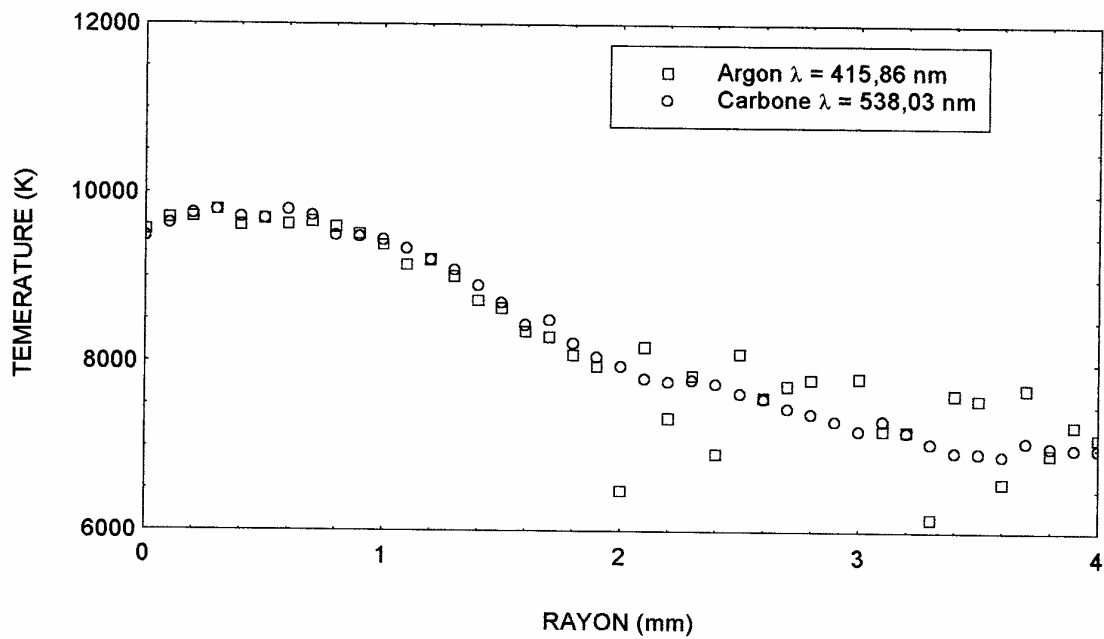


Figure (V.39) : Evolution de la température en fonction du rayon à la pression atmosphérique, pour le pourcentage 75 % Ar, 25 % CO₂ et pour un courant de 40 A. Comparaison entre une raie d'argon et une raie de carbone.

A partir de ces courbes, on constate que lorsqu'on augmente le courant, la température augmente et le rayon de l'arc augmente (figure (V.41 a) ; cette figure montre aussi que dans la zone centrale de l'axe de la décharge, l'augmentation de la température devient moins importante quand l'intensité augmente.

Quand on augmente le courant, le noyau central à température plus élevée est beaucoup plus large avec un gradient de température beaucoup plus faible par rapport à un faible courant ($I = 10 \text{ A}$). Ce phénomène est plus marqué pour les faibles pourcentages.

Le phénomène de la formation du noyau dans l'axe de la décharge de l'arc est alors moins prononcé (figure (V.41 a)) pour les valeurs de courant ($I = 30 \text{ A}$, $I = 40 \text{ A}$). Ce phénomène est plus marqué pour les faibles pourcentages de CO_2 (0,9 % CO_2).

Nous remarquons aussi sur ces figures que quand le courant augmente, le début de palier correspondant à la zone de réaction de dissociation des molécules se déplace vers le bord de la colonne d'arc et s'élargit. Ceci s'explique par la présence de carbone. En effet, quand on augmente le courant, les électrons proviennent pratiquement tous de l'ionisation de l'atome de carbone dans la zone centrale car le carbone a une énergie d'ionisation faible.

Pour les faibles courants, l'augmentation du gradient de température et la diminution du rayon de la décharge s'expliquent par la présence des molécules de CO_2 dans le plasma ; ces dernières ne sont pas complètement dissociées.

En résumé, nous présentons sur la figure (V.43) les résultats de la valeur de la température en deux points du rayon de l'axe : la température sur l'axe de la décharge et celle à 2 mm de l'axe de la décharge, pour un mélange Ar- CO_2 de 99,1 % d'Ar et 0,9 % de CO_2 .

Les valeurs données sur la figure (V.43) correspondent à la moyenne des valeurs déterminées à partir des raies ($\lambda = 415,86 \text{ nm}$, $\lambda = 538,03 \text{ nm}$). Cette figure indique que l'augmentation de la température est liée à l'augmentation du courant et que le gradient de température diminue avec l'augmentation de courant.

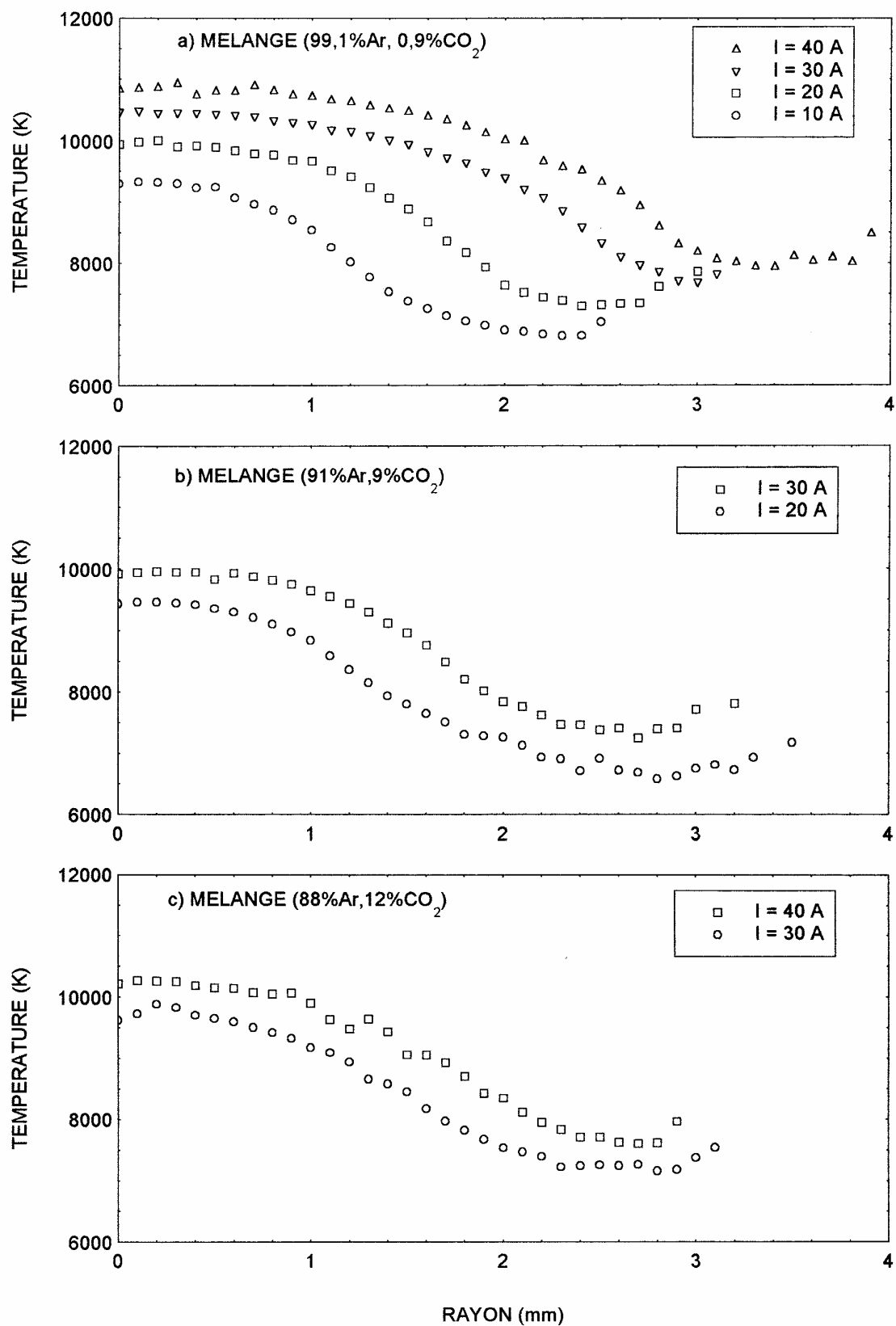


Figure (V.41) : Influence de l'intensité de courant sur le profil de température mesurée avec la raie d'argon $\lambda = 696,54$ nm pour trois différentes valeurs de pourcentage de CO₂ : a) 0,9 % CO₂, b) 9 % CO₂, c) 12 % CO₂.

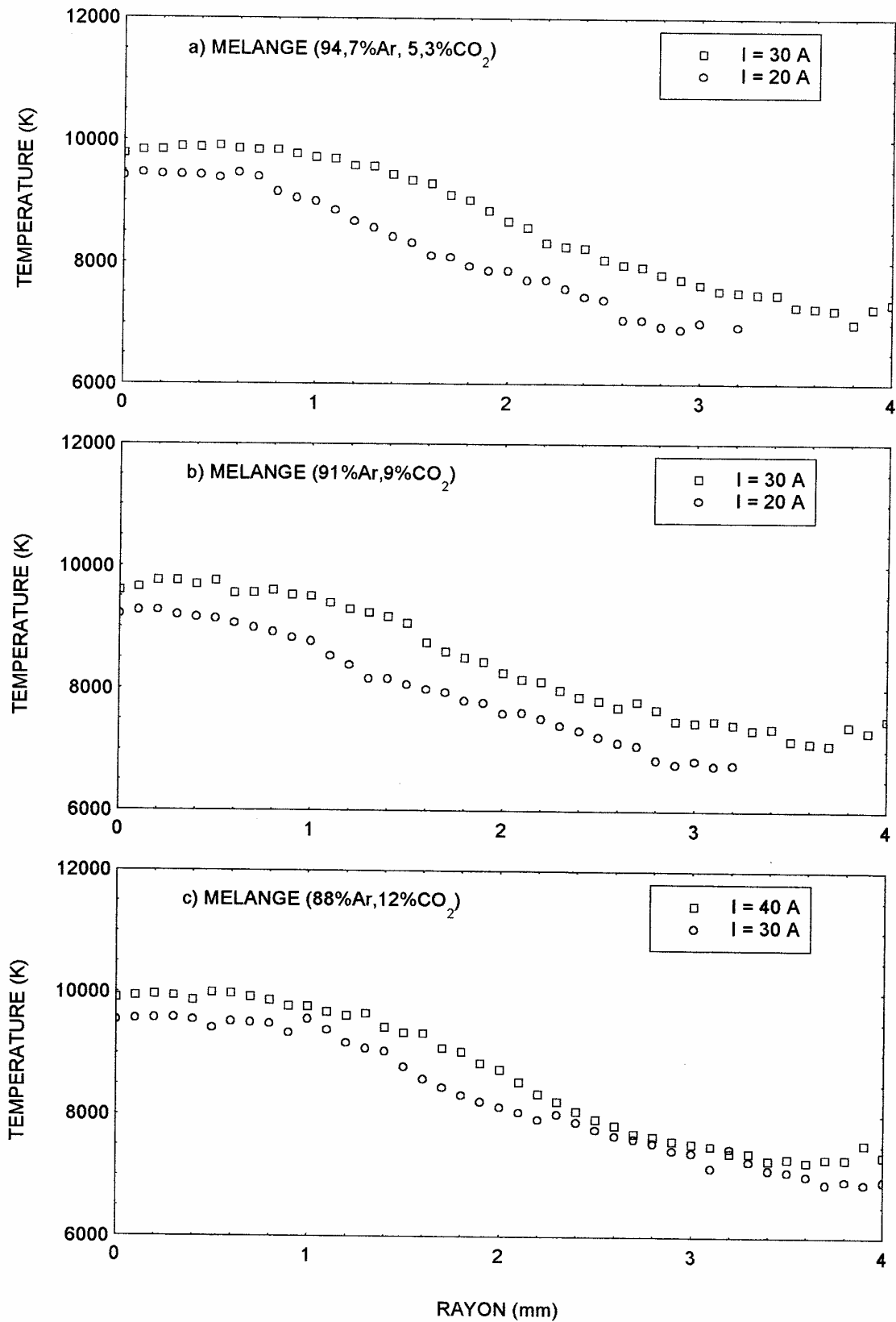


Figure (V.42) : Influence de l'intensité de courant sur les profils de la température mesurée avec la raie, d'une raie de carbone ($\lambda = 538,03 \text{ nm}$), pour trois valeurs différentes de pourcentage de CO₂ : a) 5,3 % CO₂, b) 9 % CO₂, c) 12 % CO₂.

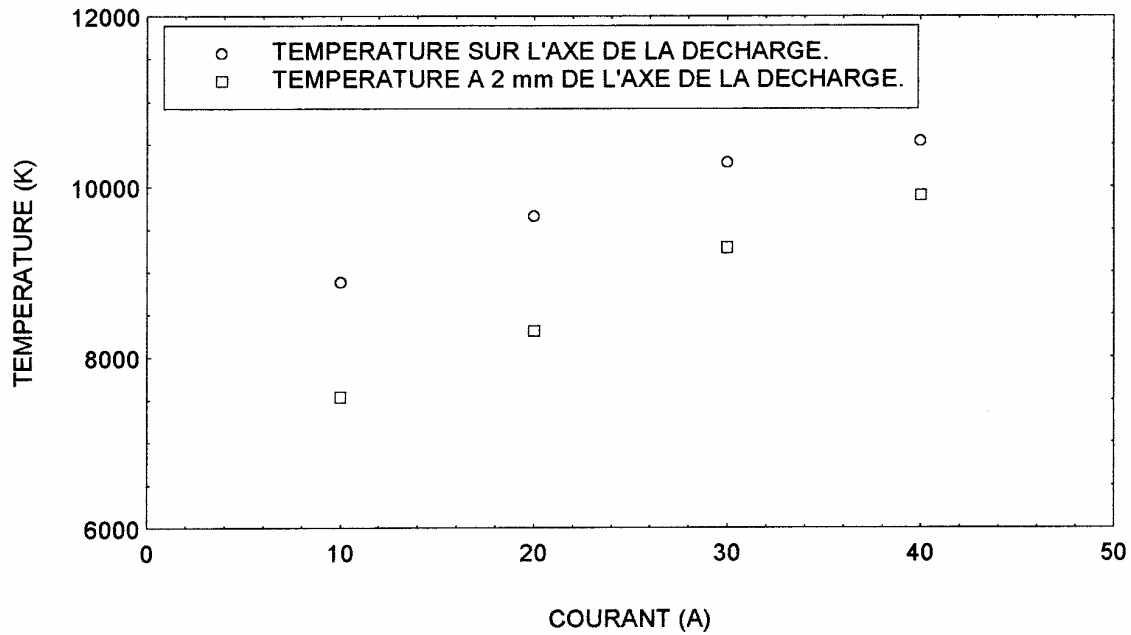


Figure (V.43) : Température en fonction de différentes valeurs du courant pour un pourcentage de 99,1 % Ar, 0,9 % CO₂ à la pression atmosphérique.

V.2.6 Influence de la teneur en CO₂ sur les profils de température d'excitation

Pour étudier l'influence du pourcentage de CO₂ sur les valeurs des températures d'excitation, nous avons tracé les profils de température de la raie d'argon ($\lambda = 696,54$ nm) (figure (V.44)) et de la raie de carbone ($\lambda = 538,03$ nm) (figure (V.45)). Pour faciliter la lecture, nous avons donné les profils de température de ces deux dernières raies sur des figures séparées. Sur ces deux figures, nous présentons pour chaque valeur de courant, l'évolution des profils de température à différents pourcentages recalculés de CO₂.

L'observation de ces figures montre pour chaque courant, la formation d'un noyau central à température plus élevée dans l'axe de la décharge pour les différents pourcentages de CO₂.

Le plus important à noter sur l'analyse de ces deux figures, est que pour chaque valeur de courant donné (les graphes a), b) c) de ces deux figures) quand on augmente le taux de CO₂ les profils de température évoluent dans le sens contraire. C'est-à-dire qu'une augmentation de la proportion de CO₂ entraîne une diminution de la température d'excitation des raies atomiques le long du rayon de la colonne d'arc.

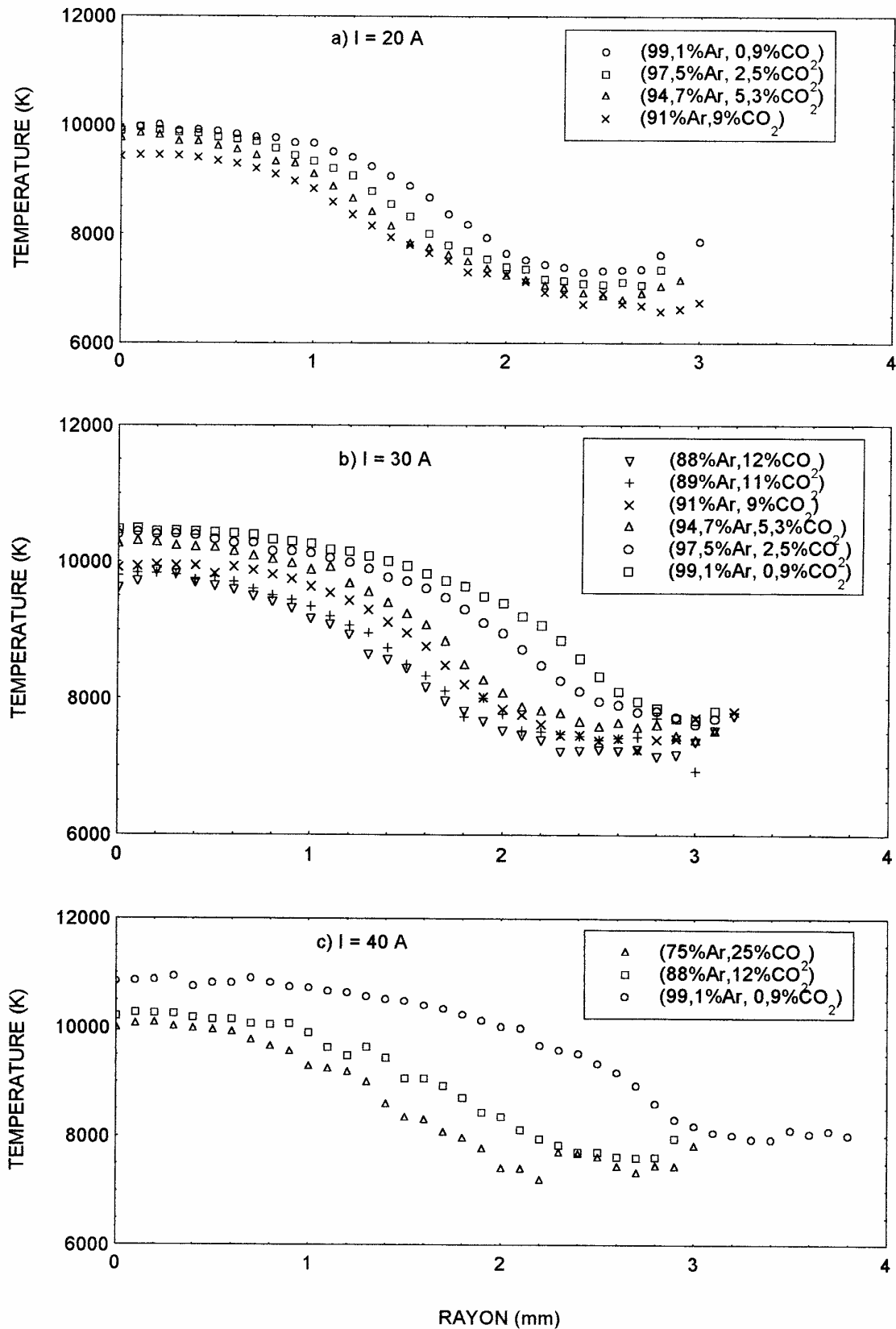


Figure (V.44) : Influence du pourcentage de CO₂ sur la distribution radiale de température d'une raie d'argon ($\lambda = 696,54$ nm), pour trois valeurs de l'intensité du courant a) $I = 20$ A, b) $I = 30$ A, c) $I = 40$ A.

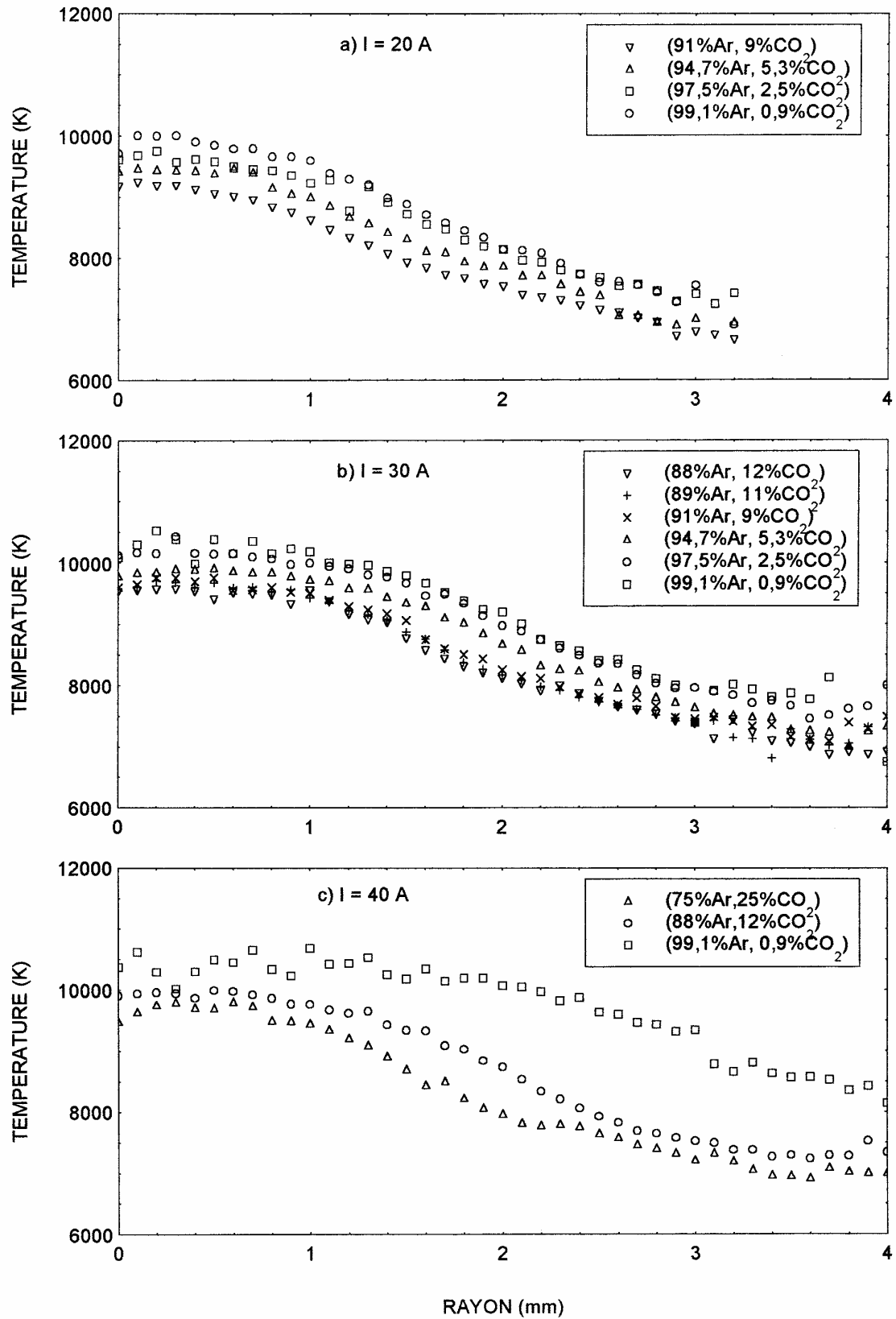


Figure (V.45) : Influence du pourcentage de CO₂ sur la répartition radiale de la température d'une raie de carbone ($\lambda = 538,03$ nm), pour trois valeurs de l'intensité du courant a) $I = 20$ A, b) $I = 30$ A, c) $I = 40$ A.

L'analyse des courbes théoriques de la figure (II.16), montre que lorsqu'on augmente le pourcentage de CO_2 , la concentration de l'argon diminue alors que celle de l'atome de carbone augmente dans l'intervalle de température [5 000 K, 15 000 K].

Quand on augmente le pourcentage de CO_2 , on augmente la quantité de carbone. Comme le carbone possède une énergie de d'ionisation plus faible que celle de l'argon, le nombre d'électrons augmente (la densité électronique augmente) dans le plasma (pour des valeurs de température comprises entre 5 000 K et 14 000 K, figure(II.3b)). L'augmentation de la densité électronique tend à augmenter la conductivité électrique dans les régions externes du plasma ce qui traduit par une augmentation du rayon de conduction électrique et par conséquent la température diminue dans le plasma [V/18]. Ces interprétations confirment les résultats obtenus concernant la diminution de la température (figures (V.44), (V.45)) quand le pourcentage de CO_2 injecté au milieu de la colonne d'arc augmente. La diminution de la température peut aussi s'expliquer par le fait que la molécule de CO_2 possède beaucoup de niveaux d'énergie avec en plus des niveaux de vibrations et de rotations. Pour que cette molécule puisse effectuer ces mouvements de vibration et de rotation elle consomme plus d'énergie, donc il lui reste moins d'énergie pour effectuer la translation. Nous avons vu dans le paragraphe V.2.2 quand on augmente le taux de CO_2 il faut augmenter la puissance pour la faire dissocier, ce qui signifie que dans la zone centrale du plasma, cette molécule capte de l'énergie pour se dissocier et par conséquence la température diminue.

Nous avons signalé que techniquement le pourcentage de CO_2 était limité selon le courant. Au cours de l'expérimentation nous avons constaté que pour un courant donné, quand on augmente le pourcentage de CO_2 au coeur du plasma le diamètre de la colonne d'arc diminue de plus en plus. Ainsi, le plasma est soufflé vers les deux ouvertures latérales de la fenêtre de la visée jusqu'à l'extinction de l'arc ; le plasma au bord de la colonne d'arc prend une couleur verte due peut-être à la présence de C_2 .

Kasakov et al [V/8] expliquent ce phénomène de l'extinction de l'arc par les effets de l'addition d'un gaz dans le plasma, ce qui provoque :

- l'augmentation du gradient de la température,
- la réduction du diamètre de la colonne d'arc,
- la limitation de la résistance de l'amorçage de l'arc,
- l'extinction de l'arc.

En résumé, nous donnons sur la figure (V.46) les températures en deux points, sur l'axe de la décharge et à 2 mm de l'axe en fonction du pourcentage de CO_2 et pour trois courants différents ($I = 20 \text{ A}$, 30 A , 40 A). Les valeurs de la température présentées sur ces courbes correspondent aux valeurs moyennes des différentes raies d'argon et de carbone.

L'analyse de ces figures atteste la diminution des deux valeurs de température au fur et à mesure que l'on augmente le pourcentage de CO_2 . Ainsi, on retrouve les mêmes constatations faites précédemment : pour les faibles pourcentages de CO_2 , le gradient de température est faible (figure (V.46c)) ; et pour un courant donné, le gradient de température augmente quand le pourcentage de CO_2 augmente. Ce phénomène est plus marqué à 40 A.

Nous pouvons déduire de la figure (V.46) que le coeur de l'arc a une température d'excitation comprise entre 7 000 K et 11 000 K. Puisque les processus d'excitation de la plupart des éléments se produisent dans la partie centrale de l'arc, le coeur est d'un intérêt particulier.

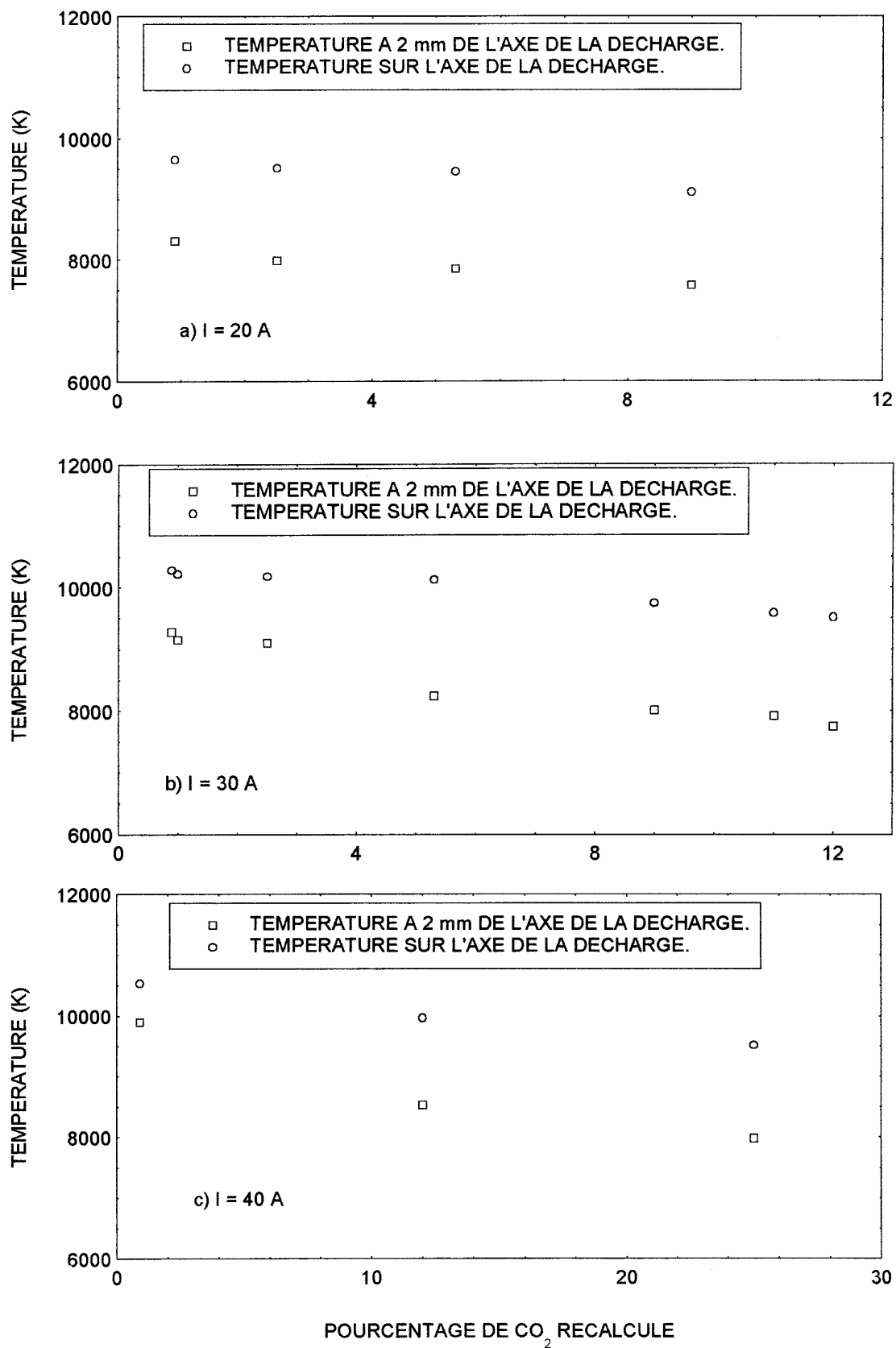


Figure (V.46) : Température en fonction du pourcentage de CO₂ à la pression atmosphérique et pour trois courants différents : a) I = 20 A, b) I = 30 A, c) I = 40 A.

V.3. MESURE DE LA TEMPERATURE ROTATIONNELLE DANS UN PLASMA Ar-CO₂ A PARTIR DES SPECTRES MOLECULAIRES

Notre objectif est de présenter, dans ce paragraphe, les spectres moléculaires expérimentaux observés dans le plasma, et de les comparer à des spectres simulés pour en déduire les températures rotationnelles.

La simulation théorique de ces spectres moléculaires, a été effectuée au laboratoire par H.COITOUT et G.FAURE.[V/19]. Nous donnons aussi un ordre de grandeur de la température du plasma obtenue par la méthode de diagramme de Boltzmann exposée dans le chapitre IV.

Les calculs théoriques de la composition du plasma Ar-CO₂ (figure (II.3b)) montrent la présence de molécules dans le plasma (CO, C₂,).

Nous avons observé l'existence des radicaux C₂ (système de Swan) et CN (système violet) dans le milieu réactionnel du plasma.

Le radical CO est généralement mieux observé dans l'ultraviolet mais au laboratoire on ne peut pas l'observer avec notre appareillage : le matériel que nous utilisons est limité au domaine du visible du proche ultraviolet. Sa concentration augmente quand on élève le débit de CO₂ (figure (II.15)). Ce radical a été étudié par PIAR [V/20].

Les spectres moléculaires sont acquis dans les mêmes conditions expérimentales que les spectres de raies atomiques.

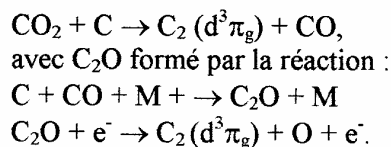
V.3.1. Généralités concernant les spectres moléculaires de C₂ (système Swan) et de CN (système violet)

- Système de Swan de C₂ :

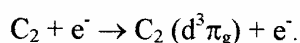
Les différents processus conduisant à la formation du radical C₂ (d³π_g) sont les suivants :

- réactions avec :

CO₂, C₂O [V/21] :

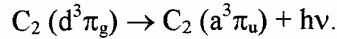


- excitation électronique :



Les espacements des niveaux rotationnels dans C_2 correspondent à des écarts énergétiques voisins de l'énergie thermique du plasma. La durée de vie du radical C_2 ($d^3\pi_g$) a été trouvée de 10^{-6} s environ par H.FINK et H.WELGEJ [V/22] ; elle est très supérieure au temps de collision neutre-neutre. La température rotationnelle peut donc être assimilée à la température du plasma.

Nous observons le spectre émis lors de la désexcitation radiative de l'état C_2 ($d^3\pi_g$) :



La figure (V.47) représente le spectre expérimental, enregistré en effectuant la visée au centre de la colonne d'arc et à deux points équidistants par rapport à l'axe de la décharge, pour le pourcentage recalculé de 75 % Ar, 25 % CO_2 injecté au milieu de la colonne d'arc, à la pression atmosphérique, et pour un courant de 40 A.

Sur la figure (V.48), nous présentons l'intensité des spectres du système de Swan de C_2 (transition 0-0) en différents points de l'arc pour un même courant et un même pourcentage de CO_2 . Il semble que la concentration des molécules de C_2 soit plus importante sur les bords de la colonne d'arc.

- Système violet du CN :

Dans le plasma Ar- CO_2 , l'azote n'existe pas alors qu'au cours de l'expérimentation, nous avons observé le spectre moléculaire du radical CN. Nous pouvons en expliquer l'existence par le fait suivant :

- la colonne d'arc entre en réaction avec l'air ambiant de la salle et sous l'effet des réactions chimiques de dissociation et d'ionisation, on obtient la formation du radical CN. Le plasma ainsi créé est composé du mélange Ar- CO_2 contaminé par l'air ambiant de la salle.

Ceci est confirmé par l'étude de RICH et BERGMAN [V/23] qui montrent que le radical CN est formé directement à partir de la dissociation des molécules CO et de l'azote N_2 . Les mécanismes de réaction de transfert entre les états moléculaires du radical CN ont été étudiés par différents auteurs [V/24], [V/25], [V/26]. Ce radical a été aussi étudiée par G.CERNOGORA [V/27].

La figure (V.49) montre un exemple de spectre expérimental du système violet de CN enregistré, pour un courant de 30 A et un pourcentage recalculé de 9 % CO_2 sur l'axe de la décharge et sur les côtés en deux points équidistants de l'axe de la décharge.

Les mesures des spectres moléculaires ont été réalisées pour différentes valeurs de concentrations de CO_2 et de courants. Cependant, les spectres du radical CN n'ont pu être exploités à cause de la faible intensité et l'utilisation du réseau 600 tr/mm qui ne nous a pas permis d'obtenir des raies rotationnelles bien résolues. La comparaison avec les spectres synthétiques n'a pu être possible.

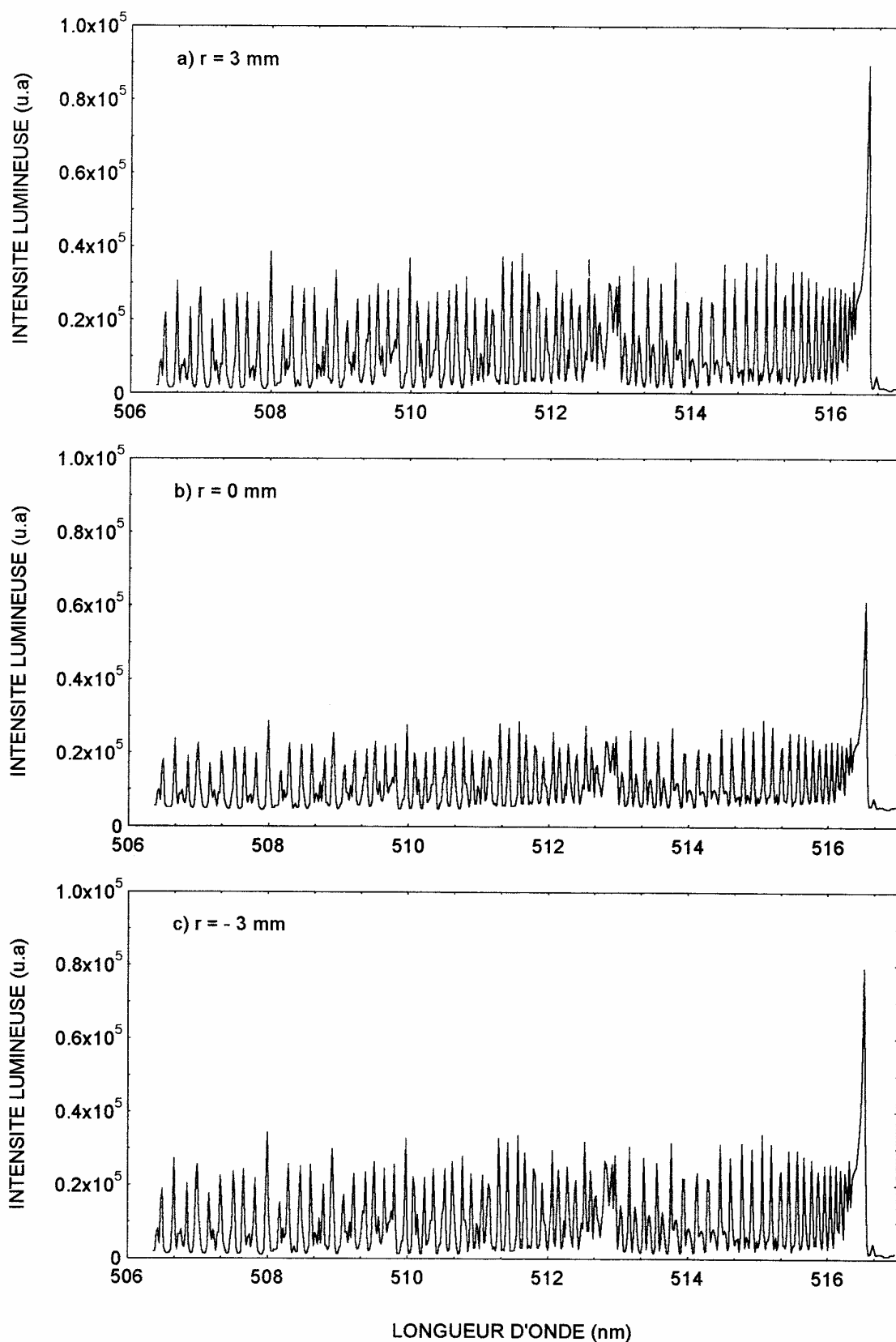


Figure (V.47) : Spectre moléculaire du système de Swan $C_2(0,0)$ réseau 600 tr/mm en trois points différents pour un courant de 40 A et un pourcentage de 25 % CO_2 : a) $r = 3$ mm, b) $r = 0$ mm, c) $r = -3$ mm.

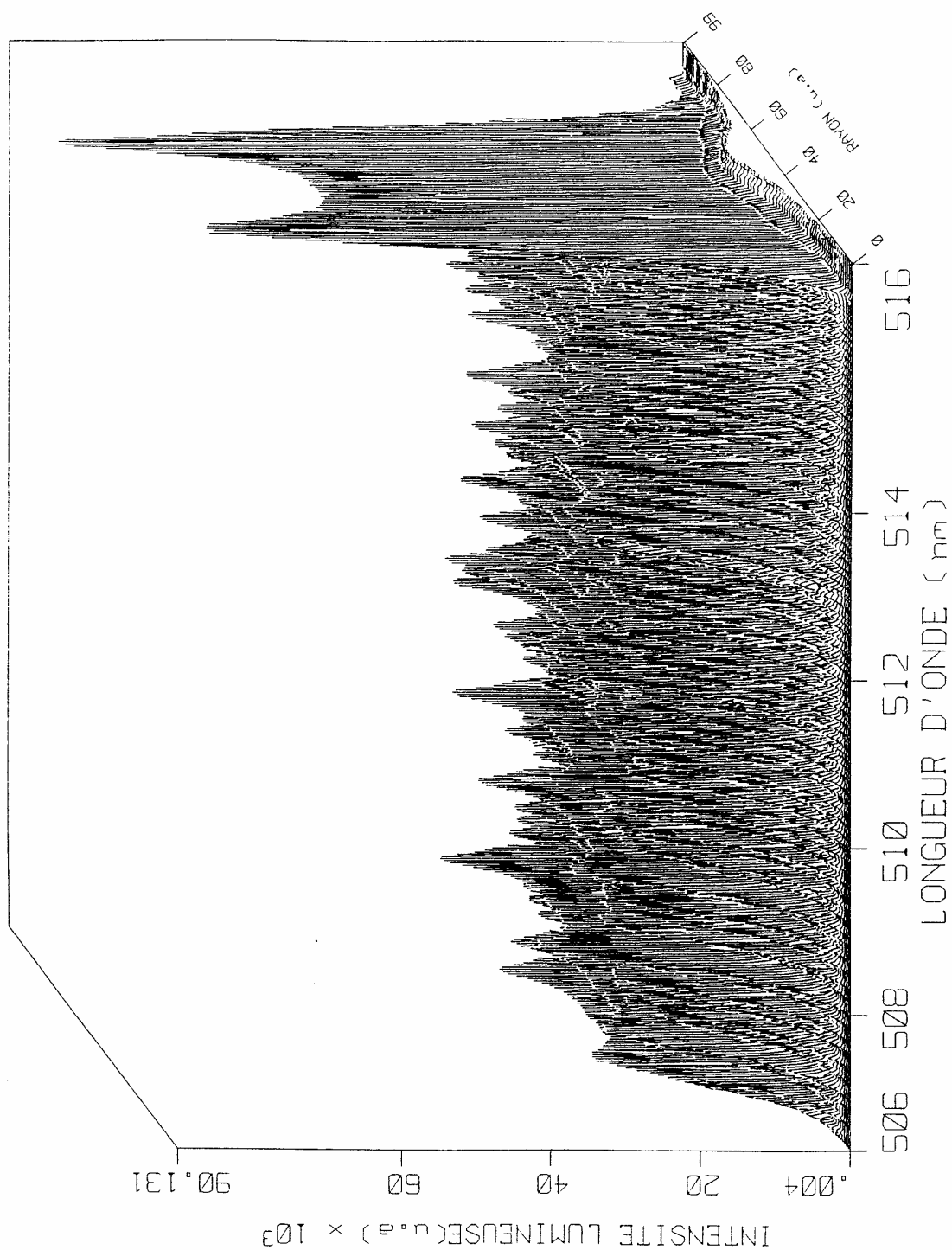


Figure (V.48) : Intensité lumineuse du spectre moléculaire du système de Swan $C_2(0,0)$ en fonction de la longueur d'onde en différents points de la colonne d'arc pour un courant de 40 A et un pourcentage de 25 % de CO_2 .

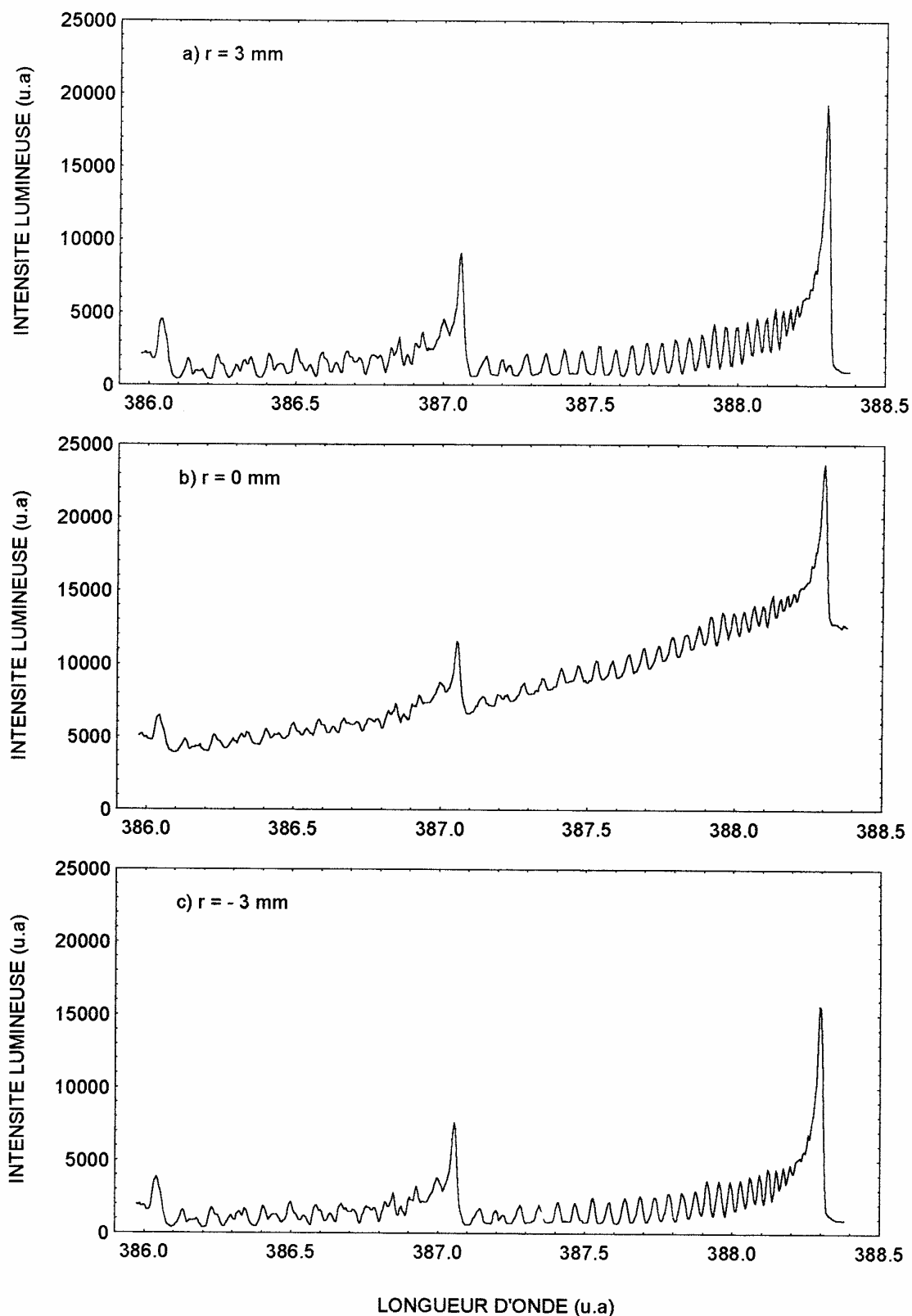


Figure (V.49) : Spectre moléculaire du système violet de CN(0,0) réseau 2 400 tr/mm pour un courant de 30 A et un pourcentage de 9 % CO₂ : a) $r = 3$ mm, b) $r = 0$ mm, c) $r = -3$ mm.

V.3.2. Evaluation de la température rotationnelle à partir des spectres du système de Swan de C₂(0,0) en utilisant le réseau 600 tr/mm

Après avoir traité les données des spectres enregistrés du système de Swan de C₂, et après les avoir comparées point par point avec les spectres simulés, nous avons déterminé la température rotationnelle du spectre de C₂ pour trois pourcentages de CO₂ (5,3 %, 9 %, 12 %) et un courant de 30 A. La comparaison entre les deux spectres enregistrés et ceux simulés a été établie par G.FAURE.

La précision sur les valeurs de ces températures de rotation est de l'ordre de 500 K.

Les résultats de la détermination de la température rotationnelle de C₂ (0-0) en fonction du rayon à la pression atmosphérique sont présentés sur la figure (V.51).

L'analyse de ces courbes présente des analogies entre le comportement de ces profils de température et celui des spectres enregistrés de C₂ (figure (V.48)). On constate que la valeur de la température rotationnelle est pratiquement constante au centre de la colonne d'arc. Cependant, elle est un peu plus élevée au bord de l'arc.

Sur les spectres observés, on note une concentration de C₂ plus forte sur les bords de l'arc qu'au centre ; ceci peut s'expliquer de différentes façons :

a) Le rayonnement émis par la molécule de C₂ au milieu de la colonne d'arc peut-être auto-absorbé. Nous avons calculé le coefficient d'absorption à l'aide de la formule[V/28] :

$$I_T(\lambda) = I_0(\lambda) \times e^{-K(\lambda) \times L} \quad (V-1)$$

avec

$I_T(\lambda)$: intensité transmise,
 $I_0(\lambda)$: intensité incidente émise,
 $K(\lambda)$: coefficient d'absorption,
 L : longueur du milieu absorbant.

Le coefficient d'absorption peut s'écrire :

$$K(\lambda) = K(\lambda_0) \times P(\lambda) \quad (V-2)$$

avec

λ_0 : longueur d'onde au centre de la raie,
 $K(\lambda_0)$: coefficient d'absorption au centre de la raie,
 $P(\lambda)$: profil de la raie d'absorption.

Pour le calcul du profil de la raie d'absorption $P(\lambda)$, dans notre cas, nous devons tenir compte de deux phénomènes d'élargissement des raies spectrales : l'élargissent par effet Doppler (ou mieux d'un profil de Voigt pour tenir compte de la largeur naturelle de la raie) et par effet Stark. Généralement, dans les milieux à températures élevées et où les densités électroniques sont de l'ordre de 10^{14} cm^{-3} à 10^{16} cm^{-3} , ces deux largeurs sont comparables [V/29]. Mais, comme nous voulons juste donner un ordre de grandeur du coefficient d'autoabsorption, nous avons considéré que la valeur de $P(\lambda)$ est approximativement est égale à 1.

Pour le ce calcul du coefficient d'absorption au centre de la raie, nous avons considéré que le profil de la raie est un profil de Voigt et l'expression de $K(\lambda_0)$ est donnée par :

$$K(\lambda_0) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc} \times \frac{\sqrt{4\pi \ln 2}}{\Delta\nu_D} \times f \times n_i \quad (V-3)$$

Avec :

$\Delta\nu_D$ l'élargissement Doppler est défini par :

$$\Delta\nu_D = \sqrt{8k \ln 2} \times \frac{v_0}{c} \times \sqrt{\frac{T_p}{m_p}} \quad (V-4)$$

En introduisant cette relation (V-4) dans l'expression (V-3), le coefficient d'absorption au centre de la raie devient :

$$K(\lambda_0) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc} \times \sqrt{\frac{\pi m_p}{2k}} \times \lambda_0 \times f \times \frac{n_i}{\sqrt{T_p}} \quad (V-5)$$

avec

e la charge de l'électron : $e = 1,6021 \cdot 10^{-19} \text{ C}$,
m la masse de l'électron : $m = 9,1095 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$,
 ϵ_0 la permittivité du vide : $\epsilon_0 = 8,8541 \cdot 10^{-12} \text{ C}^2 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$,
c la vitesse de la lumière : $c = 2,9979 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$,
k la constante de Boltzmann : $k = 1,3806 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$,
f la force d'oscillateur de la transition $C_2 (d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u)$ [V/30] : $f = 0,033$,
 m_p la masse des atomes de la particule considéré : $m_p = 4,0142 \cdot 10^{-26} \text{ kg}$,
 T_p la température de translation des particules,
 n_i la concentration de la particule choisie.

Les valeurs de la concentration de l'espèce considérée n_i et de la température T_p sont déterminées à partir du calcul de la composition du mélange Ar-CO₂ que nous avons développé dans le chapitre II (paragraphe II.3.4).

Dans le système international, le coefficient d'absorption $K(\lambda_0)$ vaut :

$$K(\lambda_0) = 5,6844 \cdot 10^{-8} \times \lambda_0 \times f \times \frac{n_i}{\sqrt{T_p}}$$

Nous avons calculé le coefficient d'absorption pour différentes valeurs de pourcentages de CO₂ ; nous considérons que la longueur du milieu absorbant est de l'ordre de 8 mm. Le tableau (V.2) donne l'ordre de grandeur de $K(\lambda_0)$ et du pourcentage d'intensité transmise au spectromètre.

% de CO ₂	$n_i(\text{m}^{-3})$	$T_p(\text{K})$	$K(\lambda_0)$ en m^{-1}	Intensité transmise en (%)
0,9	$1,0 \cdot 10^{18}$	6300	12	91,0
6,0	$2,0 \cdot 10^{19}$	7000	231	16,0
25,0	$6,6 \cdot 10^{19}$	7200	753	0,3
75,0	$1,6 \cdot 10^{20}$	7400	1800	0,0

Tableau (V.2) : Coefficient d'absorption $K(\lambda_0)$ et ordre de grandeur de l'intensité transmise par le radical C₂ pour différentes valeurs du taux de CO₂ et avec L = 8 mm.

Les valeurs des résultats obtenus (tableau V.2), montrent que l'absorption est d'autant plus importante que la concentration de C_2 est élevée. On en déduit d'après ces résultats que le rayonnement émis par le radical C_2 peut-être auto-absorbé. Cette autoabsorption peut-être due aussi au fait que le spectre de raie que nous observons correspond à une transition entre un état excité supérieur ($d^3\Pi_g$) et l'état inférieur ($a^3\Pi_u$) qui est très proche de l'état fondamental ($\Delta E = 0,1$ eV), figure(V.50) [V/31]. Le phénomène de l'autoabsorption devient plus important si le niveau inférieur est plus peuplé [V/32]. Pour éviter ce phénomène, il faudrait choisir d'autres bandes dont le niveau inférieur ne soit ni l'état fondamental ni un niveau proche de l'état fondamental.

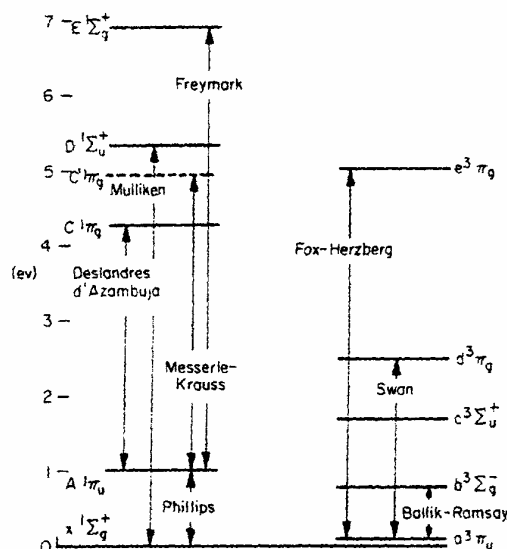


Figure (V.50) : Représentation des niveaux d'énergie de la molécule de C_2 (Système de Swan) déterminées par [V/31].

b) Pour $I = 40$ A, nous n'avons pas détecté de particules chargées (Ar^+ , C^+ ,...) au cours de l'expérimentation. Les particules chargées, par exemple C^+ , sous l'effet de la diffusion ambipolaire parfaite [V/33], se recombinaient sur la périphérie de l'arc.

c) Cela peut provenir du fait que nous n'avons pas effectué d'inversion d'Abel pour évaluer les températures.

Sur la courbe de la figure (V.51) qui correspond à un faible pourcentage de CO_2 (5,3 %), les valeurs de la température T_{rot} sur l'axe de la décharge sont de l'ordre de 6 000 K alors qu'elles atteignent 7 000 K au bord de part et d'autre de la colonne d'arc.

Pour un pourcentage plus élevé de CO_2 (12 %), ces valeurs sont de 6 500 K sur l'axe de la décharge et de l'ordre de 7 500 K sur les deux bords de la colonne d'arc.

Si on compare ces résultats à ceux des températures d'excitation pour un même pourcentage de CO_2 (12 % CO_2) et pour un courant de 30 A (tableau (V.3)), nous constatons que l'écart entre ces deux valeurs de température est significatif surtout au milieu de la colonne d'arc. Pour $r = 4$ mm, la température rotationnelle est supérieure à la température d'excitation ; dans cette zone de l'arc, les intensités lumineuses étant très faibles, les incertitudes sur les températures sont grandes.

Il est donc possible que le plasma soit hors équilibre thermodynamique ou que ce soit dû aux remarques précédentes :

- autoabsorption du C_2 ,
- pas d'inversion d'Abel effectuée.

	T(r = 0 mm)		T(r = 2 mm)		T(r = 3 mm)		T(r = 4 mm)	
% recalculé	T _{ext}	T _{rot}	T _{ext}	T _{rot}	T _{ext}	T _{rot}	T _{ext}	T _{rot}
5,3	9800	6100	8600	6600	7600	6600	7400	7000
12	9600	6600	8000	6600	7400	6600	7000	7600

Tableau (V.3) : Comparaison entre la température d'excitation (raie de carbone, $\lambda = 538,03$ nm) et la température de rotation (C_2 (système de Swan), $\lambda = 516,52$ nm) en différents points de la colonne d'arc pour un courant de 30 A et pour deux pourcentages de CO_2 .

Les mesures de températures rotationnelles pour les spectres du radical CN sont nécessaires pour vérifier si on a les mêmes valeurs de températures rotationnelles pour ces deux radicaux.

Nous avons donc dû faire une série de mesures avec le réseau 2 400 tr/mm pour que les bandes rotationnelles du radical CN soient bien résolues et exploitables.

V.3.3. Evaluation de la température rotationnelle à partir des spectres moléculaires de C_2 et CN en utilisant le réseau 2 400 tr/mm

En utilisant le réseau 2 400 tr/mm, nous déterminons de façon similaire les profils de température rotationnelle des spectres moléculaires du système de Swan C_2 et du système violet du radical CN pour les comparer entre eux d'une part et d'autre part avec les valeurs des températures d'excitation des raies atomiques.

V.3.3.1. Evaluation de la température rotationnelle par la méthode de simulation numérique des spectres moléculaires

Nous avons déterminé la température rotationnelle en chaque point de l'arc par la même méthode de comparaison entre les spectres simulés et les spectres enregistrés que précédemment en utilisant le réseau 2 400 tr/mm. Nous représentons sur les figures (V.52), (V.53) les profils de températures de rotation de la molécule de C_2 du système de Swan (transition $v' = 0 \rightarrow v'' = 0$, $\lambda = 516,52$ nm) et de la molécule de CN du système violet (transition $v' = 0 \rightarrow v'' = 0$, $\lambda = 388,3$ nm) pour trois différents pourcentages de CO_2 (5,3 %, 9%, 12 %) et un courant de 30 A.

La figure(V.53) montre que dans le cas du CN, de fortes fluctuations apparaissent qui sont dues à un fort fond continu en particulier dans la zone centrale (figure V.49.b) et des intensités de raies trop faibles. Les incertitudes sur la température rotationnelle sont élevées dans ce cas. Le CN est formé à partir de l'azote de l'air ambiant et ne pénètre que peu dans le centre de la décharge (figure V.54). Cependant les ordres de grandeurs pour les températures rotationnelles sont comparables pour le C_2 et le CN avec ce réseau : de l'ordre de 6 000 K.

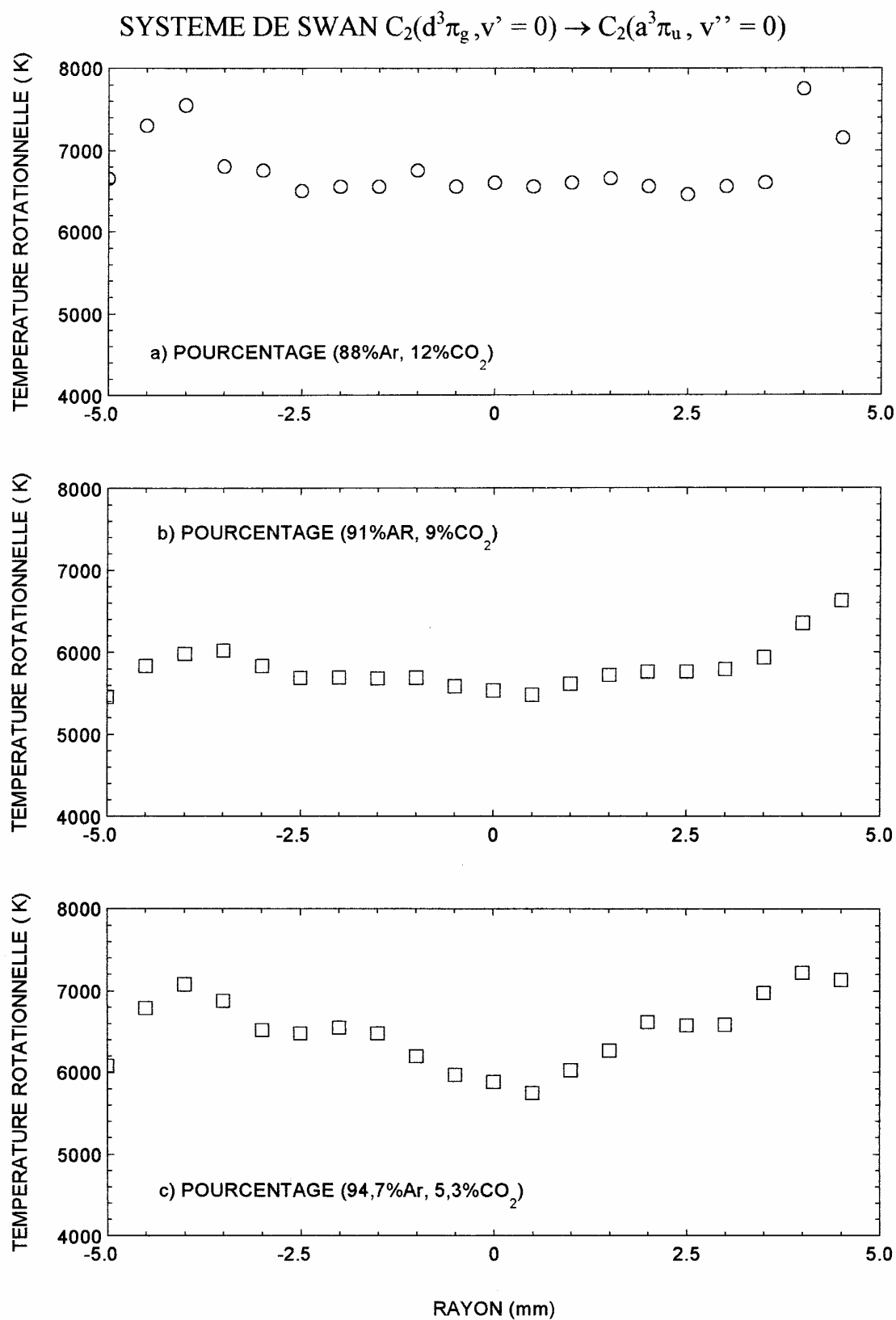


Figure (V.51) : Evolution de la température rotationnelle de la molécule de C_2 , en fonction du rayon, déterminée par comparaison entre les spectres enregistrés et les spectres simulés à la pression atmosphérique, $I = 30$ A.

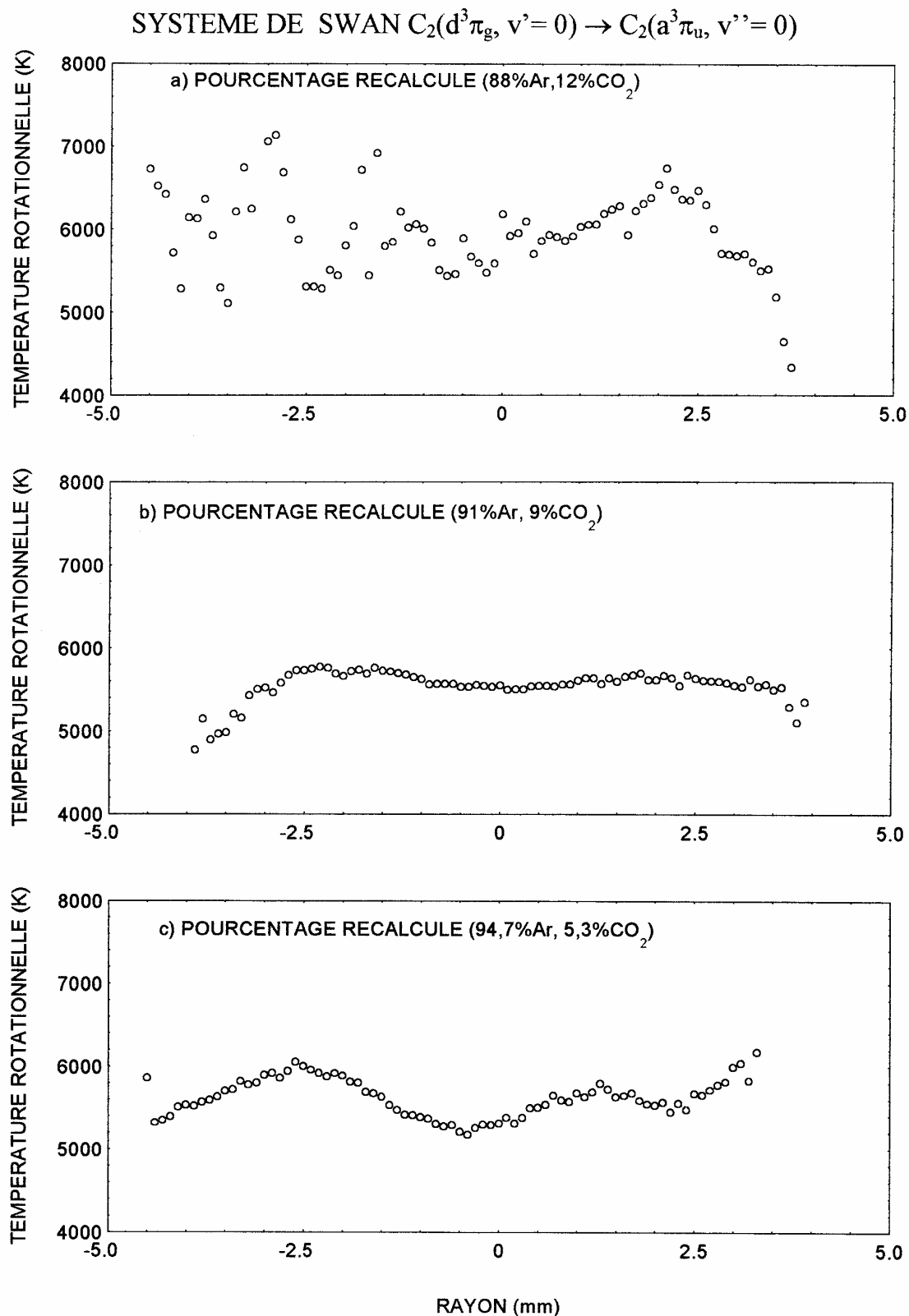


Figure (V.52) : Profil de la température rotationnelle de la molécule de C_2 en fonction du rayon, déterminé par comparaison entre les spectres enregistrés réseau 2 400 tr/mm et les spectres simulés à la pression atmosphérique, pour un courant de 30 A : a) 12 % CO_2 , b) 9 % CO_2 , c) 5,3 % CO_2 .

SYSTEME VIOLET DE CN(0,0)

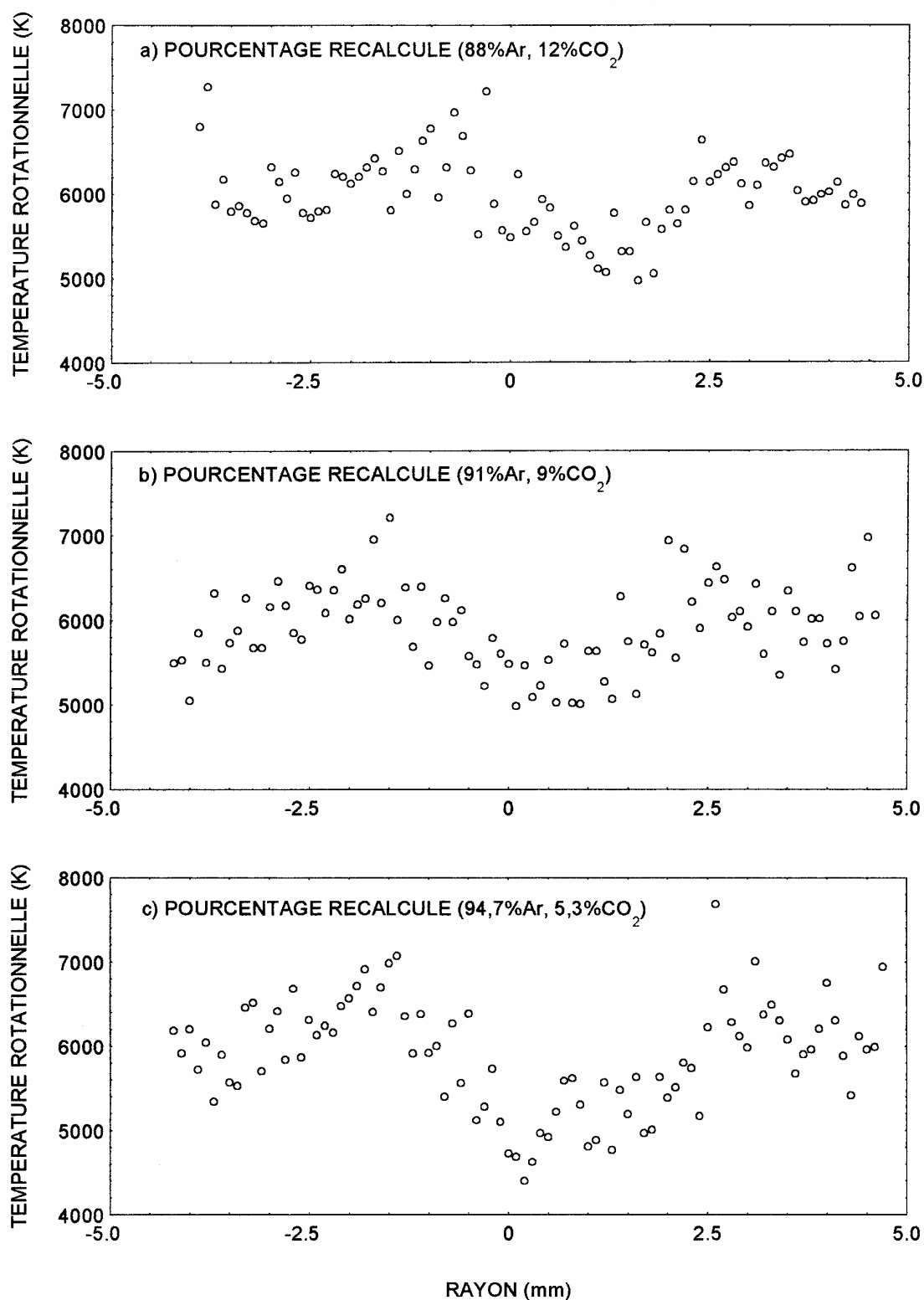


Figure (V.53) : Profils de la température rotationnelle de la molécule de CN en fonction du rayon, déterminés par comparaison entre les spectres enregistrés et les spectres simulés à la pression atmosphérique, pour un courant de 30 A réseau 2 400 tr/mm : a) 12 % CO₂, b) 9 % CO₂, c) 5,3 % CO₂.

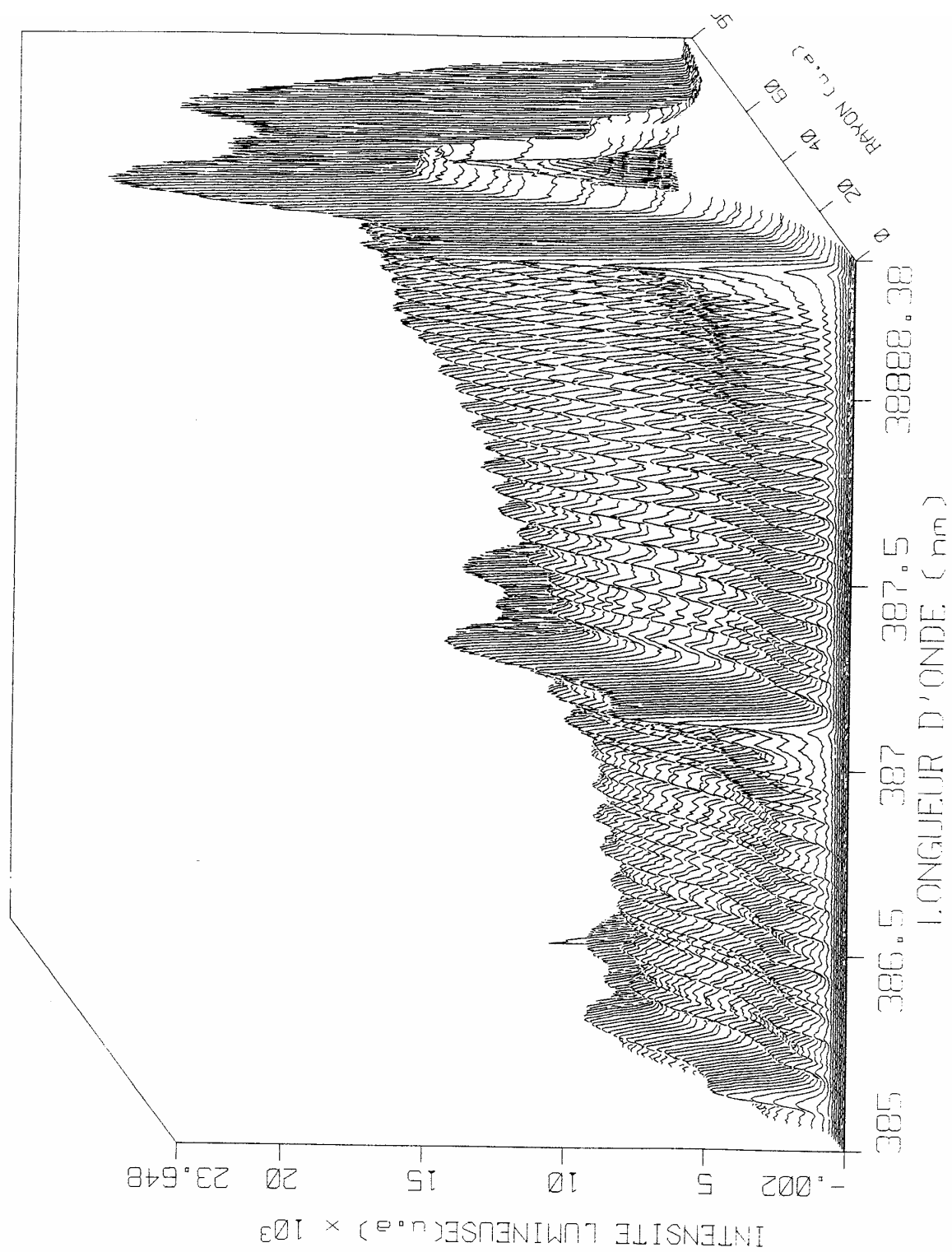


Figure (V.54) : Enregistrement de l'intensité lumineuse du spectre moléculaire du système violet CN (0,0) en fonction de la longueur d'onde le long de la colonne d'arc pour un courant de 30 A et un pourcentage de 9 % de CO₂.

V.3.3.2. Détermination des températures rotationnelles par la méthode de diagramme de Boltzmann

Comme nous avons signalé au paragraphe (IV.4.1) on peut déterminer les températures rotationnelles par la méthode du diagramme de Boltzmann à partir des spectres moléculaires si les niveaux rotationnels sont en équilibre de Boltzmann.

La figure (V.55) présente un spectre moléculaire de C_2 (système de Swan) enregistré en indiquant les dix pics que nous avons choisis, pour un courant de 30 A et un pourcentage de 9 % de CO_2 . Ces dix points sont choisis de telle façon que la transition rotationnelle de la branche P ne se chevauche pas avec celle de la transition rotationnelle de la branche R, figure (V.55).

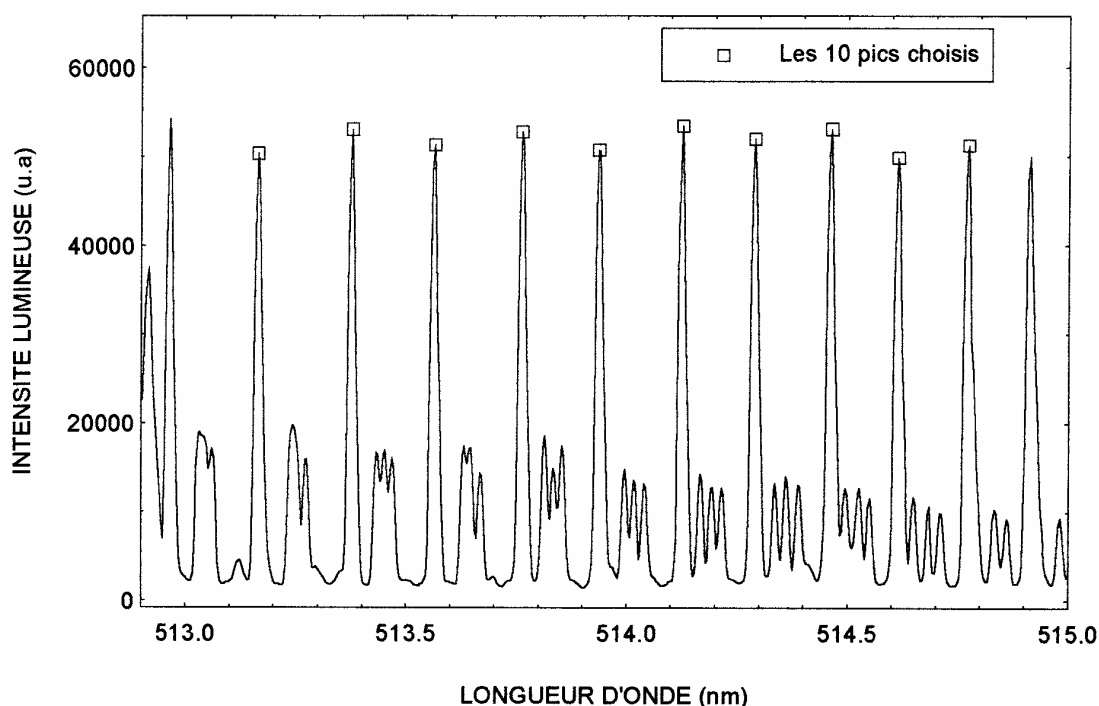


Figure (V.55) : Représentation des dix pics choisis de la branche P pour un courant de 30 A et un pourcentage de 9 % de CO_2 recalculé.

Pour déterminer la température rotationnelle à partir du diagramme de Boltzmann (figure (V.55)), nous avons considéré que les niveaux du rotation sont peuplés de la même façon sur les trois sous niveaux de la branche P et supposé que pour les trois sous branches P les probabilités rotationnelles sont identiques. Sur la figure (V.56) nous avons tracé le $\ln \left(\frac{I(J', J'') \times \lambda^4}{S(J', J'')} \right)$ en fonction de l'énergie de rotation $F_v(J')$; la courbe obtenue est de pente $\left(\frac{-hc}{k T_r} \right)$, on en déduit la température rotationnelle (T_r). L'énergie de rotation $F_v(J')$ et le facteur de Höln-London ont été calculés par G.FAURE.

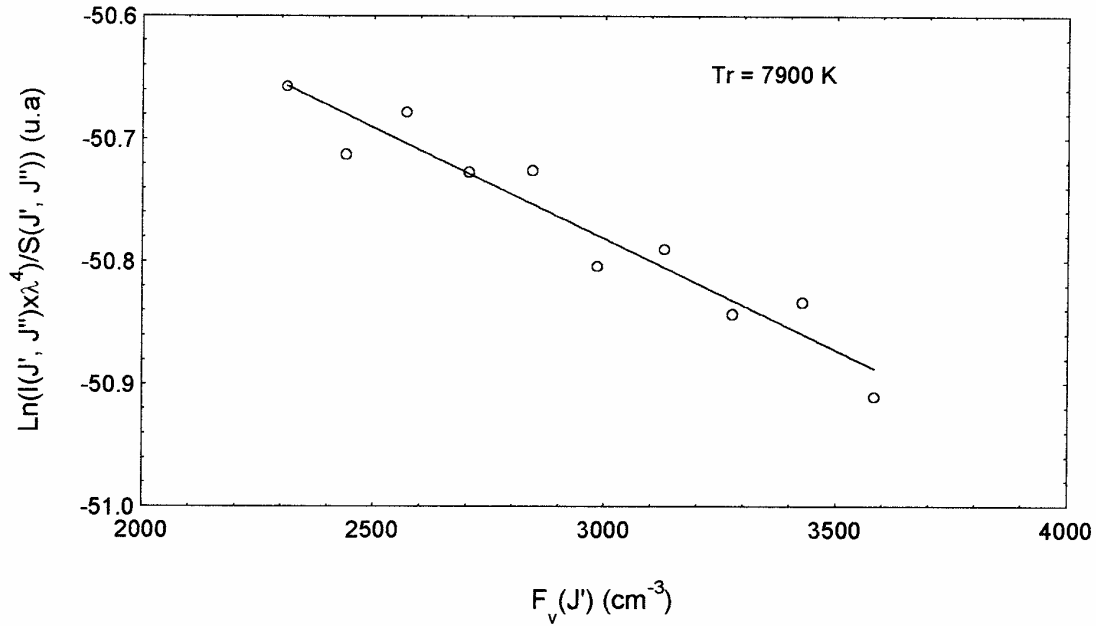


Figure (V.56) : Représentation du diagramme de Boltzmann des dix pics choisis de la branche P.

Les résultats du profil radial de la température rotationnelle obtenus par cette méthode pour un courant de 30 A et trois pourcentages différents de CO_2 (5,3 %, 9 %, 12 %) sont donnés sur la figure (V.57).

L'analyse des résultats obtenus en utilisant la méthode du diagramme de Boltzmann montre que les valeurs de la figure (V.57) ne sont pas comparables à ceux obtenus par la méthode numérique de simulation. Les longueurs d'onde des différentes sous branches P sont très proches, de plus la résolution du spectre ne permet pas de les discerner. Pour pouvoir appliquer la méthode du diagramme de Boltzmann nous avons supposé que les trois sous niveaux de rotation sont peuplés de la même manière et que les probabilités de transition rotationnelle sont identiques, approximation qui n'est pas faite dans le cas des spectres simulés où les calculs sont faits branche par branche. D'autre part, une petite variation de la pente entraîne un gros écart sur la température qui peut atteindre jusqu'à 1 000 K, si les points utilisés sont très dispersés. En conséquence, la méthode de Boltzmann ne donne qu'un ordre de grandeur très approché.

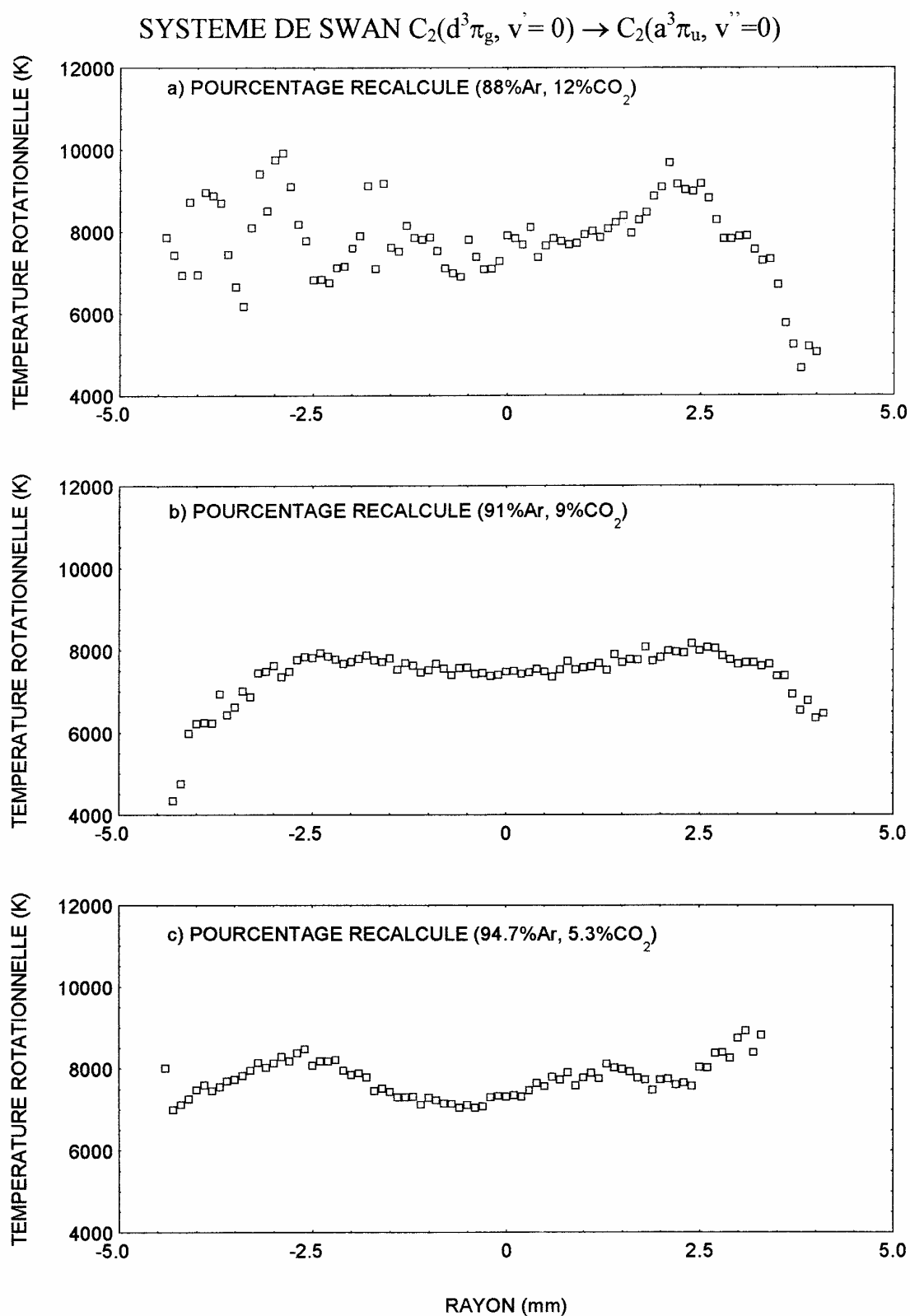


Figure (V.57) : Profil de température rotationnelle de la molécule de C_2 en fonction du rayon, déterminé par la méthode de diagramme de Boltzmann à la pression atmosphérique, pour un courant de 30 A : a) 12 % CO₂, b) 9 % CO₂, c) 5,3 % CO₂.

V.4. CONCLUSION

Nous avons signalé précédemment qu'on ne pouvait déduire si le plasma est, ou n'est pas, hors équilibre thermique avant de connaître les résultats des températures de rotation des deux molécules diatomiques C_2 et CN. Les valeurs de la température de rotation T_r de C_2 et de CN ont même ordre de grandeur. Les mesures faites avec le réseau 2 400 traits/mm nous ont permis de confirmer ce résultat. Mais pour effectuer la comparaison entre les températures rotationnelles et d'excitation, nous nous sommes basés sur les résultats obtenus avec le réseau 600 traits/mm.

Si on compare les profils de température de rotation pour les différents pourcentages de CO_2 et pour le courant de 30 A avec les profils de température d'excitation des raies atomiques d'argon et des raies de carbone obtenus dans les mêmes conditions expérimentales, on constate que la répartition radiale de ces deux profils de température a un comportement très différent, et que l'écart entre ces deux grandeurs est important sur l'axe de la décharge mais moins sur les bords ($r = 4$ mm).

Dans la zone centrale, cet écart peut s'expliquer par le fait que le C_2 se concentre à la périphérie du plasma et peut présenter une autoabsorption importante ; on peut supposer que les résultats obtenus ne correspondent qu'à la périphérie du plasma. Les résultats concernant le CN dans cette zone centrale sont trop perturbés par un fort fond continu.

Dans le tableau (V.3) nous donnons l'ordre de grandeur de cet écart pour un courant de 30 A et pour deux pourcentages de CO_2 recalculés.

L'écart entre ces deux grandeurs (T_{ext} , T_{rot}) reste à expliquer; il nous semble qu'il peut être dû à différentes causes :

- autoabsorption de C_2 ,
- l'inversion d'Abel n'est pas effectuée,
- le plasma n'est pas homogène donc les phénomènes de diffusion seraient importants.

BIBLIOGRAPHIE

- [V/1] CHEMINAT B.,
Doctorat ès-Sciences Physiques, n° 311 (1983)
Université de Clermont-Ferrand.
- [V/2] ABBAOUI M.,
Doctorat de 3^{ième} cycle, n° 22, Université de Clermont-Ferrand (1986),.
- [V/3] EL-HAMIDI L.,
Doctorat d'Université, n° 1675, Université de Toulouse (1994).
- [V/4] VACQUIE S., BACRI J., CAPDEROU M., DINGUIRARD J.P., GOMES A.M.,
J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, Vol. 13, pp. 1333-1342,
Pergamon Press (1973).
- [V/5] BOTT J.F.,
The Physics of Fluids, Vol. 9, n° 8 (1966) pp. 1540-1547.
- [V/6] KURSKOV A.A., ERSKOV-PAVLOV E.A., CHVYALEVA L.V.,
ISPC-8, Tokyo, 1987, pp. 431-436.
- [V/7] BACRI J., GOMES A.M.,
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol. 10 (1977) pp. 2165-2217.
- [V/8] KASAKOV A.I., GOLD.D.FARB V.M.,
Teplofizika Vysokikh Temperature, Vol. 17, n° 5 (1979) pp. 928-935.
- [V/9] BRUGEAT S.,
Rapport de D.E.A., 1996, Université de Clermont-Ferrand.
- [V/10] VUKANOVIC V.,
Rev-Iena JR, Vol. 5 (1974) pp. 280-284.
- [V/11] ANDRE P.,
Doctorat d'Université, n° 771, Décembre 1995,
Université de Clermont-Ferrand.
- [V/12] IKONOMOV N., PAVLOVIC B., VUKANOVIC V., RAKICEVIC N.,
Spectrochimica. Acta., Vol. 26B (1971) pp. 117-121.
- [V/13] JORDAN P.L., SWIFT J.D.,
Int. J. Electronics, Vol. 35, n° 5 (1973) pp. 595-608.
- [V/14] IKONOMOV N., PAVLOVIC B., VUKANOVIC V.,
Spectrochimica. Acta., Vol. 26B (1971) pp. 27-129.
- [V/15] KOALAGA Z.,
Doctorat d'université, n° 343, 1991, Université de Clermont-Ferrand.
- [V/16] AUBRETON J.,
Doctorat d'état, 1985, Université de Limoges.

- [V/17] VUKANOVIC V., IKONOV N. AND PAVLOVIC B.,
Spectrochimica. Acta., Vol. 26B (1971) pp. 95-108.
- [V/18] GLEIZES A., GONZALEZ J.J., LIANI B., RAYNAL G.,
J.Phys. D : Appl. Phys., 26 (1993), pp. 1921-1927.
- [V/19] COITOUT H., FAURE G.,
Spectroscopy Letters, Vol. 29 (1996), pp. 1201-1214.
- [V/20] PIAR B.,
Doctorat d'Université, 1993, Ecole Centrale Paris.
- [V/21] HERZBERG G.,
"Molecular spectra and molecular structure I. Spectra of Diatomic Molecules".
D. Van Nostand Company Inc, 1950.
- [V/22] FINK E H., WELGEJ K H.,
Chem. Phys., Vol. 46, n° 11 (1967) pp. 4315-4318.
- [V/23] RICH.J.W., BERGMAN.R.C.,
Chemical. physics., 44 (1979) pp. 53-64.
- [V/24] CARLSON T.A., COPLEY J., DURIC N., ERMAN P., LARSSON M.,
Chemical. Physics., 42 (1979) pp. 81-87.
- [V/25] ERMAN P.,
Physica Scripta., Vol. 22 (1980), pp. 108-113.
- [V/26] KATAYAMA D.H., MILLIER T.A., BONDYBEY V.E.,
J. Chem., Phys., Vol. 71, n° 4 (1979) pp. 1662-1669.
- [V/27] CERNOGORA G., HOCHARD L., M.DUDECK M., LASGORCEIX P., LAGO V.,
AIAA paper 93-3229 (1993).
- [V/28] COITOUT H.,
Doctorat d'Université, Université de Paris-sud, centre d'Orsay, (1993).
- [V/29] CHARLOTTE PECKER-WIMEL.,
"Introduction à la spectroscopie des plasmas". Dunod (1967) Paris.
- [V/30] DANYLEWYCH L.L., NICHOLLS R.W.,
Proc. R. Soc. Lond. A. Vol. 339, pp.197-212 (1974).
- [V/31] COOPER D.M., NICHOLLS R.W.,
Spectroscopy Letters, 9 (3), pp.139-155 (1976).
- [V/32] CERNOGORA G., JOLLY J.,
Rapport interne LP n° 262, Université de Paris-sud, centre d'Orsay (1992).
- [V/33] DELCROIX J L.,
"Physique des plasmas". Tome 1, Editions C.N.R.S., 1994.

CONCLUSION GENERALE

L'objectif de ce travail était, d'étudier l'influence de la molécule de CO_2 sur un plasma d'argon pur en caractérisant ce plasma. L'étude expérimentale pose des problèmes délicats liés à la façon dont le gaz CO_2 est injecté et au type de chambre utilisée.

Certains points ont été détaillés afin de mieux cerner les problèmes qui se posent et de faire ressortir les axes de recherches importants.

L'objet de la partie théorique de ce travail a été d'élaborer, à partir des lois et des relations d'équilibre thermodynamique, un code de calcul permettant de déterminer la composition du plasma Ar- CO_2 dans l'hypothèse de l'E.T.L. Nous avons calculé les fonctions thermodynamiques (masse volumique, enthalpie massique, capacité massique) pour différentes valeurs de pourcentages de CO_2 dans le mélange Ar- CO_2 . Les résultats obtenus montrent que lorsque le taux de CO_2 augmente la densité électronique est presque totalement due à l'ionisation de l'atome de carbone pour des valeurs de température comprise entre 5 000 K et 14 000 K ; la molécule de CO_2 est totalement dissociée à partir de 7 000 K et le radical C_2 est présent entre 6 000 K et 10 000 K. Dans cette gamme de température, nous avons constaté que les courbes de la chaleur massique dans le cas du mélange Ar- CO_2 présentent un pic alors qu'il n'existe pas dans le cas de l'argon pur. La présence du pic dans le mélange Ar- CO_2 correspond aux réactions chimiques de dissociation des molécules (CO , C_2) et d'ionisation de l'atome de carbone.

Nous avons mis au point un formalisme permettant, à partir des mesures de l'intensité absolue d'émission d'une raie atomique et après inversion d'Abel, de déduire la densité de population de l'état excité émetteur, en supposant l'équilibre thermodynamique. Une comparaison de ces résultats avec le calcul théorique des concentrations nous donne la température d'excitation de l'espèce atomique choisie. Nous avons employé deux méthodes d'interpolation pour le lissage des points expérimentaux : une méthode polynomiale basée sur le lissage de la totalité des points et une méthode d'interpolation par morceaux utilisant des fonctions splines d'ordre 2. La dernière méthode a été retenue.

Sur le plan expérimental, nous avons effectué, à la pression atmosphérique, des mesures spectroscopiques de températures pour des pourcentages de CO_2 allant de 0,9 % à 25 % et pour des valeurs de courant comprises entre 10 A et 40 A. Nous avons observé que les valeurs limites du pourcentage de CO_2 étaient fixées techniquement par les valeurs du courant.

Nous avons constaté une certaine inhomogénéité du plasma ; la comparaison des résultats expérimentaux des profils radiaux de la température d'excitation des raies d'argon avec ceux du carbone obtenus en injectant le mélange Ar- CO_2 au milieu de la colonne d'arc, a indiqué que le plasma n'avait pas localement la même composition que celle du gaz injecté. L'injection du mélange au niveau des électrodes n'apporte pas une amélioration significative.

La comparaison des résultats obtenus dans le mélange Ar- CO_2 avec les résultats de l'argon pur montre que leurs comportements sont différents.

Nous avons observé que les profils radiaux de température d'excitation des raies atomiques dans le mélange présentent une première zone correspondant à la formation d'un noyau à température plus élevée sur l'axe de la décharge et l'apparition d'un début de palier (zone des réactions chimiques). De plus, le gradient de température augmente avec le

(zone des réactions chimiques). De plus, le gradient de température augmente avec le pourcentage de CO_2 . En revanche, le rayon de la décharge et la température d'excitation diminuent quand le taux de CO_2 augmente, ceci est dû au fait que les molécules pour se dissocier captent de l'énergie donc la température diminue. Nous avons constaté que l'augmentation de l'intensité du courant entraîne une augmentation de la température et une diminution du gradient de température comme dans le cas de l'argon pur.

Cette étude nous a également permis d'observer la répartition des différentes espèces en différents points de la colonne d'arc ; les atomes sont concentrés au centre de la colonne et les molécules sur les bords.

Notre dispositif expérimental nous a permis d'observer des spectres moléculaires (C_2 et CN). Le radical CN provient de la contamination du plasma par l'air ambiant. Nous avons déduit des valeurs de températures rotationnelles qui ne peuvent être prises en compte valablement qu'au bord de la colonne d'arc ($r > 2,5 \text{ mm}$) ; le C_2 peut être autoabsorbé et le spectre du CN présente un trop fort fond continu au centre.

Nous avons comparé les résultats des profils de température d'excitation des raies atomiques avec ceux des températures rotationnelles des deux radicaux C_2 et CN. Les valeurs obtenues ont montré un écart entre ces deux grandeurs au centre de la colonne d'arc et moins important sur les bords. On ne peut donc pas déduire si notre plasma est, ou n'est pas, hors d'équilibre thermique.

Pour l'avenir, il nous semble qu'il serait important de pouvoir mieux évaluer les températures rotationnelles au centre de la colonne par exemple à partir d'autres molécules. La chambre peut aussi être modifiée pour la rendre plus performante et permettre une étude à plus fort courant et avec des pourcentages plus importants de CO_2 afin de pouvoir confirmer le palier de température que nous avons signalé et d'observer les espèces ionisées.

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA MOLECULE DE CO₂
SUR UN PLASMA DE MELANGE Ar-CO₂,
ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPARTITION RADIALE DES
TEMPERATURES DANS UN PLASMA Ar-CO₂**

MAOUIHOUB Essaadia

Thèse de Doctorat d'Université, Clermont-Ferrand, 1997

Ce travail comprend deux parties essentielles : une partie théorique et une partie expérimentale.

La partie théorique est consacrée à la mise au point d'un formalisme numérique (méthode de Newton-Raphson) en utilisant les lois d'équilibre de la thermodynamique pour le calcul de la composition et les propriétés thermodynamiques des plasmas thermiques. Ce calcul a été appliqué pour différentes valeurs de pourcentages de CO₂ afin de mettre en évidence l'influence de cette molécule sur les propriétés thermodynamiques du plasma du mélange Ar-CO₂ à la pression atmosphérique.

La partie expérimentale constitue la partie principale et essentielle de ce travail. Nous avons mis au point la chambre à arc stabilisé par parois (type Maecker modifié) afin de disposer d'un arc stable dans le temps. Les méthodes de diagnostic du plasma sont basées sur la spectroscopie d'émission. Deux méthodes d'interpolation (polynôme, spline) pour le lissage des points expérimentaux sont comparées. Les profils de températures d'excitation sont déterminés à partir des raies atomiques (argon, carbone, oxygène) et les profils de température de rotation à partir des spectres moléculaires observés, système de Swan C₂ (0,0) et système violet de CN (0,0).

Les principaux résultats expérimentaux obtenus montrent que :

- la composition locale du plasma n'est pas celle injectée,
- la température augmente en fonction du courant,
- le gradient de température diminue quand le courant augmente,
- les formes des profils des températures d'excitation sont modifiées pour le plasma du mélange Ar-CO₂,
- le gradient de température diminue quand on augmente le pourcentage de CO₂,
- la formation d'un noyau à température élevée sur l'axe de la décharge et d'un début de palier entre 7 000 K et 8 500 K,
- les températures de rotations sont vraisemblablement celles de la périphérie.

Mots clés : Plasma de mélange, Ar-CO₂, Arc stabilisé, Inversion d'Abel, Spectroscopie, Fonctions de partition, Propriétés thermodynamique, Température d'excitation, Température rotationnelle, Equilibre thermodynamique, Autoabsorption

Keywords : Mixture plasma, Ar-CO₂, Stabilized arc, Abel inversion, Spectroscopy, Partition functions, Thermodynamic properties, Excitation temperature, Rotational temperature, Thermodynamic equilibrium, Self-absorption