

Détermination de profils de température et de concentration de gaz par spectroscopie infrarouge

F. Guerneur, D. Ramel, Y. Bailly (1), R. Conseil, P. Hervé (2)

(1) Institut FENTO-ST, Parc Technologique
2 Avenue Jean Moulin 90 000 BELFORT

(2) LEME
50 Rue de Sevres 92 410 Ville d'Avray

1. Introduction :

L'évolution rapide des normes environnementales comme l'optimisation des machines thermiques nécessite des moyens de contrôle fiables des températures et concentrations des espèces gazeuses réactives ou produites lors des cycles thermodynamiques. Dans le but de connaître ces grandeurs, nous décrivons ici une méthode non intrusive, basée sur l'étude et l'analyse du spectre d'émission (ou de transmission) de la molécule de dioxyde de carbone. Les propriétés radiatives de cette espèce présentent entre 4,0 μm et 4,2 μm [1] des caractéristiques de thermo-dépendance impliquant des spectres qui, par inversion numérique de l'équation du transfert radiatif, permettent de reconstituer les répartitions spatiales de température et de concentration en CO_2 dans le volume d'étude.

Nous présenterons dans un premier temps quelques rappels concernant l'émission de rayonnement des corps et notamment celle des gaz qui présente certaines spécificités.

Dans un second temps nous décrirons le principe de la méthode de mesure proposée et décrirons également les bases du modèle radiatif utilisé.

Ensuite une expérience réalisée en transmission sur un volume de gaz dont les caractéristiques physiques (température, concentration, débit) sont maîtrisées sera décrite. Les premiers résultats d'inversion obtenus sur ce banc de mesure seront présentés.

Pour illustrer la portabilité de la méthode sur un banc industriel, nous exposerons également des résultats obtenus lors d'une application effectuée sur la ligne d'échappement d'un moteur Diesel type DV6TED4 (PSA) dont l'objectif était de retrouver les profils de température des gaz d'échappement après le filtre à particules. Enfin nous proposerons un bilan sur ces premières applications ce qui conduira naturellement à la proposition de voies d'exploration et d'amélioration pour cette méthode.

2. Rappels sur le rayonnement :

Les propriétés optiques des gaz comme celles des solides définissent de quelle manière les objets ou les fluides émettent ou absorbent du rayonnement. Quelle que soit la nature de la source de rayonnement, la répartition spectrale de l'énergie rayonnée est contenue dans certaines limites définies par la loi de Planck (eq. 1) correspondant à l'émission radiative d'une surface solide de référence appelée « Corps Noir » dans une direction et sous un angle solide donnés (cf. Figure 1 et Figure 2).

Notons déjà que la longueur d'onde « λ » est associée au nombre d'onde « $\sigma = \frac{10000}{\lambda}$ » avec σ en [cm^{-1}] et λ en [μm].

$$L_{\lambda,T}^0 = \frac{2hC_0^2}{e^{\left(\frac{hc_0}{\lambda T k_b}\right)} - 1} \quad \text{eq. 1}$$

- « λ » longueur d'onde en [μm]
- « T » température en [K]
- « C_0 » vitesse de la lumière dans le vide [m.s^{-1}]
- « h » constante de Planck ($6,67 \cdot 10^{-34}$ [J.s])
- « k_b » constante de Boltzmann ($1,39 \cdot 10^{-25}$ [J.K $^{-1}$])

$$L_{\sigma}^0(\sigma, T) = \frac{C_1 \cdot \sigma^3}{e^{\frac{C_2 \cdot \sigma}{T}} - 1} \quad \text{eq. 2}$$

- « σ » nombre d'onde en [cm^{-1}]
- $C_1 = 1,191 \cdot 10^{-12}$ [W.cm 2 .sr $^{-1}$]
- $C_2 = 1,438$ [K.cm]

Pour cette surface particulière, le facteur d'émission spectral « ϵ_λ » définissant l'efficacité radiative de l'objet étudié à la longueur d'onde « λ » est égal à 1 et ce quelles que soient la température et les conditions géométriques d'observation.

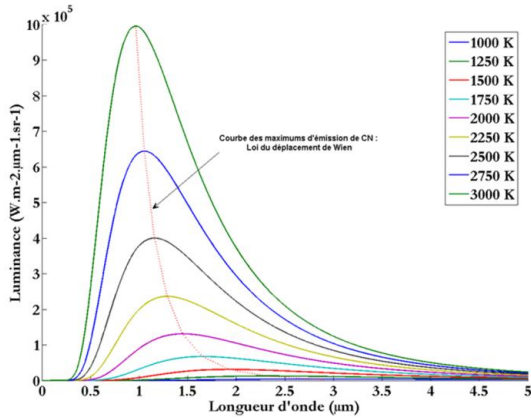


Figure 1 : Loi de Planck en λ

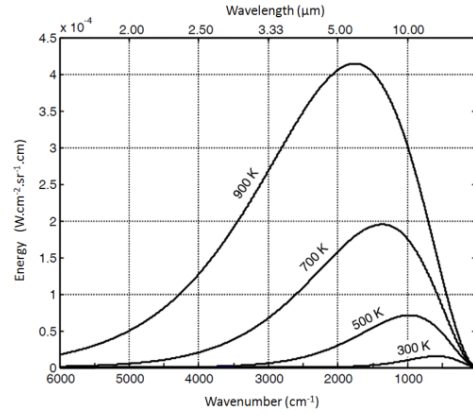


Figure 2 : Loi de Planck en σ

Si l'on traite le cas d'un corps « réel » le facteur d'émission « ϵ_λ » pondèrera la loi de Planck. Ce paramètre optique est lié à d'autres qui sont le facteur d'absorption « $\alpha_{\lambda,T}$ », le facteur de réflexion « $\rho_{\lambda,T}$ » et le facteur de transmission « $\tau_{\lambda,T}$ ». Ainsi, en notant, $\Phi_{i,\lambda}$ le flux incident, $\Phi_{\rho,\lambda}$ le flux réfléchi, $\Phi_{\alpha,\lambda}$ le flux absorbé et $\Phi_{\tau,\lambda}$ le flux transmis par un système (cf. Figure 3) la conservation de l'énergie impose que $\Phi_{i,\lambda} = \Phi_{\rho,\lambda} + \Phi_{\alpha,\lambda} + \Phi_{\tau,\lambda}$.

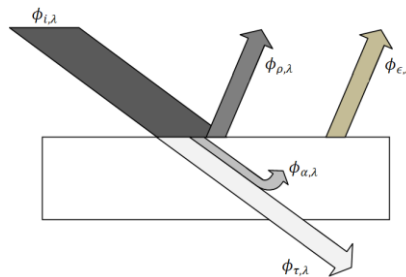


Figure 3 : bilan des flux

Le rapport de chacun de ces flux par rapport à l'énergie incidente donne le facteur de réflexion $\rho_{\lambda,T} = \frac{\Phi_{\rho,\lambda,T}}{\Phi_i}$, le facteur de transmission $\tau_{\lambda,T} = \frac{\Phi_{\tau,\lambda,T}}{\Phi_i}$ puis finalement le facteur d'absorption $\alpha_{\lambda,T} = \frac{\Phi_{\alpha,\lambda,T}}{\Phi_i}$. Ainsi $\rho_{\lambda,T} + \tau_{\lambda,T} + \alpha_{\lambda,T} = 1$.

De plus, à l'équilibre thermique l'énergie absorbée par le matériau est nécessairement évacuée. Le milieu rayonne une quantité d'énergie $\Phi_{\epsilon,\lambda,T}$ telle que $\Phi_{\epsilon,\lambda,T} = \Phi_{\alpha,\lambda}$. En notant $\epsilon_{\lambda,T} = \frac{\Phi_{\epsilon,\lambda,T}}{\Phi_{i,\lambda}} = \alpha_{\lambda,T} = \frac{\Phi_{\alpha,\lambda}}{\Phi_{i,\lambda}}$, et en négligeant la diffusion par les molécules de gaz nous avons finalement :

$$\rho_{\lambda,T} = 0 \rightarrow \epsilon_{\lambda,T} = 1 - \tau_{\lambda,T} \quad (eq. 3)$$

En réalisant un « parallèle » entre le rayonnement des gaz et celui des solides, nous voyons qu'un gaz n'émettra pas d'énergie dans les zones où il est totalement transparent. Pour caractériser un volume de gaz en température (et/ou concentration) par méthode optique passive il est donc nécessaire de connaître les propriétés radiatives des espèces gazeuses afin de pouvoir modéliser leurs spectres d'émission ou d'absorption. Or il existe des différences notables entre les propriétés optiques des solides et des gaz. En effet, contrairement à l'émission radiative des solides, les gaz ne présentent pas un spectre d'émission continu en fonction de la longueur d'onde. La quantité spectrale d'énergie radiative maximale pouvant être émise à une température donnée est bien bornée par la loi de Planck mais les milieux gazeux présentent des spectres « discrets ». Le rayonnement des espèces gazeuses est en effet un phénomène localisé sur des bandes de longueurs d'ondes souvent étroites et composées d'un ensemble de raies fines. Cela est dû au fait que chaque molécule dispose de sa propre énergie

interne et que les variations d'énergie autorisées sont intimement liées aux variations possibles des états électroniques (*sauts électroniques en excitation ou désexcitation*), vibrationnels et rotationnels (*qui dépendent de la nature de la molécule, de sa géométrie et des types de liaisons présentes*). Le rayonnement émis par un volume de gaz varie donc en fonction de la température du milieu mais également en fonction de la pression, de la concentration des espèces en présence et de l'épaisseur de gaz observée. Les modes de rotation ou de vibration impliquent des changements énergétiques dans les molécules ce qui provoque l'apparition de raies d'absorption (*ou d'émission*) dites de « ro-vibrations ». Les énergies mises en jeu dans le cadre de ces phénomènes correspondent à des fréquences plus faibles que celles relatives aux sauts électroniques. Les phénomènes de ro-vibration apparaissent donc plutôt dans le domaine infrarouge. C'est pourquoi en général, les méthodes thermographiques et spectroscopiques sont plutôt développées dans ce domaine spectral. Les figures suivantes illustrent ces propos avec un spectre de ro-vibration de la molécule de CO₂ dans l'infrarouge entre 3,8 [μm] et 4,8 [μm].

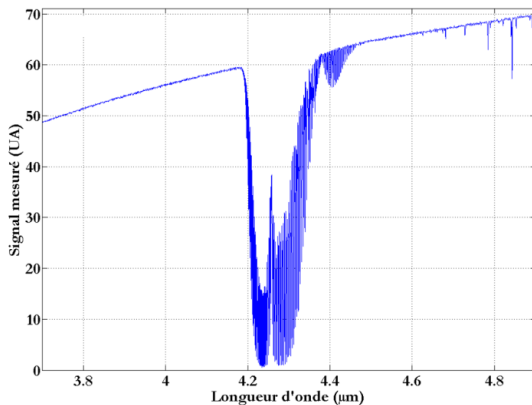


Figure 4 : spectre de raies du CO₂

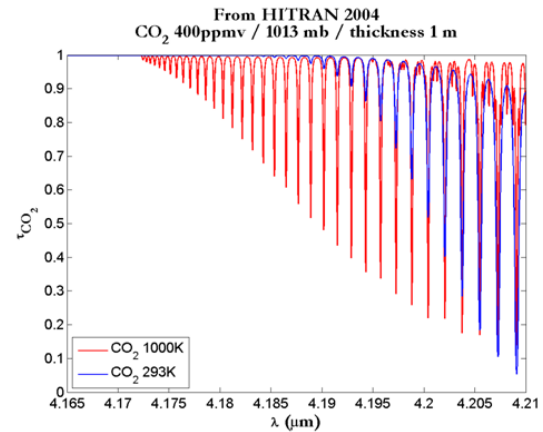


Figure 5 : agrandissement du spectre

On note ici des zones de transparence du gaz comme dans la bande 3,5μm → 4,15μm ou des zones d'absorptions fortes comme dans la bande 4,2μm → 4,4μm. La localisation des raies dépend donc des transitions énergétiques autorisées dans les molécules mais concernant leur intensité, elle dépend à la fois de la température, de la pression et de la concentration moléculaire en présence. En définitive, l'intensité des raies découle d'une propriété optique fondamentale des molécules de gaz : le coefficient d'absorption monochromatique noté « K_λ » ou « K_σ ». Ainsi le facteur de transmission d'un volume de gaz d'épaisseur « dx » porté à la température « T », de concentration « C » et présentant un coefficient d'absorption « K_σ » est défini par :

$$\tau_{\sigma}(x) = e^{-K_{\sigma}(x,T,C).dx} \quad (eq. 4)$$

Cette expression est à la base de la modélisation de l'équation du transfert radiatif (E.T.R.) utilisée dans le cadre de ce travail.

3. Modélisation de l'ETR et description de la méthode

Considérons une paroi radiative caractérisée par un facteur d'émission « ε_λ » et une température « T_p » observée au travers d'un volume de gaz d'épaisseur totale « d ».

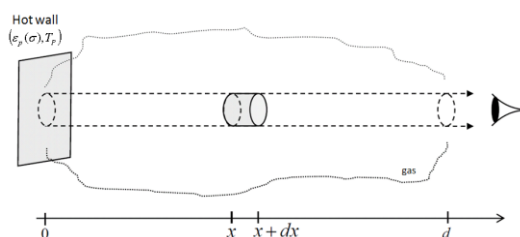


Figure 6 : configuration expérimentale

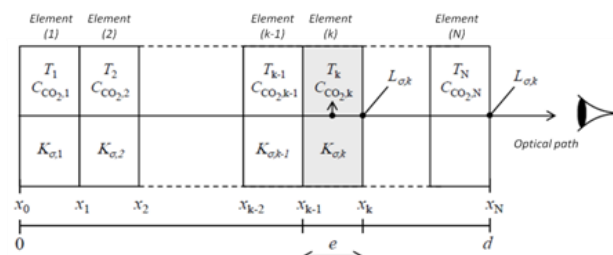


Figure 7 : discrétisation du modèle

Le système d'acquisition à l'extrémité de la ligne d'observation reçoit une énergie radiative spectrale décrite par l'équation 5.

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) \cdot L_{\sigma}(\sigma, 0) + \int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x) \cdot L_{\sigma}^0(T(x)) \cdot \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d) \cdot dx \quad (eq. 5)$$

Dans cette expression $\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)$ est le coefficient de transmission global du volume de gaz défini par :

$$\tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d) = \exp\left(-\int_0^d K_{\sigma}(\sigma, x') \cdot dx'\right) \quad (eq. 6)$$

En notant $\frac{\partial \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)}{\partial x} = K_{\sigma}(\sigma, x) \cdot \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)$ l'expression devient

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) \cdot L_{\sigma}(\sigma, 0) + \int_0^d L_{\sigma}^0(T(x)) \frac{\partial \tau_{\sigma}(\sigma, x \rightarrow d)}{\partial x} dx \quad (eq. 7)$$

ou encore

$$L_{\sigma}(\sigma, d) = \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d) \cdot L_{\sigma}(\sigma, 0) + L_{\sigma T}^0 [1 - \tau_{\sigma}(\sigma, 0 \rightarrow d)] \quad (eq. 8)$$

En partant de cette dernière équation, il est possible de décrire numériquement le modèle radiatif pour le cas d'un volume de gaz non homogène en température et en concentration le long de l'axe de visée [5, 6, 7]. Il faut pour cela subdiviser le système en petits éléments à l'intérieur desquels la température et la concentration seront des constantes. En subdivisant le système en « N » éléments d'épaisseur « e = d / N » nous pouvons schématiser le problème comme le présente la Figure 7 pour le cas du dioxyde de carbone. Dans cette représentation, k = 0 indique l'origine du rayonnement traversant éventuellement le volume de gaz. Dans le cas où ce rayonnement est effectivement présent, l'énergie rayonnée est donnée par $L_{\sigma}(\sigma, 0)$. Des hypothèses sont faites sur la forme des profils de températures et de concentration et leur discrétisation est nécessaire dans le cadre de notre approche. Nous définissons une valeur de température et de concentration appliquées au centre de chaque élément sous la forme :

$$T^{app}(x) = T\left(\frac{x_k - x_{k-1}}{2}\right) = T_k \quad C^{app}(x) = C\left(\frac{x_k - x_{k-1}}{2}\right) = C_k \text{ pour }]x_{k-1}, x_k]$$

En utilisant les valeurs ainsi fixées, il est possible de déterminer le coefficient d'absorption monochromatique à partir d'un modèle donnant $K_{\sigma,k} = K_{\sigma}(\sigma, T_k, C_{CO2,k}, P_{tot})$ [7]. En sortie de chaque élément « k » on obtient l'énergie radiative « $L_{\sigma,k}$ » en fonction de l'énergie issue de l'élément précédent « $L_{\sigma,k-1}$ » :

$$L_{\sigma,k} = \tau_{\sigma}(\sigma, x_{k-1} \rightarrow x_k) \cdot L_{\sigma,k-1} + L_{\sigma T_k}^0 [1 - \tau_{\sigma}(\sigma, x_{k-1} \rightarrow x_k)] \quad (eq. 9)$$

Cette expression peut aussi s'écrire sous la forme suivante :

$$L_{\sigma,k} = \exp(-e \cdot K_{\sigma,k}) \cdot L_{\sigma,k-1} + [1 - \exp(-e \cdot K_{\sigma,k})] \cdot L_{\sigma T_k}^0 \quad (eq. 10)$$

Avec ce modèle radiatif comme « problème direct » on estime les meilleurs paramètres concernant les températures « T_k » et les concentrations « C_k » qui permettent à ce modèle de décrire le plus fidèlement possible le résultat d'une mesure. Dans ce cas la luminance mesurée sera notée $L_{\sigma,N}(T, C) = L_{\sigma}^{meas}$ avec $L_{\sigma,N}$ l'intensité monochromatique calculée à l'extrémité du système et $L_{\sigma,N}$ celle mesurée à la même longueur d'onde. Le code numérique de minimisation cherche alors la meilleure solution à l'équation :

$$J(m) = \frac{1}{2} \|L_{\sigma,N}(m) - L_{\sigma}^{meas}\|^2$$

Dans cette expression « m » sera une composante du vecteur de paramètres pour « T » comme pour « C ». Pour résoudre ce problème la pression totale du gaz doit nécessairement être une entrée. Cette étape de recherche des paramètres optimaux de température et de concentration passe par des hypothèses sur la forme de ces profils. La paramétrisation permet de minimiser le nombre de paramètres à rechercher et d'éliminer des résultats n'ayant aucun sens physique. Les conditions aux limites comme les propriétés de la plaque chauffante ou encore la réponse spectrale du système optique doivent être également connues. Enfin le calcul du spectre synthétique est réalisé à l'aide des propriétés des raies spectrales du gaz, obtenues en laboratoire ou dans des bases de données comme HITRAN-08 [2, 3, 4].

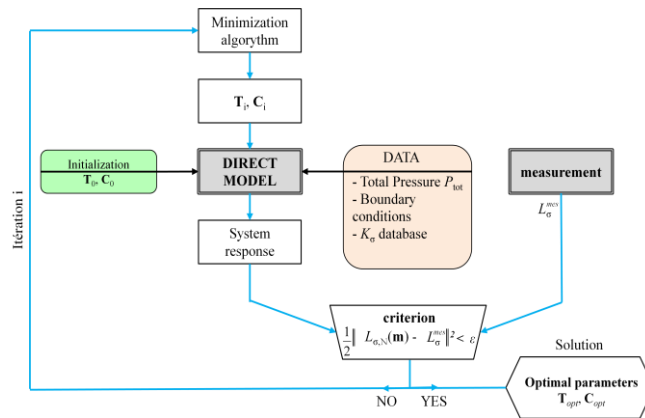


Figure 8 : principe du code d'optimisation

Dans notre cas, les valeurs des « K_σ » ont été validées à l'aide d'une cellule de caractérisation dédiée en laboratoire.

4. Validation de la méthode sur un banc de gaz synthétique (BGS) :

Grace à un banc d'essai permettant de maîtriser la concentration et la température d'un gaz nous avons réalisé des mesures en transmission (Cf. Figure 9).

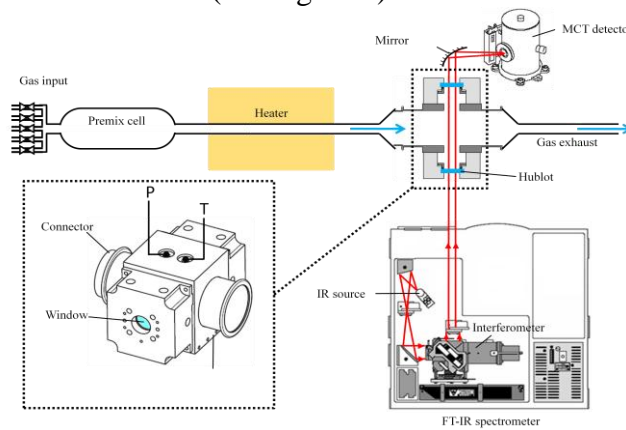


Figure 9 : expérience sur le banc de gaz synthétique

Dans cette expérience, un mélange de gaz circule dans un tube depuis la cellule de pré-mélange jusqu'à la cellule de mesure en passant par un four permettant la montée en température. Dans un premier temps de l'azote (transparent dans notre bande spectrale d'étude) permet de faire l'acquisition du spectre de référence de la source du spectromètre à transformée de Fourier qui sera noté $L_{Meas,N_2}(\sigma)$. Ensuite du CO_2 est ajouté à l'azote. Un nouveau spectre est enregistré sur lequel nous voyons apparaître des raies d'absorptions dues au dioxyde de carbone. Ce spectre est noté $L_{Meas,Mixt}(\sigma)$ et permet de réaliser le calcul d'un spectre de transmission du mélange : $\tau_{Meas}(\sigma) = \frac{L_{Meas,Mixt}(\sigma)}{L_{Meas,N_2}(\sigma)}$. Cette expérience contrôlée présente un niveau de bruit faible de l'ordre de 1%. Le temps d'acquisition nécessaire à l'enregistrement d'un spectre de haute résolution est de l'ordre de 4 minutes.

Fraction molaire CO_2 (%)	5	5	10
T_{ref} (K)	517,3	600,3	441,2
T_{calc} (K)	523,8	607,4	436,5
$100 \left \frac{T_{ref} - T_{calc}}{T_{tck}} \right $	1,3	1,2	1,1

tableau 1 : exemple de résultat sur T

Fraction molaire X_{CO_2} (%)	5	5	10
$X_{CO_2, optical}$ (%)	4,7	4,9	9,5
$100 \left \frac{X_{CO_2} - X_{CO_2, calc}}{X_{CO_2}} \right $	6	2	5

tableau 2 : exemple de résultat sur C

Dans le cadre de ces mesures les températures et concentrations retrouvées par inversion sont proches des valeurs imposées comme l'indiquent les tableaux 1 et 2. L'initialisation du calcul est faite avec des profils plats définis par $T = 300K$ et $X_{CO_2} = 1\%$.

Ces résultats montrent que la méthode de mesure comme le traitement des données donnent des résultats satisfaisants avec des écarts sur les températures de l'ordre de 1% et au maximum de 6% sur la concentration.

5. Application sur banc moteur :

Suite à l'étude réalisée sur le banc expérimental, le système de mesure a été utilisé pour caractériser la température et la concentration en CO₂ des gaz d'échappement d'un moteur diesel destiné à l'industrie automobile. Il s'agit d'un DV6TED4 correspondant à un moteur 1,6 HDI 110cv. La cellule de mesure est insérée dans la ligne d'échappement après le FAP afin d'éviter l'opacification des hublots au cours de la mesure.

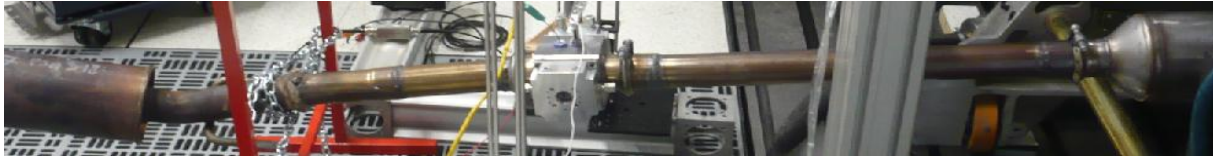


Figure 10 : disposition de la cellule de mesure sur la ligne d'échappement

Nous avons supposé ici que la distribution des températures dans la canalisation est gaussienne. Ainsi la paramétrisation est du type $T_k = T_\infty + \Delta T \cdot \exp\left[-\frac{x_k - x_T}{\alpha_T}\right]^2$ avec $k \in [1, \dots, N]$. « x_T » représente le centre de la gaussienne (ici imposé au centre du tube), « α_T » la largeur et « T_∞ » la température asymptotique. « ΔT » est ici la différence de température entre « T_∞ » et la valeur centrale. Nous avons supposé que la concentration en CO₂ est homogène sur la section visée. Elle est notée « C_x ». Finalement le problème inverse doit mener à l'identification de 4 paramètres : C_x , T_∞ , α_T , et ΔT . Nous présentons des résultats obtenus sur un point de fonctionnement à 2500 tr/min et un couple délivré de 40Nm.

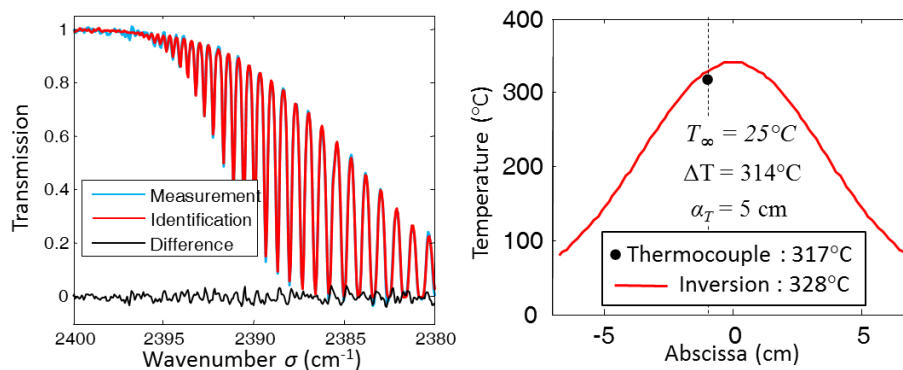


Figure 11 : spectre mesuré à gauche et résultat d'inversion sur T à droite.

Nous voyons à gauche la bonne superposition du spectre mesuré en rouge puis celui obtenu par identification en bleu. Les paramètres déterminés conduisent à la construction du profil de température représenté à gauche par la courbe rouge. Un thermocouple localisé dans la cellule de mesure indique une température de 590K. Pour la même position, nous obtenons par inversion une valeur de 601K. Nous avons donc une différence inférieure à 2% entre la mesure intrusive et le résultat numérique de la méthode optique. De plus une baie d'analyse par transformée de Fourier a été couplée au système lors de la mesure et a indiqué une fraction molaire de CO₂ de 7,5%. Le résultat numérique obtenu pour le cas présenté a conduit à une concentration de 7,8%. Nous voyons donc ici une différence entre la mesure et le résultat numérique de 4% (0,3 points sur 7,5).

6. Conclusion et perspectives :

Un système de mesure et un outil d'inversion numérique de l'ETR ont été développés formant une méthode de mesure non intrusive permettant de déterminer les distributions de températures et de

concentrations dans un volume de gaz. La molécule étudiée est ici le CO_2 dans la bande spectrale $2380\text{cm}^{-1} - 2400\text{cm}^{-1}$ où ses propriétés optiques présentent un effet thermométrique important. L'inversion numérique des données spectrales mesurées est réalisée à l'aide un code d'inversion développé spécifiquement pour cette application. Il assure une convergence rapide vers la solution la plus adaptée. Cependant pour utiliser cet outil, il est nécessaire de faire des suppositions sur la forme des distributions de températures et de concentration car le nombre de paramètres identifiables par l'outil numérique est restreint. Compte tenu des conditions de mesures des expériences présentées dans cet article, au lieu de chercher à identifier les températures individuellement pour chaque point du maillage numérique, nous avons proposé une paramétrisation gaussienne. La validation de la méthode a été réalisée sur un banc d'essai sur lequel température et concentration des gaz sont maîtrisées. Sur l'ensemble des mesures effectuées sur ce banc, la différence de températures entre les mesures intrusives et optiques n'a jamais dépassé les 2,5%.

Pour l'instant, la méthode est applicable à la molécule de CO_2 pour des températures inférieures à 1000K et pour une pression totale proche de la pression atmosphérique. Mais la validité de la méthode et du problème direct, peut être étendue à d'autres molécules et à des gammes de températures et de pressions plus importantes. La difficulté réside dans l'obtention de bases de données des propriétés spectrales des molécules concernées pour ces conditions physiques sévères. Il est également envisageable de donner plus de degrés de liberté concernant le nombre de paramètres identifiables pour reconstruire la distribution de température ou de concentration si l'on dispose d'un moyen permettant de connaître l'une des deux par ailleurs. Il est envisagé d'utiliser une méthode active type LIDAR afin de caractériser la distribution de concentration moléculaire et d'utiliser ce résultat comme une donnée d'entrée dans notre outil d'inversion. Plusieurs voies d'amélioration sont donc envisagées tant sur l'extension du domaine de mesure que sur le couplage de méthodes optiques.

7. Bibliographie

1. P. AL KHOURY, G. CHAVENT, F. CLEMENT, P. HERVE, and O. LEGRAS. « Etude numérique du comportement de l'équation de transfert radiatif des milieux semi-transparents. Inversion de données spectroscopiques pour le CO_2 », Technical Report RR INRIA 4693, 2003.
2. LS. ROTHMAN, IE GORDON, A. BARBE, DC BENNER, PF BERNATH, M. BIRK, et al. « The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. juin; 110(9-10): 533–72.
3. M. SIMECKOV, D JACQUEMART, LS ROTHMAN, RR GAMACHE, A. GOLDMAN, « A. EINSTEIN - coefficients and statistical weights for molecular absorption transitions in the HITRAN database ». *JQSRT*, 2006 mars;98(1):130–55.
4. J. FISHER, RR GAMACHE, A. GOLDMAN, LS ROTHMAN, A. PERRIN. « Total internal partition sums for molecular species in the 2000 edition of the HITRAN database ». *JQSRT*, 15 November;82(1-4):401–12.
5. P. CHELIN. « Etude des propriétés radiatives de la vapeur d'eau à haute température et haute pression par diagnostic optique de la combustion $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ », Thèse de doctorat, Université Paris X, 2003.
6. P. HERVE. « Procédé et système de détermination de la distribution spatiale d'un paramètre thermodynamique d'un milieu semi transparent », Brevet déposé en Mai 2009.
7. R. CONSEIL. « Spectrométrie Infrarouge de gaz de combustion : application à la détermination de profils de température par inversion de l'équation du transfert radiatif ». Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, décembre 2011