

N° d'ordre :

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA  
RECHERCHE SCIENTIFIQUE**

**UNIVERSITE MOHAMED KHIDER BISKRA**

**FACULTE SCIENCES EXACTES ET SCIENCES  
DE LA NATURE ET LA VIE**



**THESE**

Présentée pour l'obtention du **grade de DOCTEUR EN SCIENCES**

**En : PHYSIQUE**

**Spécialité : Physique Moléculaire et Quantique**

**Par : LAGGOUN CHAOUKI**

**Sujet**

**MISE À CONTRIBUTION POUR L'ETUDE ET DIMENSIONNEMENT D'UNE CAVITE  
CHIMIQUE.**

Soutenue publiquement, le 18 / 05 /2017

Devant le jury composé de :

Mr Rahmane	Saad	Professeur	UMK Biskra	Président
Mr Mohammedi	Ferhat	Professeur	UMK Biskra	Directeur de Thèse
Mr Benbouta	Rachid	Professeur	BATNA 2	Examineur
Mr Mansouri	Salah	MCA	BATNA 2	Examineur

## Résumé de la Thèse

L'objet de cette thèse est l'utilisation du pompage chimique issu de la molécule de di-fluor avec le mono oxyde d'azote dans le générateur, la dissociation de ces composés nous permet d'obtenir la molécule de fluor, qui à son tour est mélangé à l'hydrogène ( $H_2$ ) ou au deutérium ( $D_2$ ), inconditionnellement une telle réaction est nécessairement hautement exothermique qui nous permet d'obtenir un important taux d'énergie sous forme d'enthalpie.

Cette énergie est véhiculée par le courant de l'écoulement crée par la pompe à vide, à des endroits bien localisés du générateur on place des gicleurs calibrés par lesquels on fait diffusé du  $CO_2$  et  $He$ , le gaz hélium est utilisé pour prévenir l'explosion précoce du mélange  $F_2$  avec  $NO$ , le dioxyde de carbone est choisi pour son temps radiatif qui est extrêmement long d'une part, d'autre part, tout les composés traversent des trous calibrés formant des batteries de tuyères, cette action à pour objet de diminué le gradient de température et la pression afin de préparé le milieu aux conditions d'équilibre pour réalisé le laser à la fréquence de 10.4 micro mètre.

Nous explorons alors le milieu avec trois modèles de tuyères, le premier est la tuyère à jet axial, la seconde est une tuyère à jet tangentiel et la dernière est à jet radial. L'étude montre que seule la tuyère axial est capable de donné l'optimum de la relaxation des atomes formant le milieu laser, et cela est démontré par les preuves physique tels que les paramètres pression et température (P, T), ici la molécule de  $CO_2$  est excitée au niveau supérieur par l'enthalpie de  $HF/DF$  et l'énergie emmagasinée dans les degrés de liberté asymétrique est transformée en énergie laser en mode continu. Nous serions jamais juste, si nous parlons de laser, sans parlé de l'apport des réactions chimiques, qui s'opèrent dans le milieu, ici il y a une réelle compétition entre les centres actifs générateur du phénomène laser et les centres non actifs qui consomme une large part de l'énergie chimique au sein du résonateur.

Les équations gouvernant la dynamique de l'oscillation laser pour le cas à quatre niveaux, constituant le milieu laser sont formulées par le système de Statz et de Mars, utilisant Simulink de Matlab, avec les solveurs ODE23 et ODE45 on peut explorer les profondeurs des acteurs dans les différents niveaux énergétique.

A la mémoire de mon ami Yahia Abelhamid

## REMERCIEMENT

LOUANGE À DIEU EN PREMIER ET EN DERNIER, DE M'AVOIR DONNÉ LA VOLONTÉ ET LA PATIENCE DE POUVOIR TERMINÉ CETTE PRODIGIEUSE ENTREPRISE QUI EST UN MAILLON DE PLUS DANS L'ÉDIFICE DE LA SCIENCE QUI EST AU SERVICE DE LA CONNAISSANCE.

JE TIENS À REMERCIER :

MON ENCADREUR LE PROFESSEUR FERHAT MOHAMMEDI, QUI M'A DONNÉ L'OPPORTUNITÉ D'ENTRÉE DANS UN MONDE TRÈS VASTE DE LA PHYSIQUE DE LA MATIÈRE, ET PRINCIPALEMENT DANS L'UNIVERS DES LASERS DE PUISSANCE, JE NE SERAI LE REMERCIER ASSEZ, POUR CES CONSEILS ET SA PATIENCE.

MONSIEUR RAHMANE SAAD, PROFESSEUR À L'UNIVERSITÉ DE BISKRA, POUR L'HONNEUR QUI NOUS FAIT D'AVOIR PRÉSIDÉ LE JURY DE CETTE THÈSE.

MONSIEUR BENBOUTA RACHID, PROFESSEUR À L'UNIVERSITÉ DE BATNA, POUR L'INTÉRÊT QU'IL PORTE À CE TRAVAIL, ET POUR AVOIR AUSSI ACCEPTÉ DE LE JUGER EN HONORANT LE JURY PAR VOTRE PRÉSENCE.

MONSIEUR MANSOURI SALAH, MAITRE DE CONFÉRENCES A, À L'UNIVERSITÉ DE BATNA, POUR L'INTÉRÊT QU'IL À PORTÉ À CE TRAVAIL, ET POUR AVOIR BIEN VOULU ACCEPTER DE LE JUGER EN HONORANT LE JURY ET SON ÉVALUATION DE CE TRAVAIL.

MES REMERCIEMENTS LES PLUS SINCÈRES, À TOUS CEUX QUI ONT CONTRIBUÉS DE PRÈS OU DE LOIN À LA CONCRÉTISATION DE CETTE THÈSE.

## DÉDICACES

LOUANGE À DIEU TOUT PUISSANT, DE M'AVOIR DONNÉ LA FORCE MORALE ET PHYSIQUE, POUR AVOIR PU COMMENCER ET TERMINÉ CETTE THÈSE.

JE TIENS,

EN PREMIER LIEU À EXPRIMÉ MA PROFONDE GRATITUDE, À MES PARENTS QUI SONT LA SOURCE DE MON ÉDUCATION, SANS LEURS EFFORTS JE NE SERAI JAMAIS ARRIVÉ À CE NIVEAU.

TOUTE MA PENSÉE ET MA RAISON VONT À LA MÈRE DE MES ENFANTS QUI M'À SUPPORTÉE AVEC TOUTES LES CONTRADICTIONS DANS L'ACCOMPLISSEMENT D'UNE TELLE ENTREPRISE, ET LA GESTION DE LA VIE FAMILIALE ET PROFESSIONNELLE, LE DÉDIE ALORS CETTE THÈSE À MES ENFANTS, TAHA, AMANI, AHMED, ET TALLAL.

À MON FRÈRE, ET MES SŒURS, AVEC QUI ON À PARTAGÉS LES MOMENTS INOUBLIABLES DE L'ENFANCE, ET QUE JE NE SERAI GUÈRE DISPOSÉ À LES OUBLIÉS POUR TOUT L'OR DE L'UNIVERS.

ENFIN À TOUT CE QUI TÉMOIGNENT QU'IL N'Y A DIEU QU'ALLAH ET MOHAMED SON ENVOYÉ ET SON PROPHÈTE.

# Table des matières

Préambule.....

## Introduction Générale

1. Problématique proposée.....	1
2. Motivation du choix de ce type de laser.....	1
3. Position du problème.....	2
4. Organisation du document.....	3

## Chapitre I : Processus physique des populations laser

1.1 Contexte Général.....	4
1.2 Principe de fonctionnement .....	6
1.3 Types d'émissions .....	7
1.3.1 Emission Spontanée.....	7
1.3.2 Absorption du rayonnement.....	8
1.3.3 Emission stimulée.....	10
1.4 La famille des lasers .....	11
1.4.1 Laser à gaz.....	11
1.4.2 Laser chimique.....	12
1.5 Constitution du laser .....	13

## Chapitre II : Dynamique laser et cinétique chimique

2.1 Etat de l'Art sur les lasers chimiques.....	15
2.2 Autres lasers chimiques HF/DF.....	18
2.2.1 Procédés d'initiation de la réaction "Pompage".....	19
2.2.2 Pompage pour générer le fluor.....	21
2.3 Mécanismes réactionnels.....	25
2.3.1 Facteur stérique.....	29
2.3.2 Energie d'activation.....	29

2.4 Dynamique de la réaction en chaine <i>HF/DF</i> .....	33
2.5 La réaction en chaine.....	35
2.6 Conversion de l'énergie chimique en énergie cohérente.....	37
2.7 Laser à gaz dynamique CO <sub>2</sub> .....	39
2.8 Spectroscopie vibrationnelle.....	44
2.8.1 Energie de vibration.....	44
2.8.2 Le système en question.....	49

### Chapitre III : Ecoulement dans les tuyères et auto allumage

3.1 Processus d'allumage.....	57
3.1.1 L'auto allumage.....	57
3.1.2 L'allumage hypergolique.....	61
3.1.3 Etude de la détonation.....	62
3.1.4 Configuration et équation de bilan de combustion.....	63
3.1.5 Le model ZND.....	66
3.1.6 Définition de longueur d'induction.....	67
3.2 Etude de la flamme.....	68
3.2.1 Types de flammes.....	69
3.3 Chocs et écoulement dans les tuyères.....	70
3.4 Coefficient d'amplification.....	78
3.5 Paramètres laser.....	79
3.5.1. Processus directe et indirecte d'inversion de population.....	81
3.5.2. Equations gouvernant l'inversion de population.....	83

### Chapitre IV : La Cavité

4.1 Définition de la cavité.....	89
4.2 Description du résonateur.....	89
4.3 Convertisseur de l'énergie chimique en laser.....	90
4.4 Equations décrivant la densité du flux.....	91
4.5 Equations de densité d'inversion de population.....	94
4.6 Equation de Statz et de Mars.....	103

<b>4.7 Relation entre Statz et Mars et les équations de bilan.....</b>	<b>106</b>
<b>4.8 Définition de la section efficace.....</b>	<b>110</b>
<b>4.9 Probabilité d'interaction.....</b>	<b>113</b>
<b>4.10 Principe de calcul de la probabilité d'interaction.....</b>	<b>114</b>
<b>4.11 Rendement quantique et énergétique.....</b>	<b>117</b>
<b>4.12 Graphes.....</b>	<b>120</b>
<b>Conclusion Générale.....</b>	<b>128</b>

## **Références**

**Conversion métrique.**

**Terminologie et lexique laser.**

## Liste des figures.

### Chapitre. I

**Figure.1.1** Règle de radiation électromagnétique. Page 5

**Figure.1.2** Schéma de principe d'un laser. Page 6

**Figure.1.3** L'émission spontanée. Page 8

**Figure.1.4** L'absorption. Page 8

**Figure.1.5** Distribution de Boltzmann. Page 9

**Figure.1.6** L'émission stimulée. Page 10

**Figure.1.7** Structure simplifiée du laser en question. Page 14

### Chapitre. II

**Figure.2.1** Schéma de la réaction de formation d'HF. Page 16

**Figure.2.2** Ecorché du générateur primaire. Page 20

**Figure.2.3** Système d'excitation à décharge électrique. Page 22

**Figure.2.4** Système d'excitation par magnétron. Page 23

**Figure.2.5** Laser à gaz dynamique supersonique  $CO_2$ . Page 24

**Figure.2.6** Constantes d'équilibre pour les atomes halogènes. Page 28

**Figure.2.7** Schématisation du complexe activé pour  $F$  et  $D_2$ . Page 31

**Figure.2.8** Diagramme d'énergie de la réaction  $F+D_2$ . Page 33

**Figure.2.9** Variation des concentrations de la réaction en chaîne. page 36

**Figure.2.10** Phénomène laser avec les désactivations. Page 38

**Figure.2.11** Diagramme énergétique  $CO_2+N_2$ . Page 41

**Figure.2.12** Laser dynamique  $CO_2$  en fonctionnement. Page 43

**Figure.2.13** Schéma d'artiste du laser dynamique à  $CO_2$ . Page 44

**Figure.2.14** Molécule diatomique en état de vibration. Page 45

**Figure.2.15** Les modes vibrationnels de la molécule de  $CO_2$ . Page 47

**Figure.2.16** Schéma simplifié d'un laser  $HF/DF-CO$ . Page 50

**Figure.2.17** Dissociation du fluor avec la température. Page 51

**Figure.2.18** Formulation des transitions  $CO_2-HF/DF$ . page 53

**Figure.2.19** Diagramme d'énergie de vibration du couple  $CO_2-HF/DF$ . page 56

### **Chapitre.III**

- Figure.3.1** Injecteurs et tuyères. Page57
- Figure.3.2** Limite d'allumage. Page59
- Figure.3.3** flamme laminaire sphérique en propagation. Page 61
- Figure.3.4** Représentation de l'onde de détonation C-J. Page63
- Figure.3.5** Graphe de Crussard. Page65
- Figure.3.6** Parcours suivi par le mélange. Page66
- Figure.3.7** Variation de la température durant le choc. Page68
- Figure.3.8** Représentation des ondes de chocs droites. Page72
- Figure.3.9** Cotation d'un bloc de tuyères. Page73
- Figure.3.10** Modélisation de l'écoulement derrière un choc droit. Ppage74
- Figure.3.11** Tuyère à écoulement tangentiel. Page75
- Figure.3.12** Tuyère à écoulement axial. Page75
- Figure.3.13** Tuyère à écoulement radial. Page75
- Figure.3.14** Ondes de chocs à la sortie du convergent-divergent. Page75
- Figure.3.15** Température de vibration dans le col versus pression. Page76
- Figure.3.16** Distribution des relaxations et vitesse avec le temps. Page77
- Figure.3.17** Température de vibration dans la tuyère. Page78
- Figure.3.18** Distribution de l'énergie suivant les niveaux. Page78
- Figure.3.19** Définition du coefficient de gain. Page79
- Figure.3.20** Schéma de principe du laser à quatre niveaux. Page80
- Figure.3.21** Schématisation des centres actifs. Page81
- Figure.3.22** Laser à quatre niveaux. Page84
- Figure.3.23** Schéma quantique des éléments de la combustion. Page88

### **Chapitre. IV**

- Figure.4.1** Cavité linéaire de Fabry-Perrot. Page89
- Figure.4.2** Photo d'artiste de la cavité laser HF/DF-CO<sub>2</sub> .Page90
- Figure.4.3** Vue de face du résonateur. Page90
- Figure.4.4** Formulation du système à quatre niveaux. Page94

**Figure.4.5** Formulation de la cavité résonante. Page100

**Figure.4.6** Densité de population, pompage et signal vs temps. Page104

**Figure.4.7** Diagramme énergétique des transitions HF/DF-CO<sub>2</sub> .Page107

**Figure.4.8** Distribution de la vitesse de relaxation versus temps. Page110

**Figure.4.9** Distribution des populations ODE 23.Page110

**Figure.4.10** Distribution des populations. Page111

**Figure.4.11** Schéma d'une section efficace. Page112

**Figure.4.12** Schéma de la section efficace HF/DF-CO<sub>2</sub> .Page113

**Figure.4.13** Schéma des particules incidentes. Page116

**Figure.4.14** Distribution de la vitesse dans la cavité. Page120

**Figure.4.15** Distribution de la température dans la cavité. Page120

**Figure.4.16** Distribution de la pression dans la cavité. Page121

**Figure.4.17** Pertes dans la cavité versus température. Page121

**Figure.4.18** Variation des centres non actifs avec le temps. Page122

**Figure.4.19** Variation des centres actifs avec le temps. Page122

**Figure.4.20** Température et pompage dans la chambre. Page123

**Figure.4.21** Concentration des centres actifs. Page123

**Figure.4.22** Temps d'induction HF/DF-CO<sub>2</sub> . Page124

**Figure.4.23** Pression de la flamme dans le choc. Page 124

**Figure.4.24** Evolution de la température d'induction dans le choc. Page125

**Figure.4.25** Temps d'induction versus longueur d'induction. Page 125

**Figure.4.26** Section efficace d'absorption et d'émission. Page 126

**Figure.4.27** Pompage, gain, et population versus niveaux. Page 127

**Figure.4.28** Puissance de sortie et rendement des miroirs. Page 127

**Figure.4.29** Variation du gain, et puissance avec le temps. Page128

## **Liste des Tableaux**

### **Chapitre. II**

**Tableau.2.1** Energie par mole des composés halogènes. Page17

**Tableau.2.2** Coefficients stœchiométrique pour GDL. Page43

**Tableau.2.3** Energie vibration HF/DF. Page49

### **Chapitre.III**

**Tableau.3.1** Cotes géométriques des blocs de tuyères. Page73

## Préambule

L'idée même d'atteindre un objectif à distance naquit à travers l'histoire dans la Grèce antique, ou un brillant Ingénieur militaire du nom d'Archimède exactement en l'an 214 avant J-C à l'époque de la seconde guerre punique, fut chargé pour défendre Syracuse, alors assiégée par le général romain Marcellus. On disait alors que la flotte assillante fut détruite à distance par la seule énergie du soleil réfléchi par des miroirs légèrement concaves montés au verso des glaives dressés par Archimède, ce qui constitue déjà à l'époque la destruction d'un objectif à distance à la seule énergie du soleil réfléchi par des miroirs. La figure.1. montre une illustration d'artiste de l'odyssée de la défense de Syracuse, malheureusement les soldats romains brisèrent le blocus et Archimède fut tué par des soldats romains assillant, un tel exploit a traversé le temps et l'espace pour rester gravé à jamais dans le patrimoine de l'humanité.

Dans ce troisième millénaire, cette expérience été réalisée aux Etats Unis d'Amérique en grandeurs réelles, et le résultat est stupéfiant, ou il à été démontrer qu'une cible peut être atteinte seulement en réfléchissant les rayons du soleil par des miroirs légèrement concaves et l'objectif prend feu, n'est ce pas là une preuve irréfutable, sans équivoque et une validation de ce que avait projeté Archimède pour défendre sa patrie.



**Figure illustrant l'odyssée de la défense de Syracuse par Archimède.**

De nos jours, l'énergie dirigée est devenue un enjeu si important que les pays qui se respectent, cherchent à se doter de tels matériels, l'accent est mis sur le fait de ne pas utiliser l'adjectif "arme", car en fait seulement un procédé technique nouveau de transfert de puissance invisible à distance.

Remarque est faite, durant la bipolarité "Guerre froide" Soviétiques et Américains se sont lancés à corps perdus dans une course débridée dans le domaine de la guerre des étoiles et la conquête de l'espace, où le droit international est translaté du domaine terrestre pour être appliqué au vide spatial, en un mot plus simple, toute atteinte à des satellites, ou engins volant dans leurs orbites par l'intermédiaire d'une arme à énergie dirigée constitue un acte de guerre.

## **Introduction Générale**

### **1. Problématique proposée:**

Parmi les difficultés rencontrées dans les applications lasers chimiques est la médiocrité de leurs puissances, cautionné par la non récupération de l'énergie emmagasinée dans les degrés de liberté à l'état vibrationnelle formant les atomes acteurs du processus laser, cela vient de la carence du temps suffisant au processus chimique à donner son enthalpie aux centres actifs dans le résonateur.

Toute la difficulté réside dans la disponibilité de l'énergie chimique le plus rapidement possible pour permettre le fonctionnement du laser, notre idée consiste en la recherche d'une nouvelle forme de procédé qui permet d'obtenir l'énergie nécessaire avec des composants présent dans l'industrie à des fins divers, compte tenu que la majorité des lasers, à gaz (dit moléculaire) et lasers chimiques, utilisent pour leurs fonctionnement des combustibles très onéreux à fabriquer et hautement dangereuse leurs manipulations.

### **2. Motivation du choix de ce type de laser :**

Le choix de ce type de laser relève de l'intérêt même à l'échelle moléculaire des arrangements chimiques qui constituent de grand accumulateurs d'énergie, de plus la désexcitation des molécules constituant les centres actifs se fait d'elle-même, d'où l'importance capitale de ne pas chercher un procédé plus au moins élaboré pour amorcer la désexcitation.

De plus le processus doit être accéléré par des réactions chimiques très rapides pour assurer un peuplement suffisamment conséquent des niveaux supérieurs pour les molécules effectuant la transition laser.

En l'occurrence, l'attraction à cette variante de laser émane de la facilité et la disponibilité des constituants chimique nécessaire à son fonctionnement, pour le *HF* dit acide fluorhydrique, c'est de la fluorine (ou fluorure de calcium  $CaF_2$ ) associé avec l'acide sulfurique à 250°C, qui est transformée en gaz comme le bi

fluor  $F_2$ , de plus le  $CO_2$  est un composé très disponible dans l'industrie et à des prix très abordables, pour l'hydrogène, il est facile à obtenir à l'échelle industrielle avec des coûts acceptables.

### 3. Position du problème :

Cette thèse s'articule autour du problème suivant : le gaz dynamique laser (GDL) souffre d'un grand handicap dans l'énergie de sortie n'excédant pas les 10%, du fait de la lenteur du temps de transfert vibrationnel de la molécule de  $N_2$  (Azote), à la molécule de  $CO_2$ , pour se relaxer dans la cavité durant son parcours jusqu'à l'évacuation, ce qui constitue une entrave de taille, d'où la nécessité de rechercher une autre alternative pour remédier à cet handicap d'énergie.

D'autre part, le laser chimique  $HF/DF$ , constitue un excellent potentiel pour donner l'énergie thermique issue d'une réaction chimique exothermique, mais lui aussi souffre énormément d'un autre défaut inhérent à sa propre structure, **bien sûr, ce défaut est la nécessité de fonctionner à basse pression (quelques torrs)**. Une grande majorité de l'énergie utilisée pour générer la dissociation des molécules en atomes acteurs de la réaction chimique et de l'effet photonique ne peuvent participer entièrement au transfert vibrationnel résonnant.

Notre contribution réside primordialement dans l'association technique de l'énergie de pompage issue de la réaction chimique de  $HF/DF$  injecté dûment près de la cavité par des tuyères dans le courant de l'écoulement de  $CO_2$  avant le résonateur, pour produire l'effet photonique en infra rouge.

### 4. Organisation du document :

Ce document de thèse est constitué de quatre parties :

Après l'introduction générale, la première partie est un rappel sur la physique quantique qui constitue un attrait important pour la compréhension du laser cité dans les premières pages de ce manuscrit.

Le deuxième chapitre entame la dynamique laser et la cinétique chimique, préalablement, on étale l'état de l'art en la matière, o combien important pour la mise en valeur du phénomène à partir de réactions chimiques, aussi bien que la spectroscopie vibrationnelle.

Le troisième chapitre traite les écoulements dans les tuyères, suivi du quatrième chapitre qui traite la cavité en tant qu'entité à part entière, siège du phénomène laser, sans pour autant oublié les équations de la physique quantique qui les régissent, le coté numérique de la résolution des équations différentielles de la photonique de dynamique du phénomène laser sous code Matlab Simulink en utilisant les solveurs *OD23*, *OD45*, qui consiste à implémenter les valeurs numériques à partir des équations du système analytique, appuyant des équations moyennées de Statz et de Mars dont le but de prospecter les niveaux de populations dans le diagramme énergétique. Pour les équations qui régissent les écoulements réactifs dans les tuyères suivies de la cavité, et enfin la clôture de la thèse par la conclusion et les enseignements a tiré concernant un tel projet, et d'éventuels perspectives de réalisation et d'application.

## Chapitre I

### Processus physique des populations lasers

#### 1.1 Contexte Général

Rétrospectivement, c'est grâce aux bases de la physique quantique réalisées par Albert Einstein (1879-1955) travaux publiés en 1917 dans lesquels Einstein postulat l'existence d'un processus d'émission d'énergie électromagnétique tout à fait particulier, dit **émission stimulée**. Utilisant les travaux d'Albert Einstein, Charles Townes estime qu'en sélectionnant uniquement des atomes excités le problème d'émission devrait être résolu. Et en l'occurrence si les atomes été injectés dans une cavité aux parois réfléchissantes qu'ils quittaient ensuite, les photons produits, réfléchis par les parois, rencontreraient d'autres atomes excités.

C'est en utilisant la molécule d'ammoniaque plutôt que les atomes qu'il parviendra à produire l'émission d'une onde électromagnétique d'une longueur et une pureté très rare : le Maser (Micro wave amplificated by stimulated emission of radiation) est déjà né.

Lors de son invention fortuite au début des années soixante (1961), ce rayon étroit fin et précis à bouleversé la communauté scientifique et le monde de l'industrie : ce nouveau né est le LASER de son acronyme '**Light amplification by stimulated emission of radiation**' de son inventeur Théodore Maiman (1927-2007) qui utilisa comme milieu amplificateur les ions chrome  $Cr^{3+}$  remplaçant les ions aluminium  $Al^{3+}$  dans un cristal de rubis sous forme de barreau.

Les deux faces parallèles de ce barreau furent polies et recouvertes d'un dépôt semi réfléchissant. Il émet des impulsions brèves de  $0.694 \mu m$  de longueur d'onde et de couleur rouge, par contre le pompage est assuré par la lumière d'un tube à éclair entourant le barreau.

Ensuite la compétition avait pris l'aspect de challenge entre les deux superpuissances qui étaient USA et l'URSS, en 1961 l'Américain d'origine

Iranienne Ali Javan (1928- ) Co- inventeur du laser à gaz élaboré, le premier laser à émission continue (C.W).

Son milieu amplificateur est le gaz Néon donnant une longueur d'onde de  $0.633 \mu\text{m}$ , et en 1962 fut réalisée la première diode laser, dont les applications sont aujourd'hui vulgarisées au rang des jeux de lumière grand public. En 1964 Charles Townes reçut le prix Nobel de physique qui fut partagé par ces homologues de l'académie de physique de Moscou, les deux savants été Nikolai G. Bassov (1922- ) et Aleksander M.Prokhov (1916-2002).

C'est dans ces années soixante qu'apparurent les lasers moléculaires les plus connus, à savoir **le laser à  $\text{CO}_2$**  et **le laser à  $\text{HCL}$** , ancêtre du laser chimique objet de notre thèse, il est à noter que ce type de laser émet généralement dans le proche infrarouge.

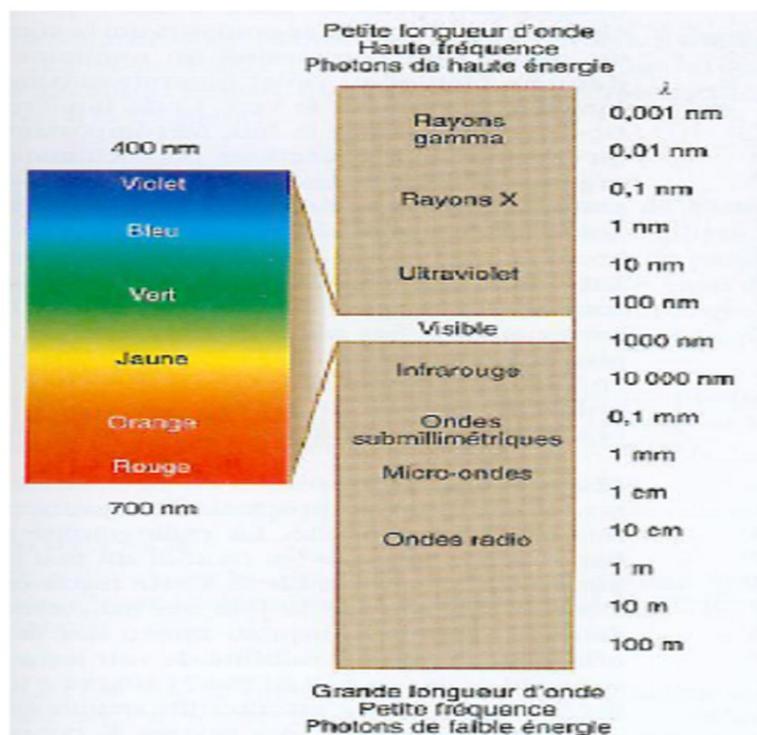


Figure.1.1 Règle de Radiations Electromagnétique

La figure.1.1, donne la répartition générale du spectre universel, cela débute du rayonnement  $\gamma$ , vers le rayon X, l'ultra violet touchant le rayonnement visible, allant vers l'Infrarouge, tendant aux micro-ondes et enfin la radio fréquence.

Par sa nature le rayonnement infrarouge est invisible à l'œil humain, ce qui fait que ce type d'émission bénéficie d'un grand intérêt pour ces applications dans l'univers de la physique, et le transfert de l'énergie invisible à grande distance.

## 1.2 Principe de Fonctionnement

Par analogie de ce qui viens d'être dit, on établi que pour obtenir un laser ne serai ce que d'un point de vue théorique, on a besoin d'un milieu qui produit les atomes dit **amplificateur**, d'un milieu qui fait oscillé les atomes et transformés leurs nature en photon : c'est la **cavité dite de Fabry Perrot (Résonateur)**, et enfin d'une source d'énergie dite **Pompage**, la figure.1.2, donne l'illustration du principe de fonctionnement.

Un temps d'arrêt devrait être marqué pour se penché sur le résonateur, enceinte fermée constituée de miroirs diamétralement opposées, l'un (miroir) est entièrement réfléchissant, par contre l'autre est partiellement réfléchissant, cette cavité n'est autre que le berceau dans lequel prend naissance le laser, c'est le lieu de relaxation des particules excitées (atomes).

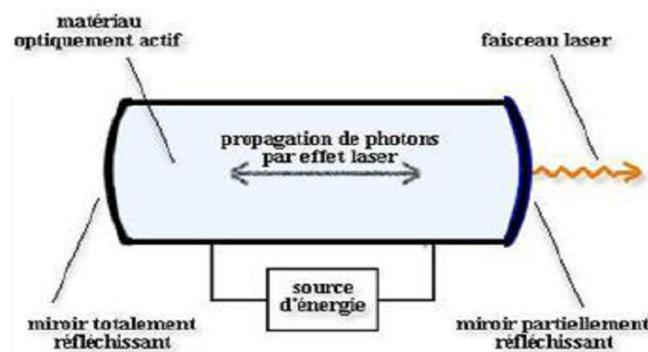


Figure.1.2 Schéma de principe d'un laser

Donc, le laser est la création de l'amplification d'onde électromagnétique à l'aide du rayonnement d'émission stimulée.

Il faut garder à l'esprit que cette émission stimulée entretenue demeure de mise sous la condition que dans la cavité le milieu doit être partiellement sous une faible pression (quelques Torr), mais pas dans la plus part des cas, par contre dans le cadre des lasers dynamique, on n'a un système d'échappement permettant l'évacuation des gaz brûlés et la régénération de l'environnement à l'intérieur de la chambre de combustion.

### 1.3 Types d'émissions

Il existe trois genres d'échanges d'énergie radiative entre le rayonnement et le milieu matériel, en se basant sur les travaux d'Albert Einstein en énumère donc :

1.3.1 L'émission spontanée,

1.3.2 L'Absorption,

1.3.3 L'émission stimulée.

#### 1.3.1 Emission Spontanée

On suppose qu'on a un système qui correspond à deux niveaux, qui présente une désexcitation naturelle d'un niveau supérieur (2) vers un niveau moindre (1) et l'énergie s'exprime par  $E_2 - E_1$ , qui entraîne la diminution de la population  $N_2$  du niveau 2 voir figure 1.3.

L'énergie d'un photon est donnée par l'équation  $h\nu = E_2 - E_1$ , la population  $N_2$

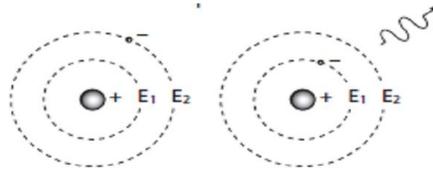
régresse selon l'équation différentielle :  $\frac{dN_2}{dt} = -A_{21}N_2(t)$  (1.1)

L'équation (1.1) décrit une équation Logarithmique dont la solution est une fonction Exponentielle, on dit alors que  $N_2$  est la solution de (1.1), qui est fonction d'un paramètre dit *temps radiatif* :

$$N_2(t) = N_2(t) e^{-\frac{t}{\tau_{rad}}} \quad (1.2)$$

Avec  $\tau_{rad} = \frac{1}{A_{21}}$  exprimé en secondes, qui relate la faculté de durée de vie

d'un atome à l'état excité. Un tel phénomène est très souvent rencontré dans la vie de tous les jours par exemple dans les lampes à incandescence.



**Figure.1.3 L'Emission spontanée.**

N.B : Sauf cas particulier ou on a un système où le niveau excité (i) peut se relaxer en plusieurs niveaux inférieurs (j) le temps de vie (temps radiatif) est donné par :

$$\tau_{rad} = \frac{1}{\sum_j A_{ij}} \quad (1.3)$$

De cette équation on explique que  $A_{ij}$  définit la probabilité d'émission spontanée pour la transition (i) vers (j). Dans le cas réel la **désexcitation n'est pas forcément radiative**. Des relaxations non radiatives peuvent avoir lieu avec la probabilité  $d_{ij}$  de sorte qu'on assiste à l'existence d'un temps de vie de luminescence  $\tau_{lum}$  nettement court que le temps de vie radiatif  $\tau_{rad}$  la corrélation entre les deux temps est définie par l'équation :

$$\tau_{lum} = \frac{\tau_{rad}}{1 + \sum_j \frac{d_{ij}}{A_{ij}}} \quad (1.4)$$

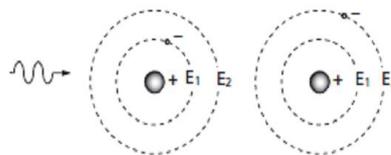
### 1.3.2 L'Absorption d'un Rayonnement

Un système atomique ou moléculaire en présence d'un rayonnement de fréquence  $\nu_{ij}$  passe d'un niveau d'énergie plus faible à un niveau d'énergie plus élevée. La population  $N_1$  décroît pour augmenter la population  $N_2$ , voir figure 1.4 d'après l'équation :

$$\frac{dN_1}{dt} = -B_{12}N_1(t)\rho(\nu) \quad (1.5)$$

Avec  $B_{12}$  : Coefficient d'Einstein,

$\rho(\nu)$  : Densité des photons.



**Figure.1.4 L'Absorption.**

L'énergie d'un photon est définie par l'équation  $h\nu = E_1 - E_2$ , on tire alors la fréquence :

$$\nu = \frac{E_2 - E_1}{h}, \text{ ou } h : \text{ Constante de Planck.}$$

On donne donc l'équation d'absorption :

$$I = I_0 e^{-kl} \quad (1.6)$$

$k$  : coefficient d'absorption,

$l$  : épaisseur du milieu.

L'accent est mis sur la constante  $k$ , si elle est positive, l'onde est amplifiée : l'émission stimulée l'emporte sur l'absorption. *C'est bien sure ce qui est commode pour le laser.*

L'équation (1.5) montre que la loi d'évolution de la réaction décroît d'une manière exponentielle.

Un tel laser a lieu, lorsqu'on a **inversion de population**, mathématiquement on écrit :

$$N_2 > N_1 \quad (1.7)$$

On est là dans un dilemme, tout simplement un tel cas de figure est contraire à la situation d'équilibre thermodynamique, alors que la population diminue lorsque l'énergie augmente selon une statistique défini par la loi de Boltzmann, comme dans la figure.1.5.

$$\frac{N_2}{N_1} = e^{\left( \frac{-E_2 - E_1}{K_b T} \right)} \quad (1.8)$$

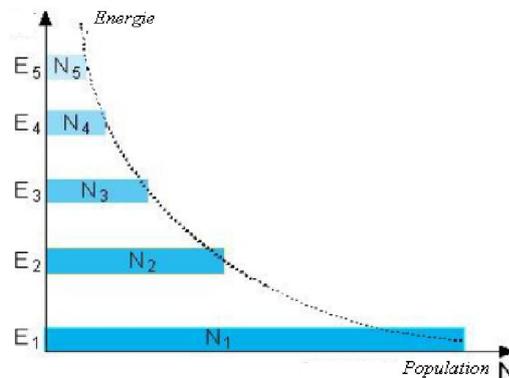


Figure.1.5 Distribution de Boltzmann.

Avec :

$E$  : Energie,

$T$  : Température,

$K$  : Constante de Boltzmann.

L'obtention d'un état hors équilibre ne peut être concrétisé qu'on jouant sur **la cinétique des gaz à l'échelle moléculaire**. Le schéma idéal consiste à alimenté en énergie le niveau supérieur 2 et ou le niveau inférieur 1 se dépeuple rapidement, là précisément on se confronte au phénomène inhérent et inévitable qui est : **la relaxation** qui vide le niveau 2 et remplit le niveau 1. *Toute l'astuce consiste à trouvé le juste milieu pour accomplir l'inversion de population.*

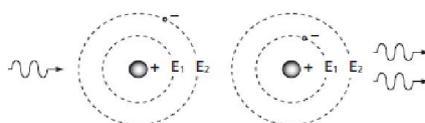
### 1.3.3 Emission Stimulée

Comme il à été énoncé au début du chapitre I, en se basant sur les travaux d'Albert Einstein concernant l'émission stimulé, phénomène *symétrique* de l'absorption, elle est réalisée par la présence d'énergie rayonnante de fréquence  $\nu_{21}$ . On note que l'émission stimulée possède une intensité qui est proportionnelle à la densité de l'énergie du rayonnement  $u_{\nu_{ji}}$ .

Comme il à été défini, cette émission est *symétrique à l'absorption*, donc pour un photon d'énergie  $h\nu = E_2 - E_1$  peut alors interagir avec le milieu et provoqué l'émission d'un autre photon ayant l'énergie  $h\nu = E_2 - E_1$  voir figure 1.6, le duo de photons ainsi libéré possède précisément les mêmes spécificités à savoir : l'énergie, longueur d'onde, direction, phase, polarisation de champ et en plus ils sont doublement cohérent dans le temps et l'espace.

Par similitude avec l'absorption on formule que pour l'émission induite on écrit :

$$\frac{dN_2}{dt} = -B_{21}N_2(t)\rho(\nu) \quad (1.9)$$



**Figure.1.6 Emission Stimulée.**

Avec :

$B_{21}$  : Coefficient d'Einstein,

$\rho(\nu)$  : Densité des photons ayant la fréquence  $\nu$ .

Comme on a définie dans la section 1.2, un laser est formé par les organes suivants :

- a) Un système de pompage,
  - b) Un milieu amplificateur,
  - c) Un résonateur.
- a) Le système de pompage peut être de différente nature, comme par exemple pompage optique constitué par un tube à flash, ou électrique formé par un arc électrique dans un gaz, et enfin un pompage chimique, réalisé par une réaction chimique exothermique dans un milieu gazeux : ainsi le pompage à pour fonction de peuplé le niveau émetteur et de réalisé l'inversion de population condition sin quoi non pour l'obtention de l'effet laser.
- b) Le milieu amplificateur peut être un gaz, un liquide ou un solide, ce milieu est l'instigateur de l'émission grâce aux particules (atomes de gaz par exemple) actives qu'il contient. Ce milieu amplificateur est placé dans une boîte dite de Fabry Perrot.
- c) Il est constitué de deux miroirs diamétralement apposés, l'un entièrement réfléchissant à la longueur d'onde laser, et l'autre partiellement opaque pour laisser sortir le faisceau laser de la cavité.

#### 1.4 La famille des lasers

Si on parle de type laser, on entame bien sure les milieux dans lesquels ils prennent naissance, pour ce faire on dit que tout les états de la matière constituent des milieux laser : solide, liquide et gaz. On résume la situation comme suit :

##### 1.4.1 Lasers à gaz.

C'est une catégorie de laser moléculaire "dit à gaz", comme le laser à dioxyde de carbone qui émis sur une longueur d'onde de  $10.6\mu m$  et  $9.4\mu m$ , on note que le

pompage de ces lasers est purement électrique dans le milieu amplificateur, et l'inversion de population se fait dans le résonateur pour donner le laser.

Le résonnement est pratiquement le même pour le laser moléculaire à monoxyde de carbone, qui à son tour oscille sur une longueur d'onde  $2.6 - 4 \mu m$  ou le pompage est réalisé à l'aide d'arc électrique dans le milieu amplificateur (comme l'azote entre autres), ou les applications sont l'usinage, la chirurgie et la spectroscopie.

Il reste seulement une particularité dans les lasers gaz, dit : laser à gaz dynamique (*GDL*), cette variante qui émet sur une longueur d'onde de  $10.5 \mu m$ , l'inversion de population se fait après les tuyères de détente sous un mélange d'azote et dioxyde de carbone, suivit de la relaxation dans le résonateur, avec ce genre de laser la puissance est de l'ordre de  $10-50 MW$ , ce qui lui confère une grande aptitude à servir comme arme en mode continu.

#### **1.4.2 Lasers chimiques.**

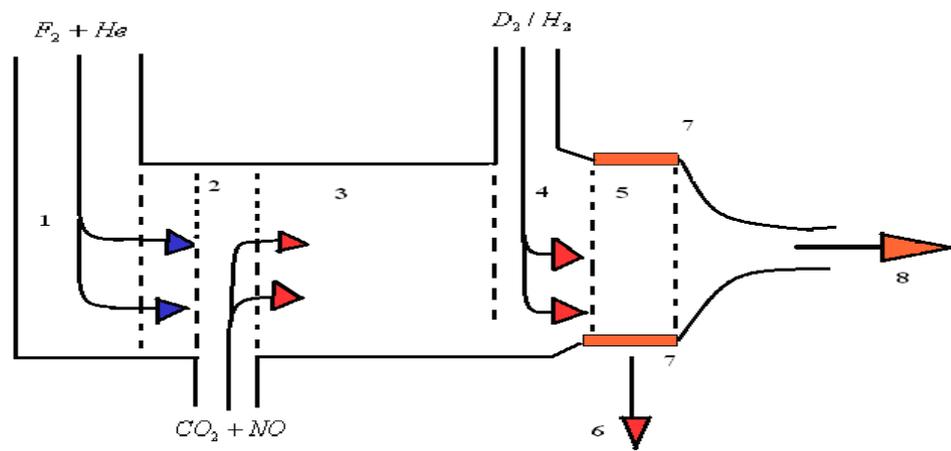
Ils sont en tant que arme à énergie dirigée, comme leurs noms l'indique ces lasers se développent dans milieux excités soient, en fluorure d'hydrogène : le laser sera nommé *HF* dont la longueur d'onde d'émission est  $2.7 - 2.9 \mu m$ , l'autre variante est laser au fluorure de Deutérium connu par *DF* sur une longueur d'onde de  $3.6 - 4.2 \mu m$ , et le troisième est bien sûr le laser chimique oxygène iodure en abrégé *COIL*, qui émet sur une longueur d'onde de  $1.315 \mu m$ .

Tout ces lasers, utilisent comme source d'excitation ou pompage une réaction chimique, de différents produits chimiques à l'état moléculaire, et l'enthalpie libérée permet la réalisation de l'inversion de population dans le résonateur, de plus une des applications des lasers chimique *HF/DF* est la traçabilité et le repérage des polluants atmosphérique qui ont un diamètre de  $3 - 4 \mu m$ , et ce derniers se superpose avec la longueur d'onde déjà précitée.

### 1.5. Constitution du laser.

Notre laser en question est constitué d'un ensemble d'accessoires, comme il est évoqué dans la figure.1.7. Dont la nomenclature est comme suit :

- a) Une première chambre de combustion où il sera lieu d'installer un système d'allumage à haut rendement électrique, tel qu'une bougie de chauffage, ou le fluor  $F_2$  moléculaire surchauffé se dissocie en atome,
- b) un système de ventilation de démarrage, s'amorçant juste après l'établissement de la combustion, pour permettre l'écoulement des gaz pendant la précombustion, cette étape est assurée par un système de pompe à vide pour instauré un vide préliminaire,
- c) un système d'injecteur pour introduire les gaz  $CO_2$  et  $NO$  juste au milieu de la première batterie de tuyères,
- d) une deuxième chambre de combustion, formée d'un bloc de tuyères ou les molécules de Deutérium/Hydrogène, rencontrent le  $CO_2$  et le fluor atomique entraîné par le courant de l'écoulement de fluide dans un mouvement de détente, là une auto inflammation se produit, l'enthalpie libérée par  $HF/DF$  transfert son énergie thermique au  $CO_2$ , qui, en se relaxant dans le résonateur par [transfert vibrationnel résonnant](#), pour donner le laser,
- e) un résonateur optique formé de deux miroirs  $M_1$  et  $M_2$ ,
- f) une pompe à vide à grand débit volumétrique, installée après le diffuseur d'échappement pour assuré l'évacuation les radicaux libres issues des réactions chimiques, afin de ne pas contaminé le milieu actif dans la cavité.



**Figure.1.7 Structure simplifiée du laser en question.  $D_2 / H_2$**

La nomenclature de la figure.1.7 est comme suit :

- 1- Générateur primaire;
- 2- Batterie de tuyères;
- 3- Enceinte d'écoulement;
- 4- Chambre de combustion avec tuyères de détente;
- 5- Milieu amplificateur;
- 6- Faisceau laser;
- 7- Miroirs;
- 8- Diffuseur vers l'échappement.

De plus le processus doit être accéléré par des réactions chimiques très rapides pour assurer un peuplement suffisamment conséquent des niveaux supérieurs pour les molécules effectuant la transition laser.

## Chapitre II

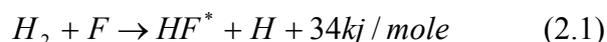
### Dynamique laser Et

### Cinétique Chimique

#### 2.1. Etat de l'art sur les lasers Chimiques.

Par construction les lasers chimiques sont tributaires de l'énergie libérée lors d'une réaction chimique exothermique pour produire l'inversion de populations. L'honneur revient en premier à Polanyi [1] de proposer un maser chimique 1960 en essayant une multitude de réactions chimiques et de prendre le meilleur des mélanges pour obtenir un nouveau procédé performant, la sélection se fait en choisissant le composé offrant le taux d'énergie le plus élevé dans les niveaux les plus excités, et facilitant l'inversion de population. Ainsi naquit l'idée de développer ce procédé [2], on suivant le progrès technique et théorique de l'époque [3], alors le laser chimique *HF* en mode continu voit le jour [5,6]. Physiquement la réaction chimique favorise la production d'état électronique ayant une grande énergie interne supérieure à leurs propres énergies à l'état stable ainsi le dépeuplement a lieu.

Débutant la compréhension du phénomène, on prenant le cas de l'atome de fluor avec la molécule d'hydrogène, le résultat de la réaction est le fluor d'hydrogène excité à l'état **vibrationnel**. La réaction est donc :



L'enthalpie libérée est transférée en état vibrationnel [7]

**N.B :** La réaction (2.1) est appelée réaction froide, du fait que ce type de laser émet sur des transitions de **vibration** et l'énergie cédée est de 130 *kJ/mole*, pour des  $\nu \geq 17$ , comparativement à la transition **vibration rotation** avec d'autres molécules, qui libère une chaleur beaucoup plus grande, *et on dit que la réaction est chaude*.

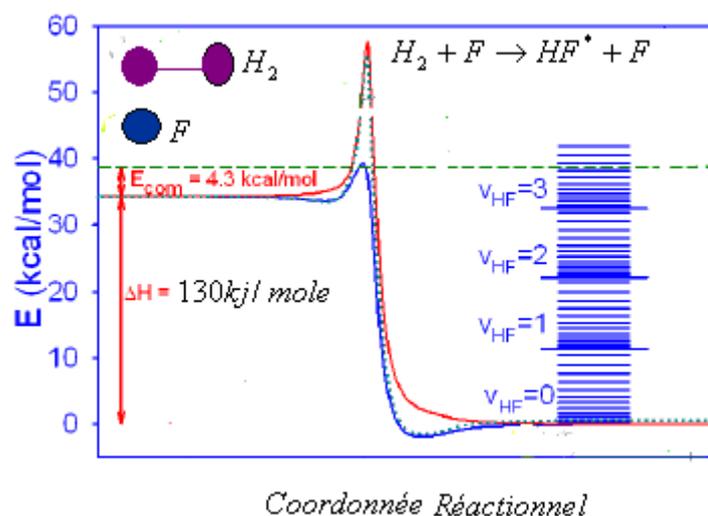
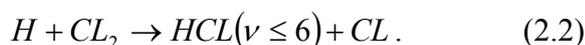


Figure.2.1 Schéma de la réaction de formation d' $HF$  [8].

De cette réaction découle que les différents niveaux vibrationnels sont à des barrières d'énergies de  $4.3 \text{ kcal/mole}$  ce qui accélère la production des atomes  $HF$ . Selon [9] les taux d'énergies dans les niveaux vibrationnels sont alors :  $12 : 20 : 6 : 1$  correspondant à  $\nu = 3 : 2 : 1 : 0$  ce qui veut dire que 31 % d' $HF$  produit se trouve au niveau vibrationnel  $\nu = 3$ . Le plus probable est le niveau vibrationnel à  $\nu = 2$  offrant une probabilité de 51% du laser probable, et seulement 3% des réactions restantes ont lieu pour  $\nu = 0$ , comme illustré dans la figure.2.1.

En clair, les choses se résument comme suit : l'inversion de population entre les différents niveaux vibrationnels peut être générée par la réaction chimique. En 1965 Pimentel et Kasper élaborent le premier laser chimique où la réaction d'initiation est l'acide chlorhydrique  $HCl$  et le pompage est à décharge électrique dans une lampe à flash [10], la réaction d'initiation est :



Produisant l'acide chlorhydrique à l'état vibrationnel atteignant le degré  $\nu \leq 6$ , utilisé en mode pulsé et transmettant des fréquences de  $3.7\text{-}4.0 \mu\text{m}$  en ultra violet. Dans la même foulée de découvertes on assiste à de nouveaux procédés tels que les lasers  $HBr$ ,  $DBr$ ,  $CO$ ,  $DF-CO_2$ , et les lasers chimiques à oxygène iodine ( $COIL$ ) opérant sur des longueurs de fréquences courtes.

En profitant largement de cet effort de recherche et développement (RD) une nouvelle génération de système laser voit le jour, en s'appuyant sur des domaines encore là restés appliquer à la discipline de la mécanique des fluides et la thermodynamique.

Molécule	kJ/mol
F <sub>2</sub>	156.9
Cl <sub>2</sub>	242.6
Br <sub>2</sub>	193.9
H <sub>2</sub>	436.0
HF	568.6
HBr	365.7
HCl	431.6
HI	298.7

**Tableau.2.1 Energie par moles des différents halogènes.**

Ainsi les grands pas réalisés dans les domaines des turbomachines et l'aérodynamique compressible supersonique, constituent un potentiel capital pour être exploiter dans la branche des lasers de puissance en mode continu émettant en infrarouge. Atteignant pour ces systèmes *HF/DF* des puissances de 0.4 MW [11]. Une telle énergie sème l'espoir de poussé encore plus loin la recherche dans les applications militaire et la séparation des isotopes. Le tableau 2.1 résume l'énergie par mole de différentes molécules halogènes, actrice dans les applications laser.

Pour les profanes, le terme halogène désigne les éléments chimiques des 17 ieme colonnes du tableau de Mendeleïev.

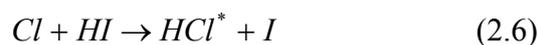
De plus cette investigation inclue aussi les réactions chimiques des molécules spécifiques et la maîtrise du processus d'inversion de population. Il est intéressant de donné les propriétés chimique de *HF*, c'est une *solution* aqueuse hautement corrosive et toxique, ayant une masse moléculaire relative de 20.01, ainsi il se congèle à -92.3 °C, il s'évapore à +19.4 °C, et enfin sa masse volumique est de 987 kg/cm<sup>3</sup> [12].

L'acide fluorhydrique  $HF$  est distillé par refroidissement à 77 °K, pompé à l'état de gaz et chauffé à une température telle que la pression atteint 30 torrs. Cette mixture est stockée à l'intérieur de réservoirs en acier inoxydable pour être injectée par des gicleurs à une vitesse supersonique.

## 2.2. Autres Lasers chimiques.

Dans cette catégorie de système on utilise souvent des réactions de substitution [13] conduisant à la constitution de molécules diatomiques dans des états de vibration excités asymétrique. De telles molécules sont dites : *centres actifs laser*, elles se désexcitent spontanément en assurant là aussi la désexcitation des autres molécules auxquelles elles transfèrent l'énergie de l'excitation (^).

On cite maintenant les réactions de substitution suivante (appelées réaction d'initiation), ou réactions de pompage :



L'initiation de telles réactions (mise en œuvre) exige forcément un apport initial d'énergie pour avoir des agents chimiquement actifs ( $F$ ,  $Cl$ ,  $H$ ), il faut avoir le bon sens de pouvoir accélérer le processus chimique, compte tenue que ce type de laser ne peut fonctionner qu'on régime de réaction extrêmement rapide assurant un peuplement suffisamment réussi du niveau supérieur des molécules effectuant la transition laser.

La cinétique de la réaction est une équation proportionnelle aux réactifs constituant la réaction, de plus pour activé la réaction on ait contraint d'avoir un grand nombre d'agent chimiquement actif.

N.B : Le signe (^) indique la faculté de réalisé directement ou indirectement l'inversion de population dans ce type de lasers.

### 2.2.1. Procédés d'initiation de la réaction ou Pompage.

Dans la pratique, différents procédés d'initiation ou d'amorçage, et d'accélération des réactions chimiques sont utilisés, c'est une réaction de dissociation des molécules pour obtenir des agents chimique à l'état atomique. Parmi ces procédés on a : initiation par la photodissociation, initiation par faisceau électronique, initiation thermique, et enfin l'initiation chimique.

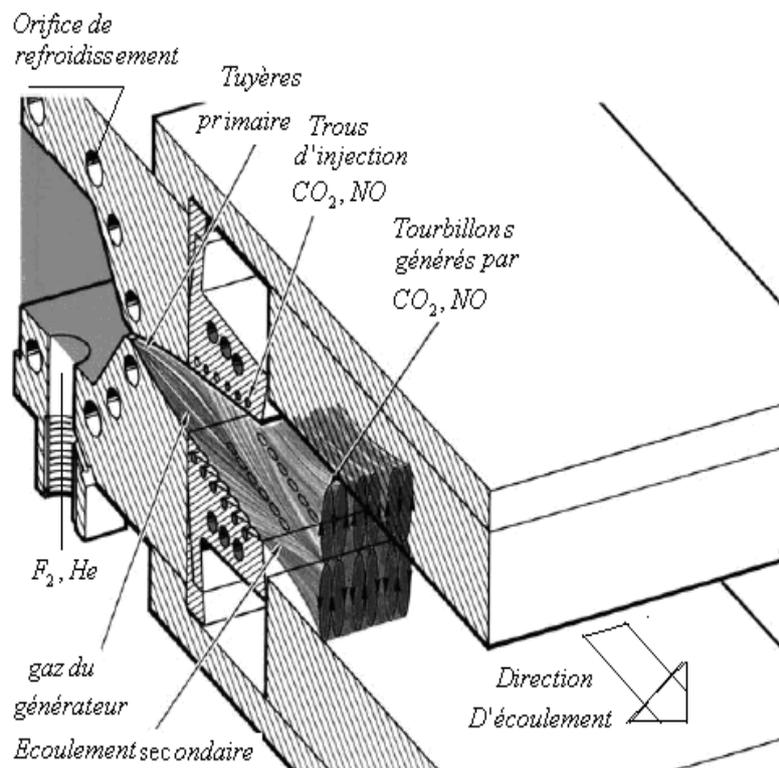
L'initiation par photodissociation utilise une source de rayonnement des tubes à éclair fait en quartz pour le pompage sur une longueur d'onde courte.

L'amorçage de la réaction est une décharge électrique autonome dans le gaz; mais remarque est faite concernant ce dernier, il n'est applicable que pour des pressions de services relativement basse. L'initiation par faisceau électronique permet d'amorcer la réaction en un temps record de l'ordre  $10^{-8}$ - $10^{-7}$  secondes (de l'ordre du femto seconde), dans le cas d'une décharge autonome la durée de l'impulsion est moins  $10^{-6}$  secondes.

Et enfin pour l'initiation thermique, est lié à la dissociation thermique des molécules, ce procédé est adéquat pour les lasers à gaz dynamique (GDL), signe caractéristique de ces derniers, on a un échauffement du gaz pour avoir un écoulement très rapide du fluide gazeux. [14][15].

Une multitude de procédé permettant de réalisé le pompage, parmi lesquels on cite : l'utilisation de système d'arc électrique, qui élève la température dans la chambre qui contient l'agent chimique sous forme moléculaire, pour facilité sa décomposition en forme d'atome, ceci d'une part.

D'autre part on enclenche une combustion on utilisant des hydrocarbures ( $C_2H_2$ ,  $CH_4$ ,  $JP8$ ), et d'oxydant pour établir un écoulement supersonique, qui traverse un milieu constitué d'une batterie de tuyères servant à instauré un environnement de détente dans les paramètres physiques tels que, la température, la vitesse, et la pression, se référés à la figure.2.2.



**Figure.2.2 Ecorché du générateur primaire.**

Durant sa migration le milieu actif est brassé avec d'autres éléments, comme le  $N_2$ , ou  $H_2O$  ou  $He$  servant à la fois d'accélérateur de peuplement, jusqu'à aboutir dans la cavité pour établir l'émission stimulée.

La réaction de pompage :



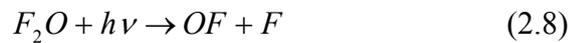
En entrant en réaction avec le fluor moléculaire, l'oxyde d'azote sous une température de  $400^\circ\text{C}$  et la pression de 10 bar, se transforme en radical stable  $NOF^*$ , qui est un agent chimiquement actif, obtenu par la réaction (2.7) pour obtenir le fluor atomique.

On note une petite parenthèse pour expliquer le choix porté au gaz mono oxyde d'azote  $NO$ , dans la vie quotidienne il est utilisé pour la réalisation de mélange étalons utile au contrôle de pollution atmosphérique et des gaz de combustion. Il est employé notamment pour fabriquer l'acide nitrique, et stabilisant de l'éther de méthyle.

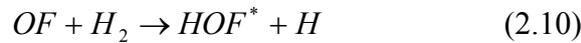
Pour notre cas, les qualités qui lui requiert ce choix reviens au faite que sa limite d'explosivité, il est inoffensif dans l'air, sa demi vie 1-3 Secondes; mais forme des mélanges explosifs avec l'ammoniac, le sulfure de carbone, les hydrocarbures chlorés, et enfin avec le fluor atomique : objet de notre thèse.

### 2.2.2 Pompage pour générer le Fluor.

En 1968 Gross et al [16] pour réaliser une réaction en chaîne de  $HF$ , ils utilisant comme élément naturel la molécule de bi fluor d'oxygène soumise à une source de lumière  $h\nu$ , comme le flache d'un arc électrique, la séparation se fait selon la réaction:



Et la réaction ne s'arrête pas là, mais l'atome de fluor est mélangé à la molécule d'hydrogène selon la transformation :

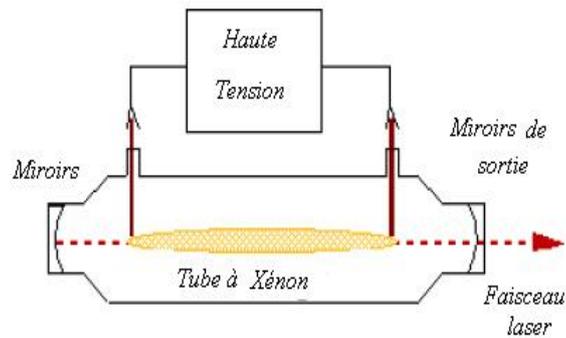


Et l'atome d'hydrogène est utilisé pour finalement démarrer la réaction en chaîne selon l'initiation suivante :



Les réactions (2.8) jusqu'à (2.11) sont des réactions exothermiques, d'un point de vue thermique, elles permettent la formation de la molécule d' $HF$  à l'état excité.

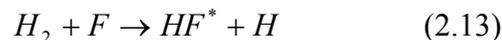
Dans ce genre de système chimique l'inversion totale de la population est possible, à condition que la réaction chimique se fasse suffisamment vite par rapport à la dissipation de température, mais malheureusement le phénomène est limité par le rendement du tube à flache de xénon, comme illustré dans la figure.2.3.



**Figure.2.3** Système d'excitation à décharge électrique.

L'avancement des recherches conduit à l'élaboration de systèmes plus élaborés faisant intervenir les écoulements supersoniques, alors Spencer et al [17], le mélange de  $N_2$  et  $SF_6$  est chauffé à une température de  $2000^\circ K$  au moyen d'un système utilisant le principe de l'arc électrique afin d'obtenir l'atome de fluor après sa séparation de la molécule de l'hexafluorure de soufre.

Le mélange ainsi obtenu est fait circuler en expansion à travers des tuyères tout en le mélangeant à l'hydrogène selon la réaction :



De cette innovation, quelques éléments entrent en action pour assuré la réussite; parmi lesquels on a :

L'écoulement supersonique est maintenu de la sorte que, durant la dilatation des gaz, la zone de mélange coïncide avec la cavité du résonateur et retarde la recombinaison des atomes de fluor. Ceci d'une part, d'autre part le taux de dilution important empêche l'élévation effrénée de la température qui augmente avec l'écoulement de là, le faible gradient de température prépare le milieu pour enclenché le phénomène de l'inversion de population.

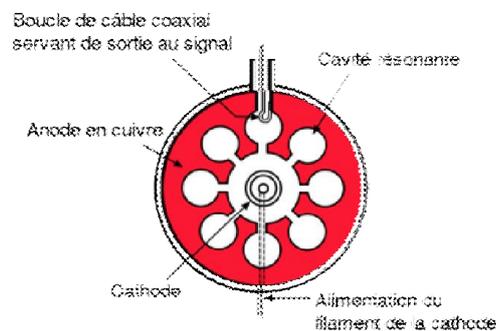
Dans la même logique de recherche et développement, une troisième voie est utilisée pour l'obtention de l'atome de fluor, c'est le procédé chimique selon Cool [18]. Mélangeait  $NO$  et  $F_2$ , cette méthode élimine le besoin d'un système de tube à

xénon et celui de l'arc électrique, pour laissé l'espace libre à un nouveau procédé plus élaboré, fiable, performant, et sure.

Bien sùre ce procédé fait impliquer les molécules de  $HF/DF$  à l'état vibrationnelle couplés subtilement et efficacement avec le gaz  $CO_2$  excité à l'état vibrationnel lui aussi.

Le transfert vibrationnel d'énergie de  $DF$  à  $CO_2$  est avantageux dans le cas ou les molécules à l'état excité au niveau vibrationnel  $\nu(001)$  pour  $CO_2$  donne l'effet de relaxation, *sans nulle doute que le  $DF$  est parti favori dans cette compétition, probablement parce que son énergie donne un meilleur transfert à la molécule de  $CO_2$ .*

Aussi Basisio et Coll [19] ont utilisés le procédé de magnétron, figure.2.4, pour produire les atomes de fluor à partir d'une décharge dans une mixture  $SF_6+He$ , une telle technique présente les avantages suivant :

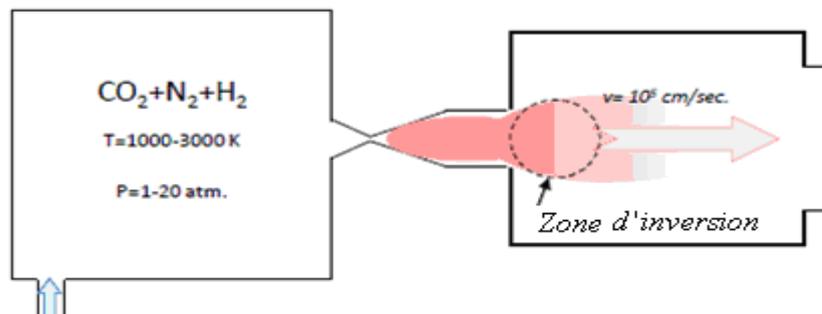


**Figure.2.4** Système d'excitation par Magnétron.

- \* Le taux de dissociation obtenu est élevé, l'efficacité chimique du laser est de 3 % et considéré comme satisfaisant pour l'obtention des atomes de fluor,
- \* L'absence d'électrodes à l'intérieur de la chambre de combustion élimine l'éventualité de contamination du plasma, de plus le tube à décharge est simple est moins onéreux,
- \* Le facteur sécurité est élevé car le générateur à micro-onde ne comporte pas de source de haute tension.

Dans le même état d'esprit, Gregg et al [20] utilisait un système hétérogène de composés moléculaire qui va être dissocié sous l'effet de la haute température avec un tube à électron délivrant une puissance de 1.2 Mev et une pression de 100 mm de colonne de mercure, en à laps de temps de l'ordre 50 nanosecondes en mode pulsé.

Basov, Oraevskii [21] [22], et Shimoda [23], réalisent différents types de lasers chimique à pompage moléculaire, leurs idées est résumé par Gerry [24], qui réalisât un laser délivrant une puissance de 60 Kilowatts au moyen d'un pompage thermique et qui suscitât un grand intérêt scientifique à l'époque de son invention, se référé à la figure.2.5.



**Figure.2.5 Laser à gaz dynamique supersonique  $\text{CO}_2$ .**

A l'instar des lasers chimique, dans les lasers moléculaires l'excitation est non sélective *ce qui ne permet pas de réaliser l'inversion de population*, conséquence d'une relaxation et enfin apparition d'une transition laser, pour ce faire on fait appel à une astuce en augmentant le mélange des ingrédients constituant le milieu par l'élévation de température en régime vibrationnel.

La technique utilisée par Gerry est la rapide expansion des gaz chauffés par les trous calibrés sous forme de tuyères, dans un écoulement supersonique, pour généré les conditions de non équilibre précurseur à l'inversion de population. La séquence du phénomène est comme suit, en premier lieu le mélange  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}_2$  avec un catalyseur par exemple  $\text{H}_2\text{O}$  ou  $\text{He}$ , qui sont chauffés de manière à atteindre l'état vibrationnel, un tel mélange s'écoule en expansion à travers les tuyères, cependant en remarque que le temps de relaxation vibrationnel est relativement

long par rapport au temps caractéristique de passage des gaz à travers les tuyères, pour finalement se détendre entièrement dans la cavité afin que le faisceau laser prend naissance.

Pour la réalisation indirecte de l'inversion de population, les molécules diatomiques excitées provenant de la réaction chimique transfert par résonance l'énergie d'excitation aux molécules poly-atomiques.

D'une autre manière, l'inversion de population s'établi sur des transitions vibrationnelles des molécules froides de  $CO_2$  qui forment le volume utile, c'est sous l'effet du transfert résonnant de l'énergie des molécules chaudes résultant du système de pompage. Le transfert d'énergie aux molécules de  $CO_2$  à pour but l'excitation la plus bénéfique des vibrations asymétriques sur les niveaux (00 $\eta$ ) .

Le carburant utilisé est  $N_2F_4-H_2$  et  $NF_3-H_2$  l'inconvénient de ce procédé est que la température subit une augmentation exponentielle en dehors de la chambre ce qui entraîne le ratage du processus laser, mais la décomposition du combustible est bel est bien réalisée, pour obtenir le fluor atomique à partir de la molécule fluor composé.

On utilisant la dissociation thermique, de la molécule fluor  $F_2$  ou d'un autre constituant de la même famille fluoré mais moins toxique, comme le  $NF_3$ , on réalise dans un réservoir fermé, la combustion de  $F_2$  (très souvent avec excès comparativement aux coefficients stœchiométriques), avec l'hydrogène  $H_2$  ou le deutérium  $D_2$  en ajoutant un gaz diluant, tel que l'hélium qui sert à diminué la température du mélange à 1900°K sous une pression d'environ 4bars, la composition du mélange est :  $F=10\%$ ,  $HF=15\%$ ,  $He=75\%$  et aussi, pour  $F=10\%$ ,  $DF=15\%$ ,  $He=75\%$ . [25]

### **2.3. Mécanisme Réactionnel.**

Nous essayons maintenant d'entamer une section très importante dont la compréhension du phénomène de réactions chimiques, qui s'opère à l'intérieur de

la chambre de mélange, les composants sont sous forme de gaz, on dit que *la réaction est homogène*.

D'un point de vue chimique, on suit donc le phénomène à l'échelle moléculaire, tout en essayons de donner la loi des concentrations et sa variation au court du temps, les particules réagissant (atomes, ions ou molécules) sont approximées à des sphères.

Le processus est comme suit :

La molécule  $F_2$  (en réalité on parle d'un phénomène de chauffage au début du générateur, cette opération est assurée par un dispositif tel que système de chauffage, arc électrique magnétron, tube à flache, en un mot plus simple, un système permettant la dissociation de la molécule en atomes). Sont dissociées et rencontrent, la molécule  $HD$  il va y avoir un phénomène de collision, suivit d'un phénomène de combustion, qui brisent les liaisons covalentes formant les atomes ou molécules, et on a libération d'une grande quantité d'énergie qui, à son tour débute un long processus en chaîne.

Cette introduction nous interpelle le sens que si les collisions au sein du milieu gazeux sont efficaces ou non, pour ce faire on doit connaître le nombre de chocs entre les atomes  $F_2/HD$  par rapport au temps, on dit alors qu'une collision est probable lorsque les centres des sphères sont distants de  $r=r_1+r_2$ .

La molécule  $HF/DF$  se meut à la célérité  $v_m$  à la seconde et parcourt l'espace  $x_m$ , toute molécule de réactant  $HD$ , dont le centre se trouve à la distance  $r$  du centre de l'atome  $F$  heurte l'atome, d'une autre façon l'atome de  $F$  frappe toute les molécules de  $HD$  dont les centres se trouvent dans un cylindre de rayon  $r$  et de longueur  $L_m$ .

Le nombre global de molécule de  $F$  dans un cylindre de volume  $V$  est :

$$n_{F_2} = \frac{[F_2] N_{Avog} \cdot V}{1000}$$

Où  $[F_2]$ : désigne la concentration d'atome de Fluor en mole/cm<sup>3</sup>;

$N_{Avog}$  : Le nombre d'Avogadro;  $N_{Avog}=6.02.10^{23} mole$

$$V = \pi r^2 v_m [cm^3]$$

$v_m$  : Vitesse de l'atome.

$n_{F_2}$  : Le nombre de molécules de  $F_2$  qui percute par seconde un atome de  $HD$ , si  $[HD]$  est la concentration de réactant, le nombre total de collision par unité de temps et par  $cm^3$  :

$$Z = n_{F_2} \cdot [HD] \cdot N_{Avog} = \frac{N_{Avog}^2 \cdot \pi \cdot r^2}{1000} v_m \cdot [F_2] [HD]$$

Si on admet que pour toute collision, on a une réaction, la vitesse  $v$  de la réaction sera :

$$v = \frac{Z}{N_{Avog}} = \frac{N_{Avog} \pi r^2}{1000} v_m \cdot [F_2] [HD]$$

Cette expression peu être écrite sous la forme  $v = k[A][B]$ , on identifiant l'expression ci-dessus à celle de  $v$ , on obtient alors :

$$v = k \cdot [F_2] [HD]$$

Ou :

$$k = \frac{N_{Avog} \pi r^2}{1000} v_m [cm^3/mole.s]$$

Un ordre de grandeur est donné pour mieux comprendre le phénomène, pour un rayon  $r = 3.2 \text{ \AA}$ , et la vitesse  $v_m = 320 m/s$ , dans les conditions standard de températures et de pression. Donc  $k=7.3.10^{-12} cm^3/mole.s$ , la figure.2.6 donne les constantes d'équilibre pour quelques atomes halogènes, en fonction de la température, cela montre à quel point les lasers chimiques de la famille  $HF/DF$  ont une cinétique très rapide ce qui limite leurs temps de relaxations qui se répercute sur leurs efficacités.

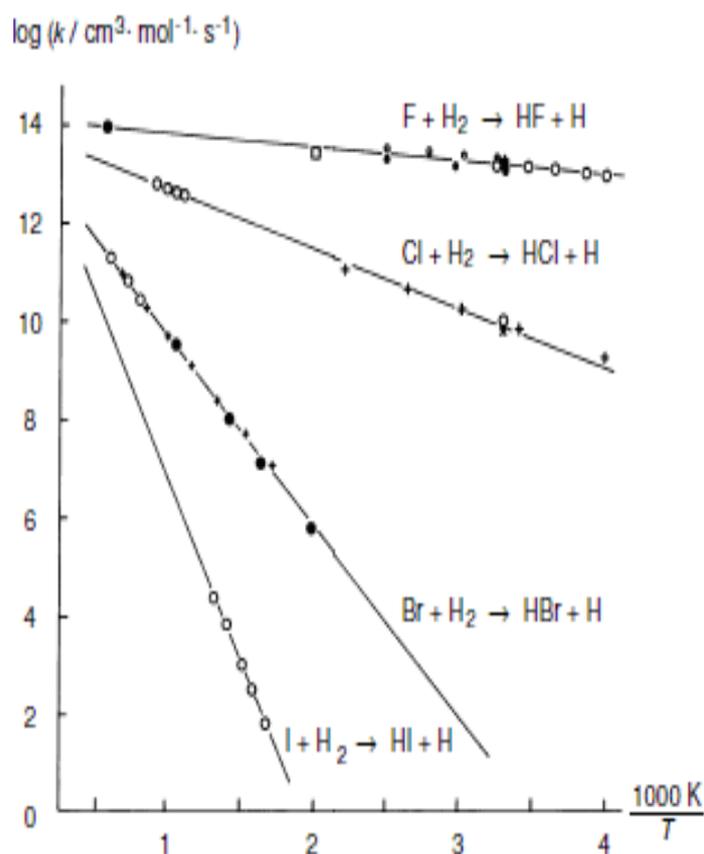


Figure.2.6 Constantes d'équilibre pour les atomes halogènes. [26]

On se ramène maintenant à parlé de la nature des chocs qui s'opèrent à l'intérieure du milieu constituant la réaction, on fait intervenir l'idée de chocs efficace, et chocs inefficace.

L'échelle logarithmique stipule que la constante d'équilibre  $k$  varie comme :

$$\log k = 1/\sqrt{T} .$$

Selon ce résultat, si dans le réactif on a une mole  $F_2$ , et une autre mole d'atomes de  $HD$  dans  $1000 \text{ cm}^3$ , la réaction consommera un temps de  $1,6 \cdot 10^{-11}$  secondes, chose improbables d'un point de vue réaction chimique. Dans la réalité les choses se passent un peu plus au ralentie, du faite que les réactions utilisent un temps de l'ordre de  $10^{-11}$  secondes.

Dans un choc inefficace, il y a simplement un échange d'énergie cinétique, alors la relation  $Z = n_{F_2} \cdot [HD] \cdot N_{Avog} = \frac{N_{Avog}^2 \cdot \pi \cdot r^2}{1000} \cdot v_m \cdot [F_2] \cdot [HD]$  n'exprime pas vraiment la valeur de la réaction chimique, mais seulement le taux globale de collisions entre les molécules  $F_2$  et  $HD$ , ce pourquoi la vitesse d'une réaction chimique *est relative aux concentrations, facteurs géométrique (dit facteur stérique) facteurs énergétique (énergie d'activation), et à la température.*

### 2.3.1 Facteur stérique.

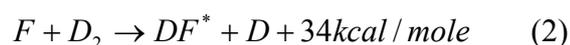
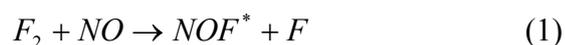
Les molécules ne sont pas toute à fait sphériques, mais elles sont un peut plus compliquer que ça, les chocs ne seraient efficace que si les molécules coïncident sous des angles bien privilégiés, on fait intervenir le facteur  $P$  nommé facteur stérique qui redéfinie la vitesse en fonction de collision efficace selon la relation :

$$v = P \frac{Z}{N_{Avog}}$$

C'est selon la complexité de la molécule et sont orientation dans l'espace (milieu) que le facteur stérique dépend, en général il oscille entre  $10^{-1}$  pour des réactions formées de petites molécules et  $10^{-5}$  pour des réactions constituées de molécules complexes. On remarque alors selon l'équation donnant la valeur de la vitesse, que le facteur stérique joue un rôle diminutif ou inhibiteur pour l'efficacité des collisions.

### 2.3.2 Energie d'activation.

Prenant le cas des réactions :



Pour que la réaction (2 ou3) se mis en place, il est nécessaire que l'énergie acquise lors d'un choc par la molécule  $F/D_2$  ou  $D/F_2$ , soit suffisante pour

augmenter l'amplitude des vibrations inter atomiques et permettre la recombinaison d'atome de deutérium avec un atome de fluor.

Le surplus d'énergie, acquise au moment du choc par la molécule  $D_2/F_2$  est appelé énergie d'activation  $E_a$ , qui est l'énergie qu'une collision doit impulser aux réactifs pour que la réaction puisse avoir lieu.

Lors des collisions, l'atome de fluor apporte l'énergie cinétique  $E_{ea}$ , et l'atome de deutérium ramène l'énergie cinétique  $E_{cb}$ , la réaction se produit si la résultante des deux énergies cinétiques formant les réactifs de la réaction soit supérieure ou égale à l'énergie d'activation, on écrit donc :

$$E_{cA} + E_{cB} \geq E_a$$

En faisant appel à la loi de répartition de Maxwell Boltzmann dans un repère à deux dimensions, la quantité de particules qui à une énergie cinétique de  $E_c$  et  $dE_c$  est donnée par la formule :

$$\frac{dn}{n_0} = \frac{1}{RT} e^{-(E/RT)} dE_c$$

Avec  $E_c$  : énergie cinétique [ $kcal / mole$ ]

La quantité qui à une énergie supérieure à  $E_a$  est :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta n}{n_0} &= \int_{E_a}^{\infty} \frac{1}{RT} e^{-(E/RT)} dE \\ &= - \left| e^{-(E/RT)} \right|_{E_a}^{\infty} = e^{-(E_a/RT)} \end{aligned}$$

Et la vitesse à pour expression :

$$v = P \cdot \frac{Z}{N_{Avog}} \cdot e^{-(E_a/RT)} [A][B]$$

On écrivant la relation de la vitesse en fonction de la concentration :

$$v = k[A][B]$$

$k$  : Constante de vitesse  $cm^3/mole.s$

Egalisant maintenant les deux expressions de vitesse, il s'ensuit que :

$$P \cdot \frac{Z}{N_{Avog}} = A$$

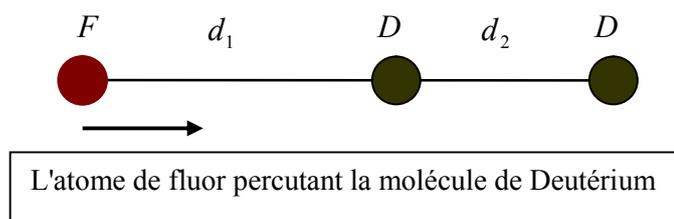
Enfin on obtient :

$$k = A \cdot e^{-(E_a/RT)}$$

Cette relation, démontrée ici analytiquement, n'est autre que la formule vérifiée expérimentalement par **Arrhenius**.

Pour mieux assimiler la signification de l'énergie d'activation, on fait intervenir la théorie du complexe activé, cette dernière permet de trouver  $E_a$  en utilisant la mécanique quantique, et aussi de calculer  $A$  d'après la thermodynamique et la mécanique statistique.

Pour se mettre au diapason, on se réfère à la réaction (2), pour faciliter la compréhension, on suppose que l'atome de fluor et la molécule de deutérium ( $F$  et  $D_2$ ) sont alignés à tout instant selon une droite. La question est comment l'énergie potentielle de ce couple se comporte lorsque l'atome de fluor s'approche de la molécule  $D_2$ , comme montré dans la figure.2.7.



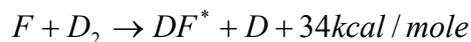
**Figure.2.7 Schématisation du complexe activé pour  $F + D_2$ .**

La distance  $d_1$  est plus grande que  $d_2$ , l'énergie potentielle reste constante quand  $d_1$  diminue, cela explique aussi que les forces intermoléculaires de Van Der Waals peuvent régressées légèrement, au fur et à mesure que  $d_1$  diminue. Pour faciliter l'assimilation, on note que si la valeur de l'énergie fournie par la réaction

pour rompre la liaison est de plusieurs centaines de kilojoules/moles (cas des liaisons covalentes et ioniques), ou quelques dizaines de kilojoules/moles (liaison hydrogène, de Van Der Waals).

L'expérience a prouvé que l'énergie potentielle est maximale quand  $d_1 = d_2 \approx 1.5 \overset{0}{A}$ , on établit donc que le système qui possède l'énergie potentielle maximale est le **complexe activé**.

Dans cette situation là, l'atome fluor  $F$  central est lié de part et d'autre aux atomes de deutérium. Lorsque l'atome de Deutérium s'approche, l'atome de fluor se repousse progressivement du côté inverse, un complexe activé se constitue entre les deux niveaux (on dit aussi état de transition), ainsi, si la réaction a lieu, le deutérium continue inexorablement de s'éloigner suivant la ligne centrale et l'énergie potentielle du système diminue pour atteindre une valeur constante qui est l'énergie libérée lors de la réaction selon le schéma formant le produit de la réaction :



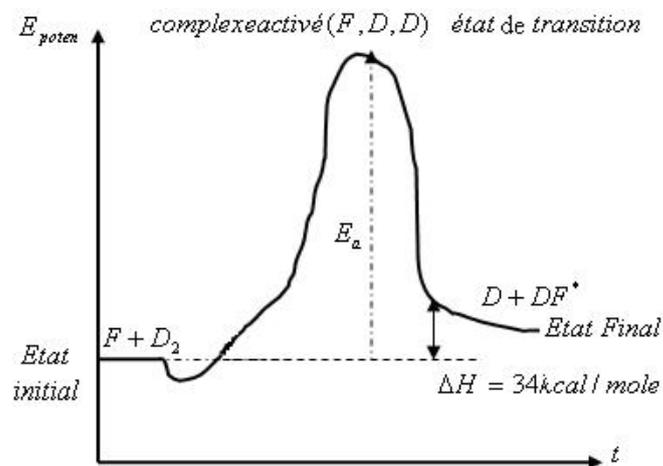
Lors de la rencontre entre les réactifs  $F$  et  $D_2$  les collisions se produisent à des laps de temps infiniment petits, et on suppose qu'elles sont efficaces, les molécules qui interagissent en perdant leurs identités pour former un complexe transitoire, dans cette situation le deutérium change d'un état moléculaire à l'état atomique, suivi du radical  $D$ , tandis que si le choc est inefficace ou élastique, elles maintiennent à tout instant leurs identités sans se dissocier, la réaction exothermique ne peut avoir lieu, voir la figure.2.8

Comme il a été établi dans la théorie de la cinétique chimique, les réactions élémentaires se classent selon leurs degrés de molécularité, c'est-à-dire selon le nombre de particules qui entrent en collision dans le milieu, ainsi on distingue les réactions :

\_ Mono moléculaires;

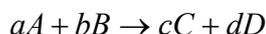
\_ Di moléculaires;

\_Tri moléculaires.



**Figure.2.8 Diagramme d'énergie de la réaction  $F + D_2$ .**

Dans notre thèse les ingrédients initiaux sont  $F_2$ ,  $D_2$ , mélangés à des molécules tels que  $CO_2$ ,  $He$ ,  $NO$ , d'une manière simple on assiste alors à des réactions chimiques de type di moléculaire, où on se propose définir les caractéristiques soit la réaction tels que :



Les réactifs sont les corps des membres gauche de la réaction soit  $A$  et  $B$ , par contre les produits sont les composants des membres droits  $C$  et  $D$  de la réaction, durant l'amorçage de la réaction les quantités de réactifs diminuent au fur et à mesure que le temps s'écoule, par contre, les quantités de produits augmentent.

#### 2.4. Dynamique de la réaction en chaîne $HF/DF$ .

Pour les lasers chimiques les réactions utilisées sont en chaînes, c'est-à-dire le centre chimiquement actif se constitue durant la réaction. Prenant le cas du mélange des molécules  $H_2$  et  $F_2$ , sont injectés par des trous, ou il y a pompage par élévation de température, et par suite on a formation de centres actifs pour notre cas, c'est le Fluor  $F$  : la réaction (2.3) donne  $F + H_2 \rightarrow HF^* + H$ , la réaction en chaîne produisant un nombre suffisamment important de centres chimiquement actifs, un tel processus peut devenir tellement rapide afin d'assurer l'oscillation sur les transitions de vibration dans les molécules  $HF^*$ .

Au cours de la réaction ses centres actifs doivent se conservé et se multiplié pour englobé le maximum possibles de molécules contenue dans le mélange  $H_2$ ,  $F_2$  et de généré un nombre important de centre actif laser  $HF^*$ .

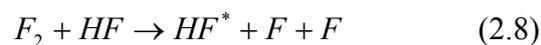
Là on transforme en rayonnement optique cohérant une quantité considérable de potentiel chimique se trouvant dans le mélange stœchiométrique  $F_2+H_2$ , couvrant largement l'énergie consommée pour produire les centres chimiquement actifs.

Du fait de la relaxation le nombre de centres actifs diminue, par conséquent on introduit la notion de *longueur laser de la chaîne*  $\nu_1$  [27]), comme un rapport de la vitesse de production des centres actifs des lasers excités sur la vitesse de relaxation de ces mêmes centres.

En règle générale  $\nu_{chim} > \nu_1$ , ce pourquoi le rendement d'un laser chimique est déterminé par ce discriminant  $\nu_1$ . Une diminution brutale des centres chimiquement actifs, de surcroît la relaxation peuvent constitués une barrière de limitation des performances de la réaction en chaîne : aboutissant à une rupture pure et simple de l'émission du rayonnement cohérant.

Pour élucider cela on prend le cas du mélange  $Cl+H_2$ , se spécifie par une si petite longueur laser  $\nu_1$ , qu'il est considéré hors réaction en chaîne, contrairement si on substituant le chlore par le fluor qui est un agent plus actif, le processus sera en chaîne.

Le phénomène laser pour être rallongé dans le temps, pour ce faire il y a lieu de remplacé des réactions simples, par des réactions en chaînes *ramifiées*, c'est-à-dire des réactions qui garantissent une duplication *étalée* des centres chimiquement actifs. Bien entendu dans les conditions requises de pression et température le mélange  $F_2+H_2$  peut devenir le siège des réactions chimiques suivantes :

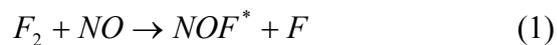


L'équation (2.8) est l'illustration parfaite d'un exemple de réaction en chaînes ramifiée, qui stipule qu'on part d'une réaction à deux corps pour aboutir à des produits de réaction à trois corps, qui constitue un centre chimiquement inactif.

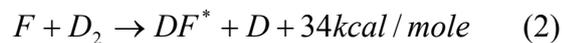
### 2.5. La réaction en chaîne.

Pour que le processus s'établisse, il est préliminaire qu'on aura besoin de combustible, pour notre cas l'oxydant comme le Fluor et carburant comme le Deutérium ou l'hydrogène, les références ci après définissent cet état d'esprit pour le cas du Fluor, ainsi Tal'roze [28], Batovskiy [29] Vasil'yev [30], définissent les mécanismes suivant.

- initiation de la réaction :



- production de molécules de  $DF$  :



- production d'atomes de fluor par réaction de branchement :

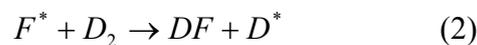


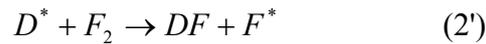
La réaction (1) initie le processus, par contre les autres équations (2) et (3) aboutissent à la production de molécules  $DF^*$  excitées à l'état vibrationnelle et à un nombre d'atomes de fluor plus nombreux que ceux obtenue par la réaction (1) lors du pompage dans la première chambre de combustion. Il est à remarqué que l'émission laser pour ces réactions n'est pas impossible, mais elle est si médiocre du faite que l'inversion de population est si faible.

La réaction globale doit être ralentie par l'ajout d'oxygène ou un autre gaz neutre tel que l'hélium pour éviter une explosion précoce, tout l'avantage de ce type de laser est qu'il ne demande pas d'énergie pour l'amorçage, mais seulement une faible quantité d'atomes de fluor suffisant pour démarrer la réaction.

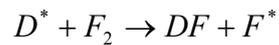
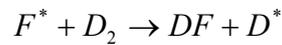
Les radicaux  $F^*$  amorcent alors une succession de réactions à savoir :

Propagation :



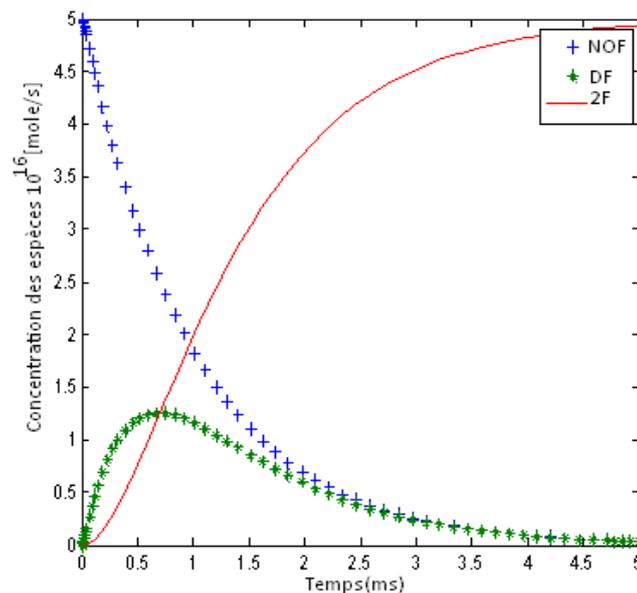


Ainsi de nouveau on a :



En premier lieu, si on a la molécule  $F_2$  avec une molécule quelconque tel que  $NOF^*$ , apporte à la molécule  $F_2$  l'énergie d'activation nécessaire pour provoquer sa rupture on dit que cette phase est l'étape d'initiation ou d'amorçage.

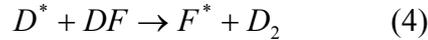
Cette réaction (3) est exothermique après addition de  $D_2$  mais relativement lente, vu que sont énergie d'activation  $E_a=98Kcal/mole$ , l'usage du fluor et l'hydrogène produit une flamme et cette mixture s'embrase, en l'occurrence l'usage de réactifs thermo neutre (comme l'hélium, l'azote, l'eau) dans ces réactions ne peut qu'accélérer d'avantage la cinétique.



**Figure .2.9 Variation des concentrations de la réaction en chaîne.**

Ainsi de suite jusqu'à la consommation totale du comburant et du carburant, d'un point de vue chimique la réaction (3) régénère l'atome de fluor, qui sera consommé par la réaction (2). Un tel mécanisme où les particules acteurs de la réaction sont périodiquement renouvelées est nommé *réaction en chaîne*.

La réaction réciproque de (2) intervient aussi à la propagation de la chaîne on écrit alors :



On note aussi que l'ensemble des réactions déjà précitées à savoir (2) et (3) constituent ce qu'on appelle un maillon de la chaîne, ou  $F^*$  et  $D^*$  sont les porteurs de la chaîne, force est de noter que la propagation de la chaîne est rapide avec un tempérament hautement explosif en tenant compte de toutes les conséquences inhérente au phénomène de combustion dans un régime largement sonique.

Ce pourquoi l'énergie d'activation des réactions (2), (3) et (4) est faible à cause de l'intervention des radicaux dans les processus réactionnels; en l'occurrence la concentration en  $F_2$  et  $D_2$  est significative et ces molécules contribuent à chaque étape élémentaire de la réaction, on note aussi que de temps à autre les porteurs de chaîne disparaissent lors de réactions de rupture de chaîne, une telle coupure s'opère lorsqu'on a le schéma :



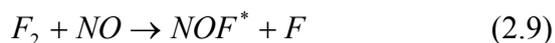
Avec bien sûr  $M$  une molécule qui neutralise l'énergie cédée par la recombinaison des atomes, la chaîne se propage par additions successives des radicaux aux molécules de fluor et de deutérium. Toute réaction entraînant une recombinaison des radicaux libres, provoque la rupture pure et simple de la chaîne, donc du processus d'approvisionnement en combustible.

On dit qu'une telle réaction est à trois corps, très complexe à gérer du point de vue cinétique de la réaction, parmi les composants qui forment  $M = He, Ar$ .

## 2.6. Conversion de l'énergie chimique en énergie cohérente.

On a exprimé le vouloir de notre thèse dans l'introduction, c'est donc un laser à gaz dynamique, chauffé par l'énergie issue de la réaction chimique  $HF/DF$ , les molécules excitées sont produites par un mélange rapide des gaz à haute température. Les réactions mises à contribution sont alors :

- Réaction d'initiation pour avoir l'atome de fluor,

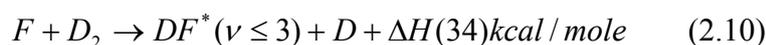


$$k = 7 \times 10^{-13} e^{-1150/T} \text{ cm}^3 / \text{ mole.s} [31]$$

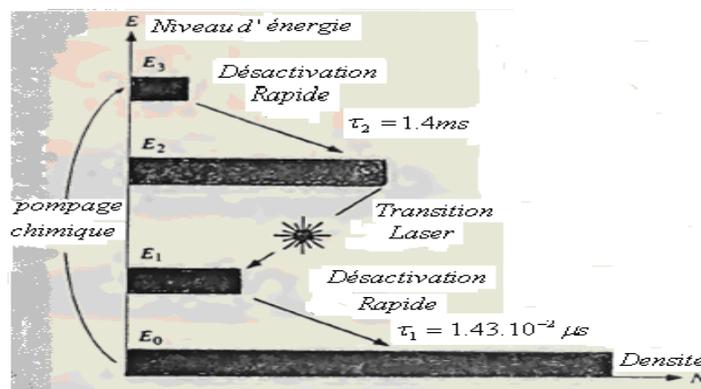
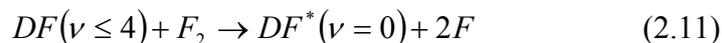
Ce n'est pas l'unique processus qui se mis en place durant la formation du fluor atomique, il y a aussi d'autres réactions qui s'impliquent, *NO* et les gaz diluant (notre cas c'est l'hélium, pour prévenir tout risque d'explosion précoce ou non contrôlée), on assiste ainsi une variation décroissante des atomes de fluor selon le schéma réactionnel : [31].

Aboutit à la formation du fluor atomique, qui est un agent chimique actif.

- Genèse des molécules *DF*



- Production d'atomes de fluor par réaction en chaîne



**Figure.2.10 Illustration du phénomène laser avec les désactivations.** [32]

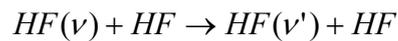
Les temps de relaxation pour la première désexcitation est :  $\tau_1 = 1.44 \cdot 10^{-2} \mu s$ , [33]

Pour la deuxième désexcitation est :  $\tau_2 = 1.4 ms$ , la différence dans le temps, c'est pour permettre à la transition laser de s'opérée comme montrer dans la figure.2.10.

L'Hydrogène et le Deutérium sont de parfait attracteurs de réaction pour l'application au laser, car la cinétique de réaction est lente, ce pourquoi le

pompage ou le processus collisionnel pour produire  $HF^*/DF^*$  à l'état excité par procédé de réactions en chaînes, et la désactivation se fait d'elle-même, ou le retard d'apparition de ces molécules à l'état excité par collisions pour arrivé au niveau fondamental est relativement lente, on écrit donc les réactions qui s'opèrent dans le processus réactionnel :

\*Self relaxation par le niveau fondamental (désactivation)  $\nu=0$ .



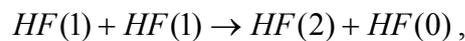
Transfert vibrationnel on a :  $HF(\nu) + HF(0) \rightarrow HF(\nu-1) + HF(1)$ ,

La constante d'équilibre  $k = (1.8 \pm 0.3) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{mole} \cdot \text{sec}$  [34]

\*Self relaxation pour le niveau supérieur (désactivation)  $\nu \geq 0$  :



Pour  $\nu=1$  la réaction devient :



Et la constante d'équilibre s'écrit :  $k(300^\circ K) = 3 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{mole} \cdot \text{s}$  [35]

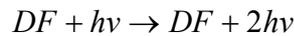
\*Désactivation V-V avec  $H_2$ .



C'est une réaction endothermique car l'énergie est du côté des réactants, l'échange ne peut avoir lieu puisque la réaction est tellement rapide, que le transfert vibrationnel fait défaut, on a :  $k = 0.52 \pm .10^{-12} \text{ cm}^3/\text{mole} \cdot \text{sec}$  [36]

*Cette inertie dans l'échange d'énergie entre les niveaux est un problème inhérent de ce genre de milieu, fait qu'on s'oriente vers une autre forme de laser chimique, comme dans notre cas. Cette lenteur dans les réactions permet un meilleur mélange, pour préparer le milieu constitué de molécules, à converger dans un état quasi vibrationnelle.*

**La réaction de conversion en énergie laser pour  $DF$  :**



**La réaction de conversion en énergie laser pour  $HF$  :**



**2.7. Le laser gaz dynamique à  $CO_2$  (laser moléculaire).**

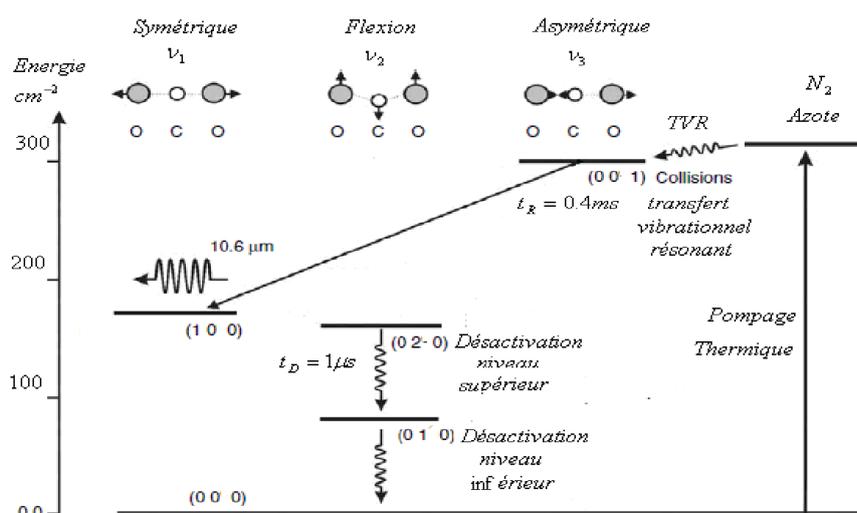
C'est un milieu actif utilisant les gaz  $CO_2-N_2$  mélangés dans des proportions adéquates, chauffés à des températures très élevées (de l'ordre de  $2000^\circ K$ ) pour permettre la libération de l'énergie potentielle emmagasinée dans les degrés de libertés du composé se trouvant dans son état stable.

Donc l'excitation se fait thermiquement (le choix de la molécule  $CO_2$  viens du faite qu'elle possède une vie radiative exceptionnellement longue, de l'ordre de 10 secondes, de plus l'autre molécule  $N_2$  aura le temps nécessaire de transféré son énergie à son partenaire  $CO_2$ ), voir figure.2.11.

Comme on l'a cité dans l'équation (1.8) " $\frac{N_2}{N_1} = e^{\left(\frac{-E_2 - E_1}{K_b T}\right)}$ " cet équilibre s'altère sous l'effet de la haute température selon une statistique de Boltzmann, donc on assiste bien à un peuplement prononcé des niveaux supérieure, mais qui n'implique pas nécessairement l'inversion de populations.

Pour obtenir cette relaxation (c'est réalisation contraire à l'équilibre thermodynamique, on fait appel au phénomène de refroidissement), on utilise des sections géométriques calibrées ayant la forme d'un diffuseur, permettant d'assuré une détente des gaz chauds (nuance est faite entre une tuyère à écoulement subsonique et supersonique).

D'un point de vue mécanique des fluides, on parle de tuyères de détente et non de tuyère thermopulsive (à réaction) car le but est d'avoir seulement une chute (adiabatique) de température et de pression, pour que la relaxation ait lieu, par suite on a conversion en énergie électromagnétique cohérente et invisible.

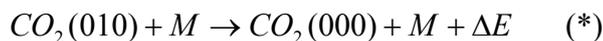


**Figure.2.11 Diagramme Energétique  $CO_2-N_2$ .**

La figure.2.11 donne les niveaux d'énergie graduellement croissante d'un laser à 4 niveaux, pour le  $N_2$  au premier niveau (001) indexé1, et les niveaux 1(100)"symétrique", 2(020)"déformation", 3(001)"asymétrique" pour le  $CO_2$ . On remarque que le niveau d'énergie 3(001) du gaz carbonique est proche de son homologue  $N_2$  (niveau de vibration)  $\nu = 1$ , ce qui découle que durant la rencontre entre les molécules  $CO_2-N_2$ , un échange d'énergie colossale ait lieu de sorte que le niveau 3(001) se trouve hautement peuplé.

Dans le processus vibrationnel le capital est la désexcitation du niveau (010) car elle contrôle la désexcitation des niveaux plus bas (100) et (020) des transitions laser. Cela peut être écrit sous la forme de réaction chimique [37], l'équation (\*) donne le pompage pour un laser moléculaire.

Le schéma réactionnel s'écrit : Pompage, pour l'azote :



On substituant  $M$  par  $N_2$  la vitesse de réaction  $k=5.10^{-15} cm^3/mole.s$  [21], c'est une réaction modérément lente, par contre si on remplace  $M$  par  $He$ ,

La réaction de pompage pour l'hélium s'écrit alors :



Et la vitesse de la réaction est :  $k=1.2.10^{-13} \text{ cm}^3/\text{mole.s}$ , l'ajout de l'hélium au mélange  $\text{CO}_2\text{-N}_2$  permet de diminué le temps radiatif du niveau inférieur et par suite régressé sa population. Les modes  $\nu_1$  et  $\nu_2$  sont en équilibre thermodynamique pour une température  $T_{\nu_1}=T_{\nu_2}$  voisine de la température  $T$  du milieu, ce qui implique que les populations des niveaux sont régies par une distribution de Boltzmann, donc les populations des modes  $\nu_1$  et  $\nu_2$  sont cautionnées par la population du niveau 010.

L'inversion de population se mis en place entre les niveaux d'énergie 3(001) du  $\text{CO}_2$  et le niveau 1(100), de manière que l'oscillation laser par résonance s'établie sur une longueur d'onde  $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$ .

Il en est de même pour l'autre transition du niveau 3(001) au niveau 2(020) se fait aussi par **résonance** et donne là encore un effet laser sur une longueur d'onde  $\lambda = 9.6 \mu\text{m}$ .

De plus on assiste à l'émergence de transitions radiative sous forme de désactivation, pour les transitions (100) et (020) qui atterrissent au niveau (010), donc ce même niveau constitue une étape critique et charnière pour la relance du dépeuplement et l'amorçage de la relaxation.

L'accent est mis sur la transition (100) qui constitue un point crucial dans le laser à  $\text{CO}_2$ , la relaxation se fait selon un mécanisme d'échange d'énergie cinétique aux molécules de  $\text{He}$  (et dans d'autres cas on utilise l'eau  $\text{H}_2\text{O}$ ) ou la nature des collisions est inélastiques entre les molécules de  $\text{CO}_2$  au niveau (010) et les additifs subtilement injectés dans le mélange pour catalysé la réaction d'inversion de populations.

**Le dioxyde d'azote aide a peuplé les niveaux supérieurs pendant le pompage thermique, par contre l'hélium facilite le dépeuplement des niveaux laser inférieur par accélération des collisions.**

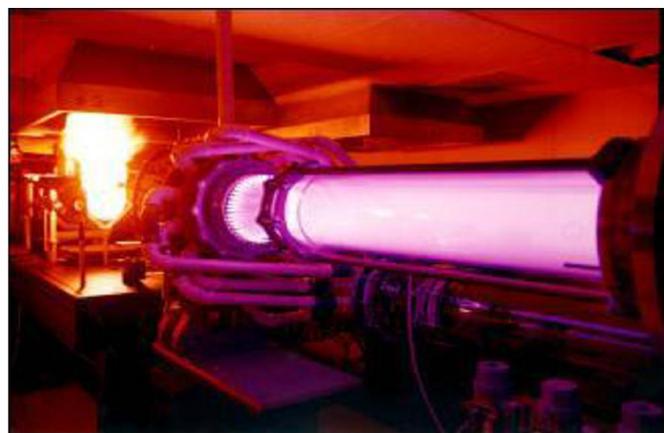
Comme milieu actif on utilise  $\text{CO}_2\text{-N}_2$  ou  $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$  ( $\text{He}$ ) dont la composition centésimale est donnée par le tableau 2.2.

Sous l'effet de la température et l'interaction entre les molécules  $CO_2-N_2$  qui s'entrechoquent et s'excitent, l'énergie cinétique issue des vibrations libérée se transforme en énergie cohérente, comme illustré par la figure.2.12.

% stoechio $CO_2:N_2:He$ ou $H_2O/$	$T_0$	$P_0$ atm
7.5 :91.3 :1.2	14 00	17
10:40:50	1200- 3400	13-18
12:34 :54	800- 2200	2 -16
22:73:5	1200- 1550	10
10:30:60	2000- 4000	100
6.8:68.2 :25	2000	1000
10:20:70	1460	8.4
$CO_2 :N_2 :He$	1400- 1700	5-10
25 :50:25	650	
5 :15 :80	2100	85
$N_2$ $CO_2+He$	2000- 4000	10

**Tableau.2.2 Coefficients stœchiométrique pour GDL. [38]**

Les molécules  $CO_2-N_2$  sont particulièrement favorables à cette transformation, et donnent un rendement quantique de l'ordre de 80% à condition que les électrons aient une énergie de 1-2 eV [39], Le dioxyde de carbone  $CO_2$ , aboutit dans la cavité, avec des niveaux inférieurs quasi non peuplés, le transit par les tuyères procure au milieu actif une détente pour assuré l'amorçage de la relaxation.



**Figure.2.12 Laser dynamique à  $CO_2$  en fonctionnement.**

Cette séquence est rendue possible grâce à la molécule de dioxyde d'azote  $N_2$ , dans ce passage il est plus que capitale que  $CO_2$  en état vibrationnel excité traverse les tuyères, pour se désexciter dans la cavité par résonance et donné la transition laser (figure.2.13), le schéma réactionnel pour la conversion en énergie cohérente est :



Où la vitesse de réaction est [39]  $k=6.10^{-13} cm^3 /mole.s$ , cette réaction constitue un grand handicap, car le temps manque pour le transfert  $V-V$  de la molécule  $N_2$  à la molécule de  $CO_2$ .

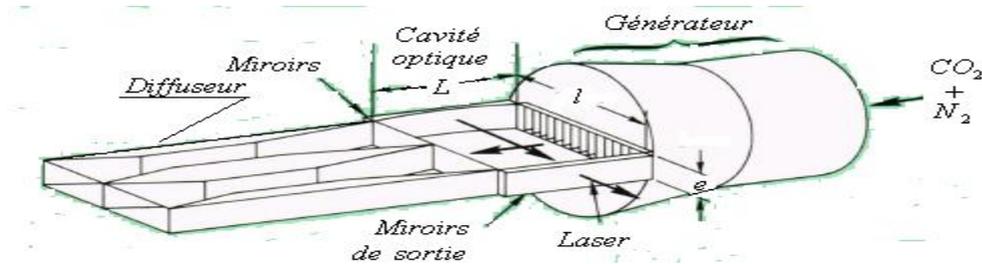


Figure.2.13 Photo d'artiste d'un laser dynamique à  $CO_2$ .

## 2.8 Spectroscopie vibrationnelle.

### 2.8.1 Energie de vibration

Les valeurs propres obtenues à partir de la résolution de l'équation de Schrödinger, dans le cadre de l'hypothèse que l'oscillateur est harmonique c'est-à-dire les particules se comportent comme des ressorts, l'énergie de vibration est définie par [40].

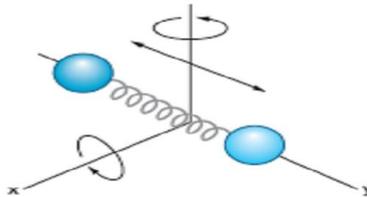
$$E_v = \left( v + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega \quad (2.13)$$

Avec :  $\omega = \sqrt{\frac{k}{m}}$  ou  $m$  est la masse de l'oscillateur, et  $v$  est un nombre entier positif.

Tel que  $\nu = 0,1,2,3,4,5\dots$  ce nombre entier  $\nu$  représente les niveaux vibrationnels quantiques occupé par le ressort.

Dans le cas des lasers à écoulement  $CO_2-N_2$  ou l'échange collisionnel en mode V-V est largement prépondérant pour les bas niveaux, il en ait de même pour les transitions résonantes qui demeurent sélectives sur ce type de mode. Pour donner un ordre de grandeur énergétique, *chaque électron possède 40 vibrations et 200 rotations.*

Parmi les molécules diatomiques, on cite le monoxyde de carbone  $CO$ , ou l'azote  $N_2$ , à des états vibrationnelle très excités donnant une énergie considérable selon le schéma quantique donné par la figure.2.14.



**Figure.2.14 Molécule diatomique pour générer de l'énergie.**

Dans le cadre des molécules poly atomiques, il est à considéré la possibilité que les atomes oscillent autour de leurs positions moyennes au sein de la molécule, ces vibrations peuvent être engendrées par les chocs moléculaires [41].

Dans le cas des molécules triatomique on écrit donc :  $3(p-1)-r$  cela revient à dire que les mouvements à l'intérieur de la molécule sont formés par la superposition de  $3(p-1)-r$  vibrations principales.

Justement pour notre cas on a une molécule de  $CO_2$  qui est linéaire donc :  $(3N-5)=4$  degrés de libertés d'oscillations. Au premier on a une **vibration symétrique linéaire**, au deuxième on attribue une **vibration dissymétrique linéaire**, aux deux derniers une **vibration plane dite de déformation**.

Lors des collisions entre les molécules, de même espèce ou non, on assiste à deux formes d'échanges :  $HF(\nu) + M \rightarrow HF(\nu - 1) + M + \Delta E$  échange V-T : vibration-translation, HF perd un quantum de vibration pour être transformé en

chaleur. Le deuxième échange :  $HF(\nu) + AB(0) \rightarrow HF(\nu - 1) + AB(1)$  échange  $V$ - $V$ , ou le quantum de vibration d' $HF$  est transféré à la vibration de la molécule  $AB$  de fréquence voisine.

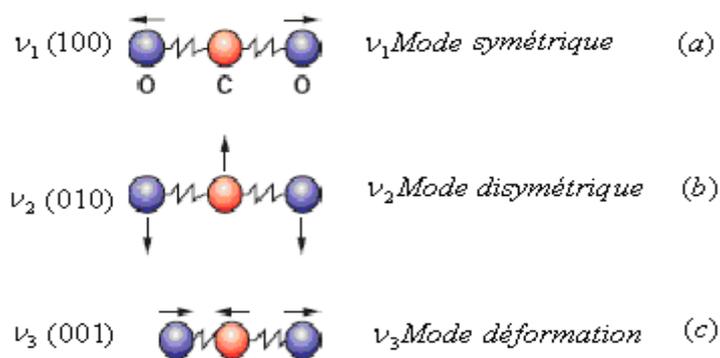
Les fréquences de ces vibrations sont désignées respectivement par  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  : tel que on écrit :  $\bar{h}\omega_1 = 0.163eV, \bar{h}\omega_2 = 0.078eV, \bar{h}\omega_3 = 0.276eV$

(Fréquences déterminées par l'analyse spectrale), on constate que  $\omega_1 = 2\omega_2$ . Les états vibrationnelles de la molécule  $CO_2$  sont désignés par les nombres quantiques de vibration à savoir :  $\nu_1, \nu_2$  et  $\nu_3$ . Sont égaux à la multiplicité d'excitation ordonnée des vibrations voir figure.2.15, symétriques (a), dissymétriques (b), et déformations (c). A titre d'exemple on prend l'état vibrationnel (020), par analogie à ce qui vient d'être dit, on déduit donc :

( $\nu_1 = 0, \nu_2 = 2, \nu_3 = 0$ ). L'explication à cela c'est, qu'on ait dans un état où les vibrations déformation sont excitées doublement, alors que les vibrations symétriques et asymétriques ne sont pas excitées, on ajoute à cela pour chacune des vibrations, on peut leur associer une température caractéristique de vibration.

Ces vibrations ou modes de vibrations sont classifiés par noms spécifiques :

- Stretching (ou élongations/contractions d'une liaison covalente entre 2 atomes) ;
- Bending (ou ouverture/fermeture de l'angle formé par trois atomes liés par 2 liaisons covalente successives) ;
- Torsion (ou mouvement de rotation autour d'une liaison covalente centrale entre 4 atomes successifs).



**Figure.2.15 Les modes vibrationnels de la molécule  $CO_2$ .**

$$\theta_{\nu_1} = 1830^\circ K (\text{mode } \nu_1 \text{ symétrique})$$

$$\theta_{\nu_2} = 960^\circ K (\text{mode } \nu_2 \text{ flexion})$$

$$\theta_{\nu_3} = 3280^\circ K (\text{mode } \nu_3 \text{ asymétrique})$$

Pour des températures  $\theta_\nu$  modérées [41], seuls les niveaux inférieurs sont peuplés d'une manière importante et le modèle d'oscillateur harmonique est considéré, de plus pour ce des molécules diatomique en particulier, donne une meilleur approche du contenu de l'énergie de vibration. Dans la plage des températures modérées, les collisions vibrationnelles- vibrationnelle (VV) sont les plus probables pour les bas niveaux les plus peuplés. Nuance pour les niveaux élevés, les collisions translation vibrationnelle sont les plus prépondérantes sous l'effet des températures élevées.

S'agissant des molécules de constitution complexes, il y'a plusieurs modes de vibration et ce proportionnellement à l'atomicité de la molécule considérée.

Dans le cadre des molécules triatomiques linéaires, on considère en premier lieu, la contribution de chaque mode, ainsi pour le  $CO_2$ , il y'a trois modes de vibration : symétrique, dissymétrique, et déformation.

Ainsi, toute molécule symétrique ne peut absorber dans l'infrarouge, puisque par définition de symétrie il n'y a pas de vibration de dipôle.

De même, une molécule linéaire comme le  $CO_2$  à un mode vibration de stretch symétrique qui ne peut absorber en infrarouge, puisque par définition la vibration de ce dipôle pour ce stretch symétrique est nulle. Par contre toute autre mode non

symétrique de  $CO_2$  peut absorber en infrarouge (on sous entend le mode asymétrique), donc source éventuelle d'une émission cohérente.

Par exemple, le mode vibration de stretch asymétrique conduit effectivement à une variation du dipôle, donc à une absorption de lumière infrarouge. On parle ainsi en spectroscopie infrarouge de mode actif et inactif.

A la lumière de ce qui vient d'être dit, on considère le cas de la molécule triatomique, telle que  $CO_2$ . Cette molécule à l'arrangement géométrique  $O = C = O$  (\*) comme indiquée par la configuration spatiale (\*), qu'on assimile à un oscillateur harmonique, ou les fréquences sont :

$$\omega_1 = 4,165.10^{13} \text{ Hz}$$

$$\omega_2 = 1,047.10^{13} \text{ Hz}$$

$$\omega_3 = 2,00.10^{13} \text{ Hz}$$

On peut décrire le mouvement relatif des trois atomes en fonction des oscillations normales. Cas de l'asymétrie, *les atomes d'oxygène oscillent en phase, l'atome de carbone se déplace en sens inverse pour conserver la position du centre de gravité.*

Donc :  $\omega_1 = 4,165.10^{13} \text{ Hz}$ , c'est-à-dire  $4,165.10^{13}$  vibrations à la seconde, par contre pour d'une molécule non linéaire ou si elle à plus de trois atomes, comme c'est le cas de la molécule de l'eau  $H_2O$  ou l'atome d'oxygène est au sommet d'un angle de  $105^\circ$  et les atomes d'hydrogène de chaque côté, les vibrations normales sont données :

$$\omega_1 = 10,96.10^{13} \text{ Hz}$$

$$\omega_2 = 11,27.10^{13} \text{ Hz}$$

$$\omega_3 = 4,78.10^{13} \text{ Hz}$$

Pour le cas du gaz carbonique  $CO_2$  toujours, nous n'avons que trois valeurs de températures [41] à savoir : L'expression donnant la chaleur spécifique à pression constante et à volume constant est :

$$(C_v)_{vibr} = (C_p)_{vibr} = R \left[ E\left(\frac{\theta_1}{T}\right) + E\left(\frac{\theta_2}{T}\right) + E\left(\frac{\theta_3}{T}\right) \right] \quad (2.14)$$

Où  $E$  : La fonction d'Einstein.

$R$  : constante de gaz parfait.

L'expression de la chaleur de vibration de la molécule  $CO_2$  est alors :

$$(C_v)_{vibr} = R \left[ E\left(\frac{1830}{T}\right) + E\left(\frac{3280}{T}\right) + 2E\left(\frac{960}{T}\right) \right]$$

L'énergie vibrationnelle est déterminée à l'aide de l'équation (2.13) avec un développement de Taylor du deuxième ordre, on écrit donc :

$$E(v, J) = \omega(v + 1/2) + X(v + 1/2)^2$$

Les valeurs types de l'énergie de vibration pour les molécules d' $HF/DF$ , sont résumées dans le tableau.2.3, sachant que  $\omega, X$ , sont respectivement les fonctions harmonique et anharmonique décrivant les niveaux d'énergie.

		HF	DF
$\omega$	<i>Terme linéaire vibrationnel</i>	4138.73	3000.358
$X$	<i>Correction anharmonique</i>	-90.05	-47.34

**Tableau.2.3 Energies de vibration  $HF/DF$ . [43]**

### 2.8.2 Le système en question.

Le laser en question à la séquence de démarrage suivante :

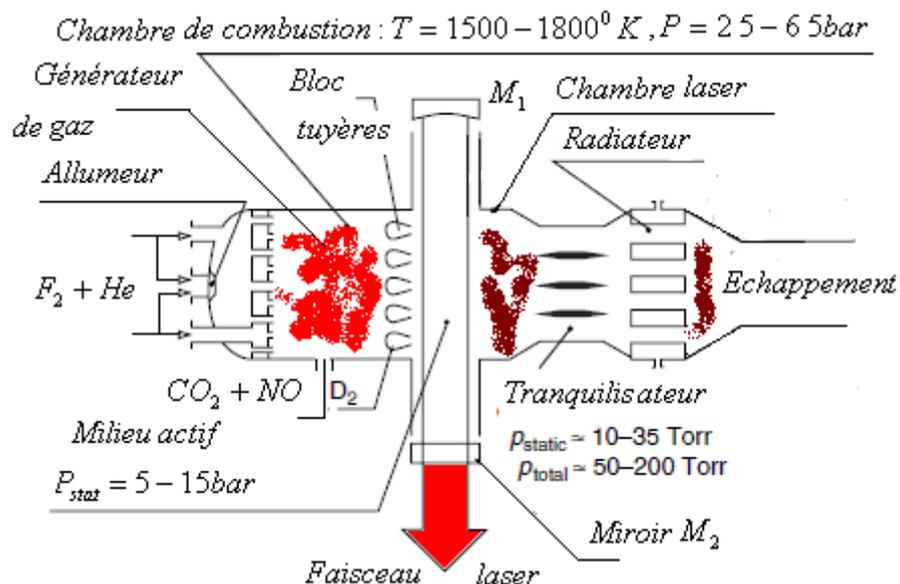
Le processus d'amorçage commence par injecter dans la chambre du générateur le composé di fluor et hélium voir figure.2.16, le mélange est porté à une température de  $350^\circ C$  à l'aide d'un dispositif d'allumage à l'instar des systèmes qui

équiper les moteurs Diesel, le mouvement du mélange se fait à l'aide d'une pompe à vide à haut débit, dans leurs trajet, on fait injecter du  $CO_2$  et  $NO$ , à ce moment précis il y a établissement d'une réaction chimique à savoir :



$$k = 7 \times 10^{-13} e^{-1150/T} \text{ cm}^3 / \text{ mole.s.} \quad [44]$$

Le  $NO$ , se trouvant en réalité dans les conditions standard de température et de pression, est un radical stable, en interagissant avec la molécule de di fluor  $F_2$ , on a élévation de température de l'ordre de  $1000^\circ\text{C}$ , qui conduit à la formation du fluor atomique chimiquement actif (réaction de dissociation).



**Figure.2.16** Schéma simplifié d'un laser  $HF-DF-CO_2$ .

On obtient ainsi à la sortie des tuyères un mélange riche en fluor  $F$  froids ( $T < 800^\circ\text{K}$ ) et à faible pression ( $P < 50 \text{ torrs}$ ), pour réaliser la réaction de pompage c'est une réaction d'auto inflammation, qui se produit pour scinder la molécule du di fluor en fluor atomique, initialement cette dissociation s'opère sous l'effet de la température, et pression adéquate, ainsi l'abaque de la figure.2.17 montre la transformation de la molécule de  $F_2$ , pour les basses pressions au déca  $0.3 \text{ PSI}$ , la molécule se dissocie fortement jusqu'à une valeur de  $70 \text{ pc}$  pour une température  $1500^\circ\text{K}$ , par contre au-delà de cette valeur la décomposition commence à chuter

drastiquement pour converger vers un composant entièrement non dissocié et inefficace.

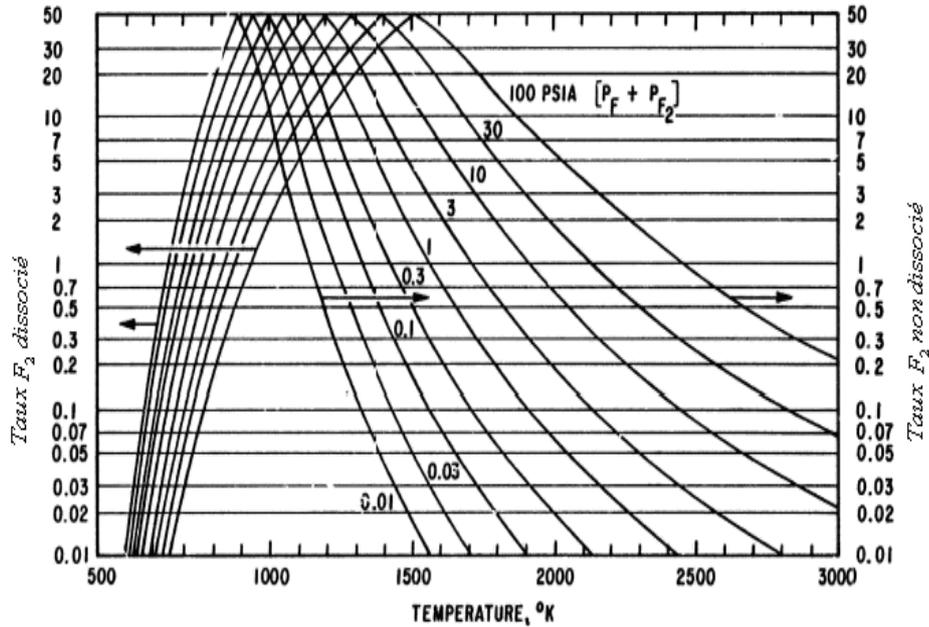
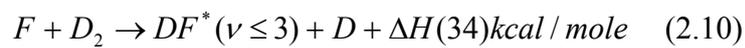


Figure.2.17 Dissociation du Fluor avec la Température. [45]

Ou, le taux de décomposition dans le générateur est donner par :

$$\alpha = \frac{[F]}{[F_2] + [F]}$$

Le CO<sub>2</sub> récupère la chaleur de la réaction dans le courant de l'écoulement et sort de la chambre de combustion, c'est alors qu'on injecte le D<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>, avant le bloc de tuyères qui en réagissant avec le fluor atomique issu de la réaction de dissociation, le schéma réactionnel est :



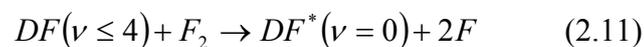
On note bien que l'énergie emmagasinée dans les atomes de F issue de la dissociation n'est pas totalement exploitable car les paramètres thermodynamiques, température et pression sont tellement élevés qu'ils sont néfastes pour la cavité. On fait alors subir au mélange gazeux brûlant une détente très rapide pour éviter néanmoins la recombinaison des atomes F en F<sub>2</sub>, cette

décélération rapide s'opère à travers des blocs de tuyères très petites qui abaissent la température et la pression du fluide.

L'ajout du deutérium  $D_2$  (2.10), il s'ensuit alors une réaction en chaîne (2.11), qui libère une enthalpie, durant son parcours il traverse les tuyères, à la sortie de ces dernières, on a la réaction :



Qui à leurs tours vont se dupliqués infiniment pour produire des atomes de fluor selon la réaction en chaîne :



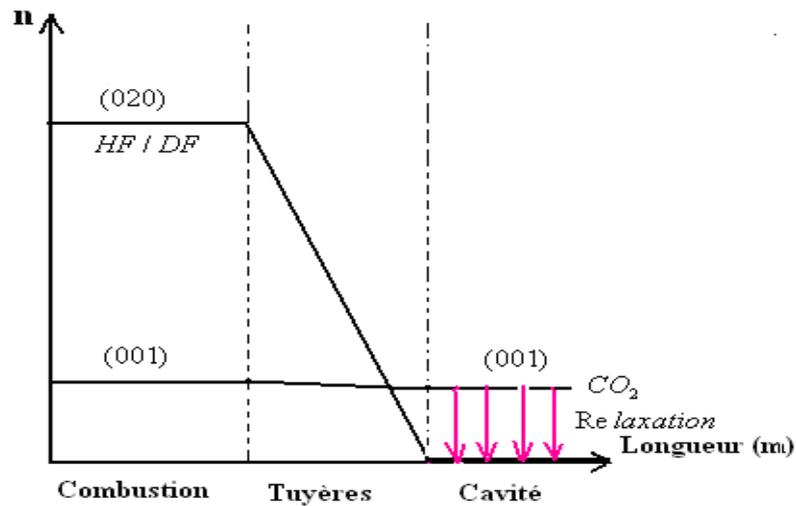
Tout l'intérêt de ce type de réactions et qu'ils ne nécessitent pas d'énergie électrique ou photonique, mais seulement une infime quantité de fluor est suffisante pour démarrer la réaction, c'est un centre chimiquement actif.

Généralement, ces tuyères ont un col allant de  $0.2-2.5 \text{ mm}$  et une largeur de sortie de  $3.00-20.00 \text{ mm}$ , par contre leurs longueurs varient de  $200-2000 \text{ mm}$ , enfin la hauteur oscille entre  $100-250 \text{ mm}$  selon la puissance du laser.

Le passage du fluor atomique dans les tuyères, instaure un dépeuplement du niveau (020) et une chute spectaculaire de la population du niveau (001), dans la cavité la population du niveau (001) est figée à une valeur équivalente à la température issue de la chambre de combustion, en ai en réalité en présence d'une inversion de populations des niveaux (020) et (001).

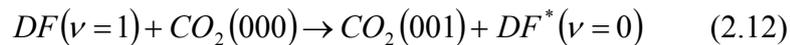
Le dioxyde de carbone  $CO_2$  aboutit dans la cavité avec des niveaux inférieurs quasi non peuplés, le transit par les tuyères procure à la transition laser une détente pour assuré l'amorçage de la relaxation et la rencontre avec le  $CO_2$ .

Cette séquence est rendue possible grâce à la molécule de mono oxyde d'azote  $NO$ , dans ce passage il est plus que capitale que  $CO_2$  en état vibrationnel traverse les tuyères pour rencontré le  $HF/DF$  dans la cavité et donner la transition laser par résonance, comme dans la figure.2.18.

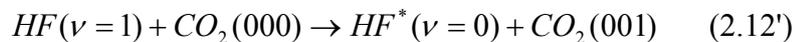


**Figure.2.18** Formulation des transitions  $CO_2$ - $HF/DF$  [13].

- Transfert d'énergie vibrationnelle de  $DF$  aux transitions du  $CO_2$  dans la cavité.



-Transfert d'énergie vibrationnelle d' $HF$  aux transitions du  $CO_2$  dans la cavité.



$$k_{HF-CO_2} = 1.8 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3/\text{mole.s}, \quad k_{DF-CO_2} = 3.3 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{mole.s} \quad [46].$$

L'équation (2.09) initie le phénomène, alors que (2.10), (2.11) aboutissent à la mise en place de molécules  $DF$  excités à l'état vibrationnelle et des atomes de fluor très nombreux par rapport au départ : c'est une réaction divergente en chaîne. Donc le phénomène à un penchant explosif avec déflagration, explosion et écoulement à grande vitesse.

Enfin les équations (2.12), (2.12') expriment le transfert par résonance d'énergie vibrationnelle de la molécule  $HF/DF$  à celle de  $CO_2$  sur une fréquence de  $10.4 \mu\text{m}$ , c'est grâce au gaz carbonique qu'il y a eu l'émission stimulée.

Les molécules d'hélium sont misent à profit pour empêcher l'échauffement excessif et l'auto inflammation du mélange fluor-deutérium, et de surcroît ils aident au dépeuplement du niveau inférieur dans les molécules de  $CO_2$ . D'où l'importance de ce type de laser, qui n'exige pas d'accessoires ou d'organes

supplémentaires, mais seulement des molécules emmagasinées dans des obus sous forte pression.

D'un point de vue énergie de vibration on peut dire, qu'elle est accumulée dans les degrés de liberté de vibration des molécules  $CO_2$ , chauffées par la réaction exothermique d' $HF/DF$  (générant une réaction d'allumage spontané) durant le transit dans les tuyères et son séjour dans la cavité laser.

Les molécules excités  $DF^*$ , transfère l'énergie d'excitation aux molécules de  $CO_2$  (2.12, 2.12'), ces dernières sont entraînées par le courant de l'écoulement dans la cavité lieu de leurs désexcitation pour se transformé en phénomène photonique.

$$\psi_c = \frac{[He] + [NO]}{[F_2] + \frac{1}{2}[F]} : \text{Taux de dilution dans la chambre de combustion;}$$

En substituant  $M$  par  $HF/DF$  ( $k = 5.10^{-15} \text{ cm}^3 / \text{mole.s}$ ) on constate que cette réaction est relativement rapide, comparé à  $M=He$  avec une vitesse de réaction ( $k = 1.2.10^{-13} \text{ cm}^3 / \text{mole.s}$ ), l'ajout du gaz hélium au mélange  $CO_2-HF/DF$  permet alors de diminué de temps de vie radiative du niveau inférieur et de laminé sa population, pour instauré le mécanisme de dépeuplement, ou le tableau 2.4 donne les paramètres dimensionnel.

Mixture % (CO <sub>2</sub> :N <sub>2</sub> :He /or H <sub>2</sub> O)	T <sub>0</sub> °K	P <sub>0</sub> atm	h A/A	cavité surface cm <sup>2</sup>	$\alpha_{\max}$ m <sup>-1</sup>	P <sub>max</sub> kW	P/G J/g
7.5 :91.3 :1.2	1400	17	0.8 14	2.0×8.0	0.8	60	4
10:40:50	1200- 3400	13-18	1.27 20	2.5×14	-	0.25	2
12:34 :54	800- 2200	2-16	1 36.1	3.6×30	0.6	2	9
22:73:5	1200- 1550	10	0.23 30	1.1×10	1	0.05	2
10:30:60	2000- 4000	100	0.35 44.4	1.6×14	-	2.29	3.6
6.8:68.2 :2.5	2000	1000	1 20	10×200	-	4.00	8
10:20:70	1460	8.4	1.3 15	0.7×9	1.1	.015	0.15
CO <sub>2</sub> :N <sub>2</sub> :He	1400- 1700	5-10	0.4 25	5×50	0.8	8.5	10
25 :50:25	650		0.8 4		0.5	5	1
5 :15 :80	2100	85	12.7 10			2	2.2
N <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> +He	2000- 4000	10	0.8	5×12	3	2	25
N <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> +He	2000- 4000	10	1	3×12	2-3.5	2	25
N <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> +H <sub>2</sub> O	2000	66	d = 0.4	2×28	1.5		26
N <sub>2</sub> -Ar CO <sub>2</sub> +He	2000- 3000	3-6	1 M=3.5- 4.5	1.2×3.5	3	.071	23
F <sub>2</sub> +H <sub>2</sub> , D <sub>2</sub> SF <sub>6</sub> +He + O <sub>2</sub>	2 000	1.3	36 slits	1.27× 17.6		2	24.3
F+H <sub>2</sub> , D <sub>2</sub> F <sub>2</sub> +He	1340	6.5	50 slits	1.9× 22.9		15.5	344

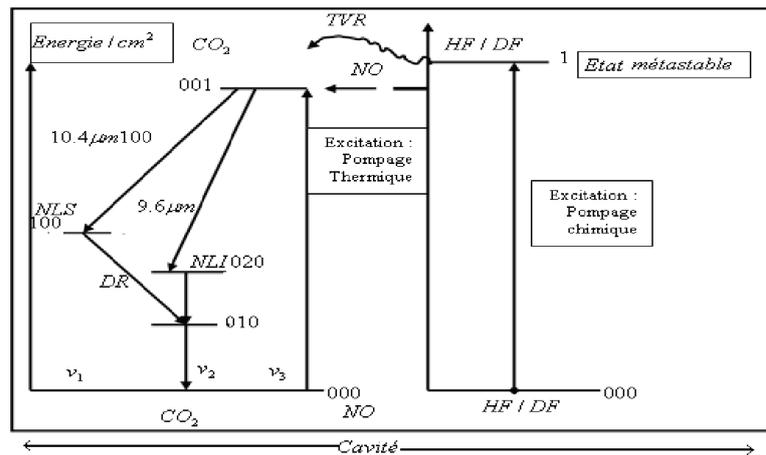
**Tableau.2.4 Paramètres dimensionnel avec les milieux actifs.** [47]

Si le mélange est constitué de 50% *He* sous une pression de service relativement faible dans la chambre, on admet que les modes de vibration sont en équilibre thermodynamique et la température est proche de celle du gaz, ce qui entraîne que les populations des niveaux supérieurs sont régies par une statistique de Boltzmann : donc toutes les populations  $v_1$  et  $v_2$  sont conditionnées par celles du niveau (010), comme dans la figure.2.19.

Ou :

*TVR* : désigne le transfert vibrationnel résonant,

*DR* : désigne la désactivation radiative, (temps radiatif de quelques microsecondes)



**Figure.2.19 Diagramme d'énergie de vibration du couple  $\text{CO}_2$ - $\text{HF}/\text{DF}$ .**

*NLS* : désigne le niveau laser supérieur,

*NLI* : désigne le niveau laser inférieur,

000 : niveau fondamental,

001 : niveau vibrationnel excité.

"Donc, le système se comporte comme il s'agit d'un réservoir sous pression (assimilé à un tube à choc), partant des conditions d'une enceinte en équilibre (gaz au repos sous condition de température et pression bien établie), la détente des gaz dans la tuyère entraîne une forte chute de température et de densité.

Les gaz dissociés provenant de la réaction en chaîne largement longue, tendent à se recombiner et l'énergie de vibration à baissée.

Remarque est faite concernant les temps caractéristiques de recombinaison et de relaxation vibrationnelle, qui sont presque de même ordre de grandeur, ou d'un ordre inférieur au temps caractéristique de l'écoulement supersonique dans la tuyère, l'écoulement est hors équilibre, **et il y'a lieu "gèle", "figeage" ou "frozen"**, des concentrations et/ou de l'énergie de vibration à des valeurs supérieures à celles de l'équilibre locale. Le figeage proprement dit est une condition très importante voir même vitale pour l'obtention de l'effet laser; autrement dit, cette condition permet au gaz en mouvement de conserver ces propriétés dans le milieu actif au sein de la cavité pour réaliser l'émission stimulée.

## Chapitre III

### Ecoulement dans les tuyères

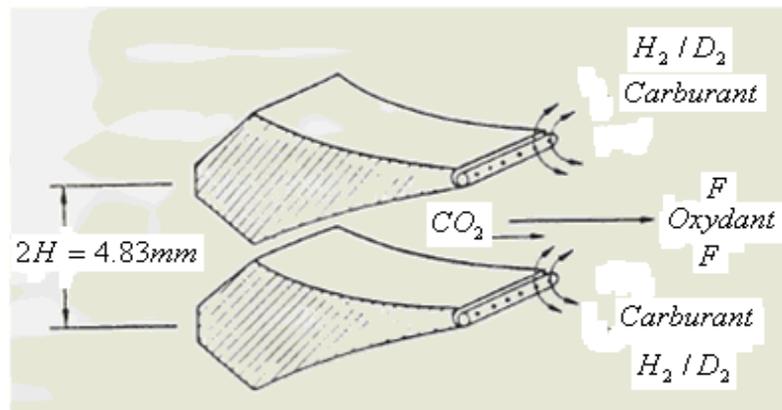
#### et auto allumage

#### 3.1. Processus d'allumage

##### 3.1.1. L'Auto allumage.

Le temps de démarrage de la séquence est relatif aux produits constituant la réaction chimique à savoir carburant et comburant (oxydant) et évoluant dans le temps en fonction de la flamme : cette étape est appelée *allumage* dont la vitesse est :

$a = \sqrt{\gamma RT}$  et le nombre de Mach vaut  $M=V/a$  et  $V$  : la vitesse à l'infini amont



**Figure.3.1 Injecteurs et tuyères**

Le taux de réaction est donné par la corrélation suivante :

$$k_t = Ae^{B/RT} / T^n \quad [48] \quad (3.1)$$

Avec :

$R$  : Constante des gaz parfaits.

Les paramètres  $A$  et  $B$  prennent les formes suivantes :

**Pour le deutérium fluor DF :**

Réaction de pompage :  $A = 5 \times 10^9$ ;  $B = -460$ ;  $n = -1,2$

Transfert vibrationnel :  $A = 8 \times 10^{15}; n = 1; B = 0$

Désexcitation :  $A = 2 \times 10^4; n = -2.4; B = 0$  et aussi  $A = 4 \times 10^{15}; n = 1.3; B = 0$

**Pour l'hydrogène fluor HF:**

Réaction de pompage :  $A = 1 \times 10^{10}; B = -330; n = -1,2$

Transfert vibrationnel :  $A = 2 \times 10^{16}; n = 1; B = 0$

Désexcitation :  $A = 1 \times 10^6; n = -2,3; B = 0$  et aussi  $A = 5 \times 10^{12}; n = 1; B = 0$

$$\Omega = \psi_L + \psi_C : \text{Taux de dilution global de la cavité; } (3.2)$$

$$\sigma = \frac{\text{Puissance}}{\text{Débit}} * \frac{Kj}{Kg} : \text{Puissance spécifique; } (3.3)$$

$$\delta = \frac{\text{Puissance}}{\text{Surface}_{\text{tuyères}}} * \frac{Kw}{m^2} : \text{Flux de puissance des tuyères; } (3.4)$$

Les équations établis ci-dessus, sont valables pour le deutérium ou l'hydrogène, il suffit seulement de substituer le signe [autre] par les molécules actrices de la combustion dans le générateur de gaz ou dans la cavité.

Dans le cadre de la thèse, cette approche est toujours valable, mais on a le composé de dioxyde ce carbone  $CO_2$ , qui intervient dans le processus de transfert vibrationnel résonant, ou l'énergie reçue à partir de  $HF/DF$ , sera récupérer par le  $CO_2$  afin d'avoir l'effet laser sur une fréquence de  $10.6 \mu m$ , on a alors : [49]

$$\frac{[CO_2]}{[D]} = 20 - 60 \quad (3.5)$$

$$\frac{[CO_2]}{[DF]} = 4 - \infty \quad (3.6)$$

La constante d'équilibre pour le transfert vibrationnel est :

$$K_{DF/CO_2} = 2 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 / \text{mole.s} [49].$$

Aussi une autre constante d'équilibre est utilisée :

$K_{DF} = 5 \times 10^{-13} \text{ cm}^3 / \text{mole.s}$ , et le coefficient stœchiométrique prend la forme suivante :

$$\frac{[CO_2]K_{DF/CO_2}}{[D]K_{DF}} = 6 - 20 \quad (3.7)$$

Dans certaines conditions seules les réactions chimiques lentes peuvent avoir lieu, ce type de phénomène est illustré par le diagramme d'explosion  $p$ - $T$  voir figure 3.2, qui montre les régions dans lesquelles l'allumage spontané se mis en place, et cette même région est séparée par une péninsule, qui caractérise le lieu de non réaction d'auto allumage. [50].

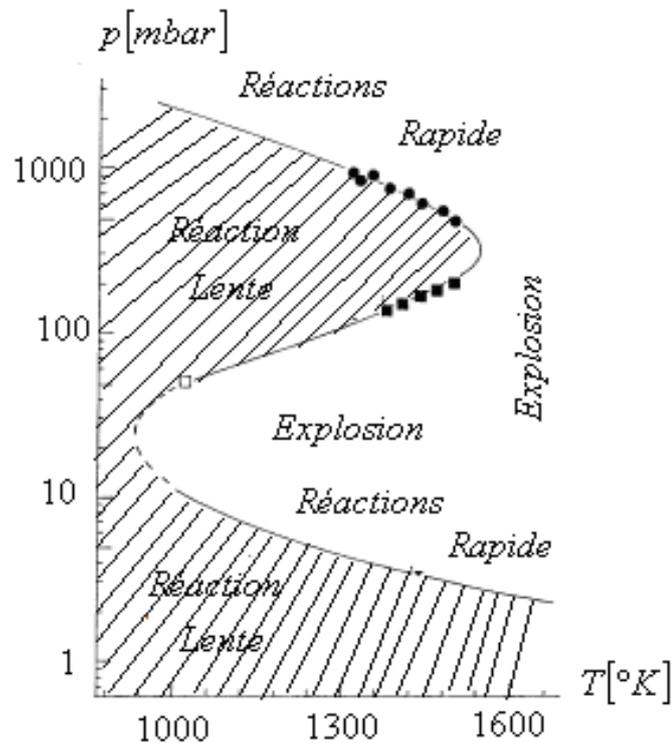


Figure.3.2 Limite d'allumage  $HF / DF$  . [50]

Le phénomène dépend du temps et de la conservation de quantité de mouvement, aussi il est en relation avec la nature des parois formant l'enceinte de l'écoulement intérieur, ce qui favorise la formation de radicaux instable inhérent à la réaction de combustion et au phénomène de dissociation.

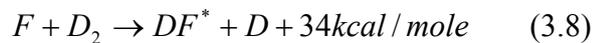
De plus cela nous mènent à pensé à ces radicaux instable qui, en fin de compte vont arrêter la réaction en chaîne.

Ce qui constitue une contrainte de taille pour la détermination quantitative de la limite d'explosion du mélange. L'hydrogène/deutérium à  $800^{\circ}K$  et à faible pression  $p < mbar$  ne s'enflamme pas, la constitution d'espèces sous forme de radicaux issues de la réaction chimique dans la phase gazeuse percutent la paroi de l'enceinte pour se recombinaées en radicaux stable.

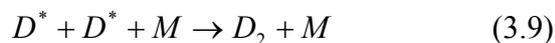
Au fur et mesure que la pression et la température augmentent, atteignant la première limite d'allumage, un allumage spontané se mis en place, pour raison un taux moindre de radicaux à l'état gazeux près de la paroi ( $D \propto p^{-1}$ , la diffusion est l'inverse de la pression) contre laquelle ils sont brisés.

Cette première limite dépend essentiellement de la nature chimique de la paroi de l'enceinte, qui est la conséquence d'une concurrence entre deux processus, l'un est la chaîne de branchement à l'état gazeux et l'autre la chaîne de terminaison à la surface de la paroi. Donc la nature de cette paroi à savoir Téflon, Cuivre, Aciers spéciaux, Or ou Platine définie différentes limites d'explosion.

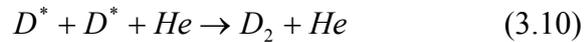
Pour une pression supérieure à  $100 \text{ mbar}$  et une température de  $800^{\circ}K$  encore on n'observe pas d'allumage, on remarque que la seconde frontière d'explosion est gérée par une compétition entre les réactions de branchement et ce des chaînes de terminaison dans le milieu à l'état gazeux.



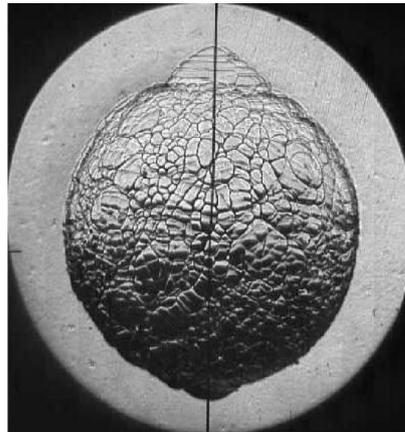
A cette faible pression la molécule de bi fluor réagit avec le monoxyde d'azote pour libérer l'atome de fluor, ce qui constitue une étape très importante dans la phase de branchement de la chaîne. Le produit issu de cette réaction réagit rapidement avec  $H/D$  qui à son tour rencontre le fluor de la réaction ci-dessus pour générer des radicaux, ces derniers augmentent d'une manière exponentielle ce qui forme l'assise du phénomène de combustion, selon le schéma:



A cette étape là, on assiste à une réaction complexe à trois corps, qui libère la molécule de deutérium et un radical instable, en réalité cette étape sonne le glas de la réaction en chaîne : on dit qu'on a rupture et terminaison de la combustion, ou  $M$  est une molécule de diluant.



A ce stade durant la combustion le taux de pression des réactions à trois corps est très élevé par rapport à celui des réactions à deux corps, ce qui explique la deuxième limite d'explosion sur la courbe. Sur le chemin on aperçoit encore une autre limite d'allumage, dite des réactions lentes, laquelle est régie par la course entre la production de chaleur due à la réaction chimique, qui commande l'apparition des radicaux nocifs, et les déperditions de chaleur causées par la paroi de l'enceinte. Ainsi, l'allumage des gaz dans la chambre de combustion est nécessaire mais d'une manière hypergolique, par ailleurs une fois l'étincelle jaillit la flamme continue indéfiniment.



**Figure.3.3 Flamme laminaire sphérique en propagation.** [51]

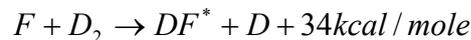
Un autre dispositif d'allumage est aussi utilisé, tel que des résistances qui chauffent la chambre de combustion, comme utilisée dans les moteurs Diesel, ce dernier doit chauffer la source  $H/D$  suffisamment pour assuré l'allumage quand l'hydrogène chaud est mélangé avec la source de fluor à l'état de gaz. Le front de flamme est constitué par des structures en forme de cellules organiques en phase de

multiplication, mais qui se propagent à vitesse supersonique derrière l'onde de choc, la figure.3.3 est l'illustration d'un tel phénomène, et la combustion continue son régime de réaction hautement rapide.

### 3.1.2. L'allumage hypergolique.

Pour comprendre l'allumage *hypergolique*, le meilleur exemple est d'allumé instantanément du carburant et du comburant *sans étincelle*, comme le fluor atomique avec l'hydrogène ou le deutérium.

Cela veut dire sur l'échelle du temps, la libération d'une quantité déterminée d'oxydant et de combustible se rencontre et s'auto enflamment spontanément, et la pression augmente telle qu'elle ne constitue pas un danger pour l'intégrité de la structure porteuse du mécanisme de combustion pour laquelle il est dimensionné. L'une des méthodes pour crée l'auto allumage hypergolique est l'injection du fluor/hydrogène gazeux car la structure électronique du fluor instantanément réagit avec les deux composés précité. La réaction initiatrice de cet allumage est :



L'explication vient du faite que l'orbitale  $2p_z$  qui peut se combiner de façon appréciable avec l'orbite  $1s$  de l'hydrogène. On peut donc établir que, qualitativement, les six premières orbitales de la molécule  $HF$  seront, dans l'ordre d'énergie croissante, parce que les électrons externes du fluor présentent une affinité à réagir avec l'hydrogène, dans les applications des lasers chimiques le fluor est une référence de composant hypergolique.

Les gaz issus de la chambre de combustion sont conduits à travers les tuyères à une vitesse supersonique, jusqu'à la cavité, ou ils interagissent avec le  $CO_2$  à l'état vibrationnel asymétrique (001), dans le cas ou la température atteint les  $1700^\circ K$ , on a dissociation des molécules au sein de cavité, qui se solde par une coupure de la réaction.

### 3.1.3. Etude de la détonation.

La détonation exprime un couplage fort entre une onde de choc et les processus réactifs irréversibles qui aboutissent à un phénomène hautement énergétique et

inconditionnellement très dangereux, dans la vie courante il y a des fois où cette détonation est fortuite se produisant dans les zones industrielles à haut risque comme dans le cas de l'usine AZF de Toulouse, qui a laissée un nombre indéterminé de victime et toute la zone dévastée.

Mais des fois on provoque délibérément la détonation sur les dispositifs industriels pour stimuler des phénomènes d'auto allumage comme dans notre cas : le couple  $H$  avec  $F$  ou  $H$  avec  $D$ , pour que l'énergie libérée soit transférée à la molécule de  $CO_2$ .

Le siège de la réaction chimique dans l'écoulement est nommé : "Front de flamme" ou bien "Onde de combustion", dans cette zone des réactions très rapides ont lieu et un grand rayonnement est très souvent émis. En général on remarque deux grandes familles de flamme :

- les flammes de pré mélange : le milieu est parfait avant la réaction,
- les flammes non- pré mélangées dite aussi flammes de diffusion : les réactifs diffusent les uns au milieu des autres tout en réagissant chimiquement.

C'est bien le cas de la flamme pré mélangée qui est traité, dans laquelle on distingue trois catégories :

- Explosion : l'enthalpie par unité de temps est remarquable, mais non tributaire d'une onde de combustion,
- Déflagration : une onde de combustion se propage à vitesse subsonique,
- Détonation : une onde de combustion se propage à vitesse supersonique.

#### 3.1.4. Configuration et équation de bilan de la combustion.

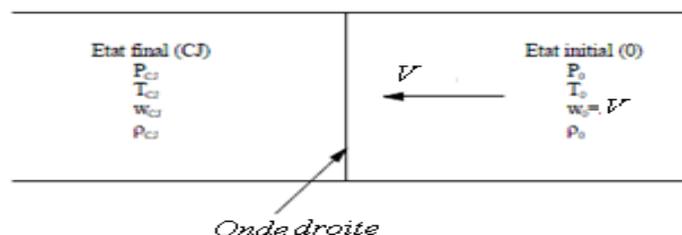


Figure.3.4 Représentation de l'onde de détonation Chapman-Jouguet.

Les fondamentaux sur la théorie de la flamme ont été jetés au début des 19 ième siècles par Chapman (1899) et Jouguet (1904-1917). Selon laquelle, l'onde de détonation plane autonome et stationnaire de célérité constante  $D$  est assimilée à une discontinuité qui transforme en temps réel le mélange réactif (environnement des gaz frais, indiqué par l'état initial 0) en un gaz brûlé (environnement à l'arrière de l'onde de détonation indexé par l'état finale CJ).

Les grandeurs thermodynamiques pression, température, densité et vitesse sont le siège d'une variation à travers la discontinuité qui se solde d'un saut d'un état initial, avec une composition chimique fixe et métastable, vers un état final chimiquement stable en équilibre thermodynamique et chimique. La figure 3.4 représente l'onde de détonation, d'après la théorie de Chapman-Jouguet, qui se propage dans les gaz frais initialement au repos, liée à un référentiel mobile avec la détonation.

A partir de l'équation de Hugoniot qui permet de lier l'enthalpie  $h$  à la pression  $P$  et à la masse volumique  $\rho$  :

$$h(P, \rho, \alpha = 1) - h(P_0, \rho_0, \alpha = 0) = \frac{1}{2}(p - p_0) \left( \frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_0} \right) \quad (3.11)$$

Où  $\alpha$  définit le degré d'avancement de la réaction  $\alpha = 0 \Rightarrow$  pas de réaction,  $\alpha = 1 \Rightarrow$  on a réaction, ainsi la chaleur dégagée par unité de masse à l'intérieure de l'onde de détonation à la température de référence  $T = T^*$  est liée par l'équation :

$$h^*(\alpha = 1) - h^*(\alpha = 0) = -Q \quad (3.12)$$

Dans le cas le plus trivial de la discontinuité  $\alpha = 1$ , l'équation (3.12) définit le graphe dit : courbe de Crussard qui stipule les états d'équilibre éventuel des produits de combustion complète. La rencontre de la courbe de Crussard avec la droite de Rayleigh-Michelson issue le l'état initial 0 :

$$P - P_0 = -\rho_0^2 V^2 \left( \frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_0} \right) \quad (3.13)$$

Selon la figure.3.5, l'état initial 0 au repos, c'est la célérité  $V$  de l'onde qui déterminante pour la pente de la droite, une explication s'impose à propos de  $V$  de l'onde de détonation.

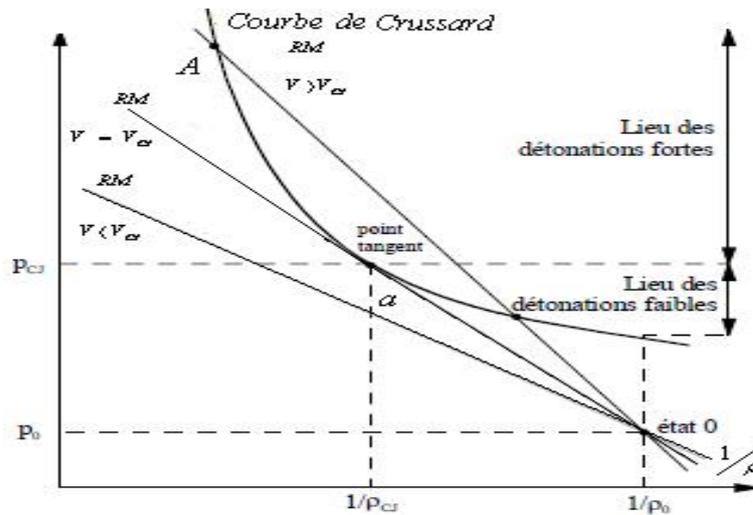


Figure.3.5 Graphe  $P$  versus  $1/\rho$ , avec la courbe de Crussard.

- La droite  $RM$  ne touche pas la courbe de Crussard, puisque  $V$  est extrêmement bas,
- La vitesse  $V$  est telle que la droite de  $RM$  est tangente à la courbe de Crussard, la discontinuité à donc une vitesse de propagation constante  $V=V_{CJ}$  supersonique par rapport au gaz au repos.
- La célérité  $V$ , est tellement importante que la droite coupe  $RM$  en deux points  $A$  et  $a$ , alors la célérité  $V > V_{CJ}$ , le point  $A$  est situé sur le segment des détonations fortes de la courbe de Crussard, ou la pression est :
  - supérieur à celle de Chapman-Jouguet, on constate que cet état n'est pas autonome, mais bien au contraire dépendant de phénomènes extrinsèque entretenant sa propagation. Comme par exemple, alimentation des injecteurs du générateur laser, cette onde de détonation est subsonique comparativement aux gaz brûlés. Par voie de conséquence, une fois cette combustion n'est pas entretenue, la détonation forte se résorbe jusqu'aux conditions de stabilité.

Toute cette théorie (de Chapman et Jouguet) illustre le passage des gaz frais de l'état initial à un état final comme gaz brûlé au sein d'un équilibre thermodynamique et chimique, mais cette théorie souffre d'un handicap de taille, concernant ce qui se passe entre ces deux états, d'où la nécessité d'une autre théorie capable d'expliquer cette phénoménologie de la détonation.

### 3.1.5. Le modèle ZND.

Comme son nom l'indique c'est bien le modèle de Zeldovitch-Von Neumann-Doring, cette approche est basée sur les constats faits par Vieille, qui énonce, qu'un choc est source de réaction retardée, alors Zeldovitch (1940), Von-Neumann (1942) et Doring (1943) élaborent chacun de son coté un modèle de l'onde de détonation sur les bases de celui de Chapman et Jouguet.

La détonation est composée alors d'un ensemble *onde de choc-onde de combustion* qui évolue dans un milieu réactif avec une vitesse supersonique qui génère une forte pression, la détonation est définie comme étant une auto inflammation perpétuelle succédant l'onde choc elle-même entretenue par l'enthalpie dégagée par la réaction chimique.

Ce modèle décrit une structure d'onde de choc de détonation comme : une onde de choc se meut à la vitesse de détonation, avec des réactions chimiques se produisant en aval du choc sur une distance plus grande comparativement à l'épaisseur d'une onde de choc (de l'ordre de 10 mm) pour un gaz parfait. Dans ce modèle (ZND) l'onde de choc mène les réactifs à une température à laquelle ils réagissent à une vitesse suffisamment grande pour que la zone de réaction se propage plus vite que l'onde de choc.

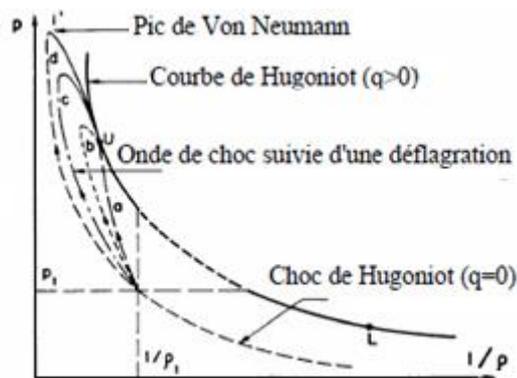


Figure.3.6 Parcours suivi par le mélange dans le plan  $(p, 1/\rho)$ .

L'explication à cela, c'est qu'il y a peu de réactions chimiques à l'intérieur du choc est justifiée par le fait que l'épaisseur, de l'ordre de quelques libres parcours moyen de molécules, ne permet pas un nombre adéquat de chocs entre les molécules constituant

le milieu réactif. De là, le dégagement de chaleur est plus grand à l'intérieur d'une zone située en aval du choc.

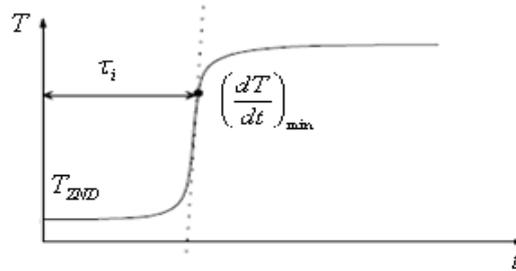
Dans la réalité il y a plusieurs manières à un mélange réactif de parvenir de l'état amont à l'état aval. Un mélange dans un état  $(1/\rho_1, p_1)$  pourrait rencontrer l'onde de détonation et aboutir à l'état idéal (équilibre) *C-J* (Chapman-Jouguet) pour parvenir le mélange doit réagir tout au long du chemin, mais la température fait défaut pour le démarrage de la réaction. Du graphe.3.6, on tire les explications suivantes :

Le trajet (a) ne permet pas d'entretenir l'onde de détonation. Le chemin (b) constitue un parcours possible pour un mélange à réaction rapide. Pour le chemin (c) est caractéristique pour une cinétique lente. Enfin le parcours (d) se superpose avec la courbe de Hugoniot, le pic de pression derrière est dit "Pic de Von-Neumann", qui exprime des gradients élevés de pression et de densité au front de l'onde de détonation.

Ce dernier point est difficile à rencontrer dans les applications physique, mais il se manifeste dans les explosions nucléaire et thermonucléaire, car la mise à feu de l'engin prend quelques microsecondes avant la détonation suivit d'une grande boule de feu avec émission de rayonnement électromagnétique, lui succédant une onde de choc supersonique.

### **3.1.6. Définition de la longueur d'induction.**

Dans l'environnement réactif, les réactions dégagent l'énergie chimique après un délai  $\tau_i$  appelé temps d'induction chimique. On définit le délai d'induction chimique comme le temps entre le transit du choc provocateur de la discontinuité et le point d'inflexion de la courbe de variation de la température en fonction du temps pour un observateur placé sur le référentiel de l'onde de choc, analytiquement on a le maximum de  $dT/dt$  qui correspond d'un point de vue thermodynamique à la libération par la réaction du maximum de son enthalpie, comme montré dans la figure.3.7.



**Figure.3.7 Variation de la température durant le choc.**

Au temps d'induction  $\tau_i$  on associe une longueur d'induction  $L_i$ , conventionnellement cette distance est assimilée à l'épaisseur de la zone de réaction. Sous l'action de libération d'énergie, on a élévation de température et une baisse de pression pour atteindre jusqu'à la fin de la zone de réaction la pression de Chapman-Jouguet  $P_{CJ}$  et aussi la température  $T_{CJ}$  qui coïncide à un nombre de mach égal à 1.

Donc, la longueur d'induction est liée au délai d'induction par :

$$L_i = \int v \cdot \tau_i dt \quad (3.14)$$

$V$  : Vitesse des particules après le choc.

### 3.2. Etude de la flamme.

La combustion est un phénomène très répondeu dans la vie courante et qui remonte à des temps très reculé, on dit avec l'Homme des cavernes et qu'elle (flamme) lui à fait changer le mode de vie. D'un point de vue philosophique la flamme comprend trois aspects à savoir :

- \* l'aspect chimique, qui mit en jeu de nombreuses réactions chimiques ayant lieu simultanément lors du processus de combustion,

- \* un aspect thermique qui enveloppe les phénomènes de transfert de chaleur (conduction, convection et enfin le rayonnement) qui est matérialisé par la flamme,

- \* en enfin l'aspect mécanique, qui contient le transfert de masse (mouvement de convection et de diffusion), toute cette description se manifeste au sein des générateurs de gaz pour produire de l'énergie à l'instar des moteurs à combustion interne qu'ils soient alternatifs ou continus, pour mieux assimilé le concept on définie les variantes de flammes.

### 3.2.1. Types de flammes.

Deux familles de flammes peuvent être constaté, les flammes de " pré mélange" et de "diffusion", dans le premier cas, le mélange de comburant et de combustible est réalisé avant le passage de la flamme (chambre de combustion de turboréacteur). Par contre dans le cas des flammes diffusion, le mélange de comburant et de combustible se fait par diffusion en sens contraire vers la zone réactionnelle.

Comme on le sait dans les fondamentaux de la mécanique des fluides, tout écoulement est assujettie à deux régimes, l'un est laminaire et l'autre est turbulent, le premier est calme de vitesse constante, par contre est chaotique, imprévisible est de vitesse maximale en moyenne.

Donc, l'écoulement est caractérisé par un nombre sans dimension, qui lie les forces d'inertie liée à la vitesse et les forces de frottement liées à la viscosité :

$$Re = \rho \frac{uD}{\nu} = \frac{uD}{\mu} \quad (3.15)$$

Sachant que :

$\frac{\rho}{\nu} = \mu$  : La viscosité dynamique = masse volumique/viscosité cinématique.

Ainsi si les forces de frottement sont prépondérantes entre deux couches fluides, ils maintiennent leurs cohésions et on aura un écoulement dit : laminaire. Par contre lorsque  $Re$  excède une certaine limite l'écoulement entre dans une zone de transition qui se termine par un régime pleinement turbulent, ceci pour les liquides. Pour les gaz, la viscosité est beaucoup plus faible et se limite à une zone proche de la paroi, dans laquelle la vitesse évolue fortement, cette zone est dite COUCHE LIMITE.

Pour les gaz, les frottements aux niveaux des parois sont minimes, de ce fait, la vitesse d'écoulement n'est que légèrement freinée à proximité des parois, mais peut présenter d'infime effet de bord due à la viscosité, influençant la vitesse aux parois formant les tuyères. On note que ces effets de bords peuvent être à la fois mécanique "frottement des gaz sans combustion" et thermique si les gaz sont chauffés "pertes mécaniques près disposées", dans notre cas la flamme est supposée adiabatique, ce qui implique que la totalité de la chaleur issue de la réaction chimique ( $HF/DF$ ) est

utilisée dans sa totalité pour chauffer les paquets de gaz mitoyens ( $CO_2$ ,  $NO$ ), sans aucun échange thermique avec le milieu.

### 3.3. Chocs et écoulement dans les tuyères.

Vu l'interaction qui existe entre le phénomène de dissociation dans la chambre de combustion sous l'effet de la haute température, et le besoin d'obtention d'un laser dans la cavité mais à une température modérément acceptable, comparativement aux températures dans la première chambre du générateur, on utilise des tuyères convergentes divergentes pour le cas d'écoulement supersonique, et l'utilisation d'éléments de congélation tel que,  $He$ ,  $NO$ , pour faire chuter drastiquement les paramètres à l'état d'arrêt à savoir : la température, la pression et la masse volumique, pour ne pas abîmer les parois de la cavité.

Les gaz issus du générateur possèdent les caractéristiques d'un écoulement à une dimension, les différents paramètres sont pour un état isentropique, les équations donnant les paramètres à l'état d'arrêt : [52]

$$\frac{T}{T_0} = \frac{2}{\gamma + 1} \left[ \frac{\gamma - 1}{\gamma + 1} \left( 1 - \frac{T}{T_0} \right)^{-1} \left( \frac{h_*}{h_* + 2l \tan \alpha} \right)^2 \right]^{\frac{\gamma - 1}{2}} \quad (3.16)$$

$$\frac{P_0}{P} = [1 + 0.5(\gamma - 1)M^2]^{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} \quad (3.17)$$

$$\frac{S}{S^*} = \frac{1}{M} \left[ \frac{2}{\gamma + 1} \left( 1 + \frac{\gamma - 1}{2} M^2 \right) \right]^{\frac{\gamma + 1}{2(\gamma - 1)}} \quad (3.18)$$

$$\frac{\rho_0}{\rho} = [1 + 0.5(\gamma - 1)M^2]^{\frac{1}{\gamma - 1}} \quad (3.19)$$

Dans leurs migrations les gaz traversent le bloc de tuyères, la vitesse est aussi donnée par l'équation de Hugoniot :

$$\frac{dU}{U} = \frac{(dA/A)}{(M^2 - 1)} \quad (3.20)$$

$$G = S^* \left( \frac{2}{\gamma + 1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} \sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma + 1} p_0 \rho_0} \quad (3.21)$$

$$P_{\max} = \eta_q [\varepsilon(T_3) - \varepsilon(T_e)] G \quad (3.22)$$

$$\eta_q = \frac{(h\nu_4 - h\nu_1)}{h\nu_4} \quad (3.23)$$

$\eta_q$  : Rendement quantique,

$\gamma$  : Coefficient isentropique : 1.35 ÷ 1.38 pour les gaz de combustion,

$R$  : Constante des gaz,

$T$  : Température °K .

Avec :

$\varepsilon(T_3)$  : Énergie de vibration accumulée à l'état excité, par masse de combustible;

$\varepsilon(T_e)$  : Énergie de vibration du niveau fondamental (équilibre).

Le débit massique du gaz dans la chambre de combustion est donné par la relation (3.21).

Ou :

$S^*$  : Somme totales des sections critique des blocs de tuyères;

$P_0$  : Pression à l'arrêt;

$\rho_0$  : Masse volumique à l'arrêt;

$T_0$  : Température à l'arrêt;

$\gamma$  : Constante adiabatique, est fonction de la température=

1.28 : Lors de la détente des gaz dans le col de la tuyère;

1.35 : Suite et fin de la détente, et enclenchement du transfert vibrationnel asymétrique d'énergie entre les molécules du monoxyde d'azote et de dioxyde de carbone.

$\theta_3$  : Température vibrationnelle spécifique;

$T_3$  : Température vibrationnelle au mode correspondant;

$\alpha_s$  : Fraction molaire des acteurs de la combustion.

$$\varepsilon(T_3) = h\nu_3 m^{-1} (\alpha_{CO_2} + \alpha_{NO} + \alpha_{HF/DF}) \left[ \exp\left(\frac{\theta_3}{T_3}\right) - 1 \right]^{-1} \quad [49] \quad (3.24)$$

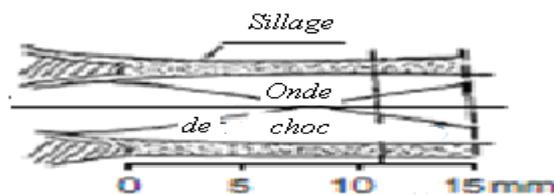
De l'équation (3.8) on estime que l'ordre de grandeur de  $T_3 \gg T_e$ , on suppose que l'énergie de vibration du niveau supérieur par unité de masse de gaz brûlé est égale à l'énergie vibrationnelle des quanta libérés lors de ce transfert vibrationnel asymétrique des deux molécules précitées.

Ces expressions traduisent l'idée que dans le convergent la vitesse continue à augmenter jusqu'au col (section la plus petite) pour devenir sonique  $M=1$ , continuons ainsi leur écoulement dans le divergent et le nombre de Mach sera  $M>1$  tout en provoquant une chute de la pression et de température, sous l'effet d'ondes de chocs droites voir la figure.3.8.

Bien entendu ce phénomène inhérent à l'écoulement supersonique génère dans le milieu une décélération de la vitesse.

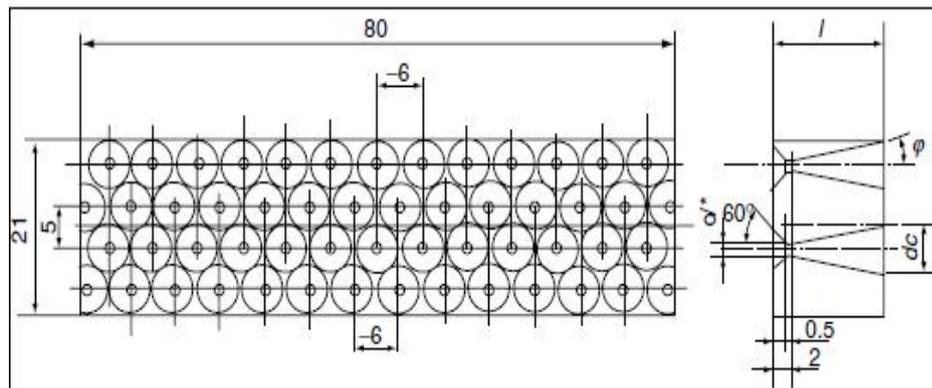
Pour éviter les chocs thermique on utilise des gaz diluant, afin d'augmenter la capacité calorifique du mélange en mouvement (riche en atomes de

*Fluor/Deutérium*, plus le dioxyde de carbone), à diamétralement à l'écoulement on dispose d'injecteur de deutérium/hydrogène, arrivant au bloc de tuyères avant les miroirs, une auto inflammation se mis en place afin d'accentuer le mélange, l'enthalpie produite est récupérée par transfert résonnant de vibration asymétrique à la molécule de  $CO_2$ , qui à son tour libère l'énergie emmagasinée dans ces degrés de liberté, pour enfin avoir le laser.



**Figure.3.8 Représentation des ondes de chocs droites.**

Ces blocs de chambres de combustion, sont usinés avec une grande tolérance formant des corps axisymétriques, une telle configuration est donner par :



**Figure.3.9 Cotation d'un bloc de tuyère. [53]**

De plus il est utile de donner aussi les paramètres géométriques des blocs de chambres de combustions à savoir :

No	$d^*$ , mm	$d_e$ , mm	$l$ , mm	$A_e/A^*$	$A_f/\Sigma A^*$	$M_e^0$	$M_f^0$	$\Sigma A_e/A_f$	$\varphi^0$
I	1.1	5.7	15	26.8	35.3	5.1	5.44	0.76	10°
II	1.1	6.6	18	29*	35.3	5.19	5.44	0.9	10°
III	1.2	6.3	18.8	25*	29.7	5	5.22	0.85	—
IV	1.2	5.8	15	24.2	29.7	4.98	5.22	0.8	—
V	1.1	5.7	8.5	26.8	35.3	5.1	5.44	0.8	20°
	$h^* = 0.72$	$H = 21$	56	28.6	30	5.17	5.23	—	—

**Tableau.3.1 Cotes géométrique des blocs tuyères. [53]**

On suppose alors que la flamme soit non pré mélangée, aussi qu'elle est à l'état stationnaire et dans un régime établi, dans un écoulement laminaire, adiabatique à vitesse supersonique.

On suppose que l'écoulement est stationnaire, le choc produit une discontinuité dans les paramètres physiques tels que  $P$ ,  $T$ ,  $U$ , mais d'un point de vue quantique vous avons conservation de ces variables. Donc l'obtention des variables physique après le choc ( $P_2$ ,  $T_2$ ,  $U_2$ ), est conditionnée par la continuité et la conservation dans la quantité de mouvement, on écrit alors :

$$U \frac{dP}{dX} + \rho \frac{dU}{dX} = 0 \quad (3.25)$$

$$\left(\frac{RT}{\rho}\right) \frac{dP}{dX} + R \frac{dT}{dX} + U \frac{dU}{dX} = 0 \quad (3.26)$$

$$RT \frac{dU}{dX} + UR\alpha \frac{dT}{dX} + U \frac{d}{dX}(e_{vibl} + e_{vibII}) = 0 \quad (3.27)$$

$$\frac{d}{dX} e_{vibl} = \frac{\dot{\omega}_1}{dX} \text{ Et } \frac{d}{dX} e_{vibII} = \frac{\dot{\omega}_2}{dU} \quad (3.28)$$

Avec de plus :  $\alpha = \frac{2}{3} X_{He} + \frac{5}{2} (X_{CO_2} + X_{NO})$  et  $P = \rho RT$ , la convergence est atteinte lorsque l'équilibre s'établi entre les valeurs constituant le paramètre  $\alpha$ . [54]. La résolution numérique de ce système d'équation, est approché par la méthode des différences finies du deuxième ordre, reflète la variation de température dans la région voisine de la cavité (de non équilibre après le choc), on voit clairement un rapide équilibre de la température vibrationnelle  $T_{vibl}$  avec la température de translation  $T$ . Par contre, la température  $T_{vibII}$  se relaxe doucement. A l'abscisse de 4mm dans la direction de l'écoulement près du choc, les trois températures précitées sont presque au même ordre de grandeur.

De telles tuyères formées de deux sections strictement distinctes avec des profils de longueurs de mélange différents; la première donnée par la figure.3.11, la seconde par la figure.3.12, et la troisième par la figure.3.13, ou on montre clairement les cols par lesquels le  $CO_2$  et  $He$  s'écoulent et entraînés par l'écoulement supersonique, d'autant que cette dernière (zone de mélange) est grande meilleur est le brassage du  $CO_2$  avec le  $NO$ .

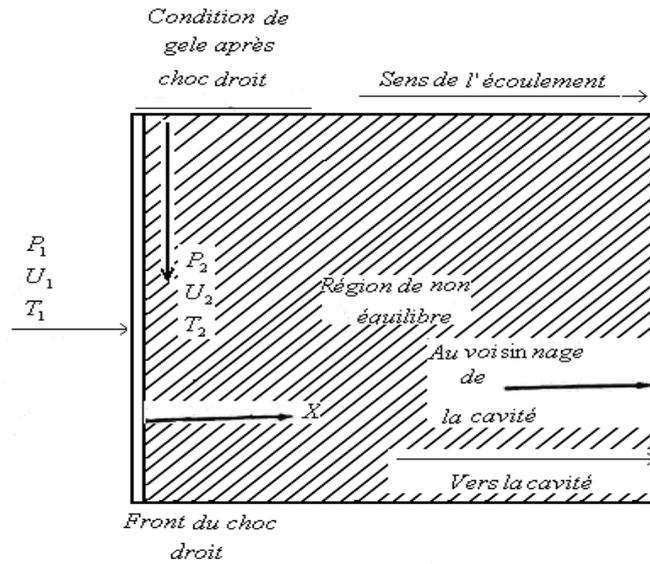


Figure.3.10 Modélisation de l'écoulement derrière un choc droit.

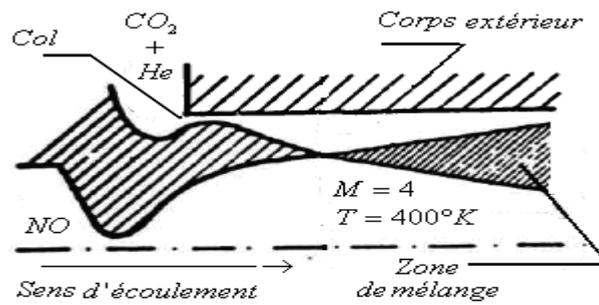


Figure.3.11 Tuyère à écoulement tangentiel.

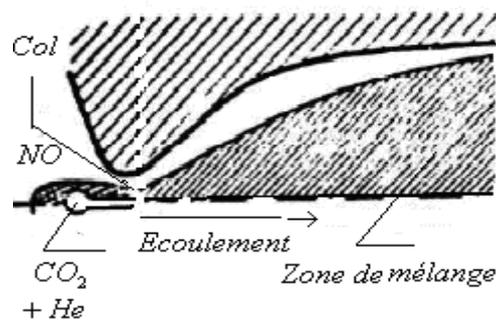
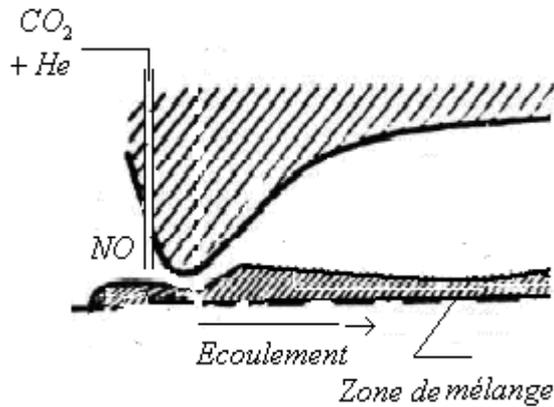
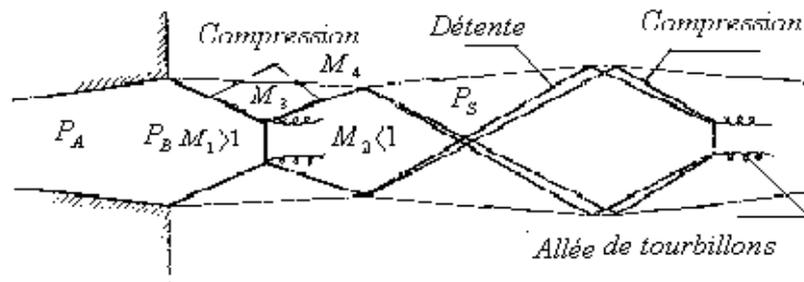


Figure.3.12 Tuyère à écoulement axial.



**Figure.3.13** Tuyère à écoulement radial.

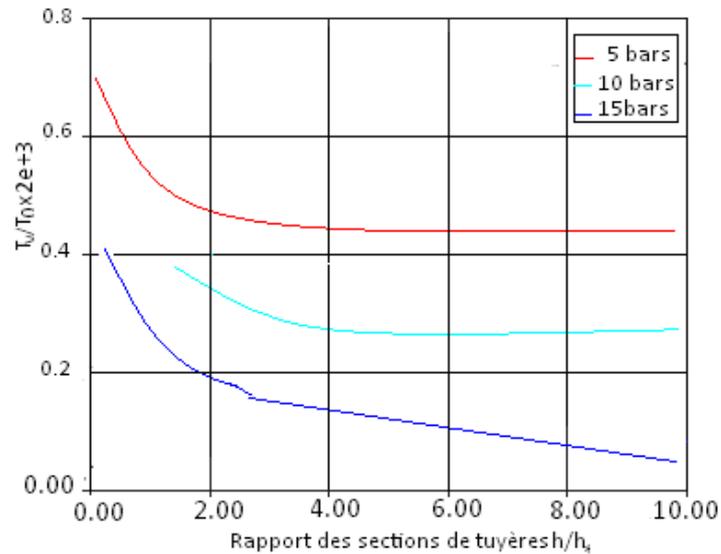


**Figure.3.14** Ondes de chocs à la sortie du convergent- divergent.

$P_S$  est la pression de générateur qui alimente le bloc de tuyères et  $P_B$  la pression à la sortie pour laquelle une onde de choc droite ait lieu juste avant la sortie de ce bloc de tuyères, là on est devant un dilemme, si :  $P_A < P_S < P_B$  sachant que  $P_S$  est près de  $P_B$  comme montré par la figure.3.14 l'onde de choc droite n'est pas localisée juste à la sortie de la tuyère mais il glisse vers la sortie de cette dernière. Il est donc lié aux parois par deux ondes de compressions obliques qui se prolongent ensuite vers les frontières de l'écoulement ou elles sont le siège de réflexion avec changement de sens, le nombre de Mach  $M_4$  est alors supérieur à l'unité, il y a coupure de continuité entre  $M_4$  et  $M_2$ , et les endroits correspondant à cela sont délimitées par des allées de tourbillons mince.

Le cœur subsonique est graduellement accéléré par l'écoulement supersonique qui l'enveloppe et il devient une autre fois à vitesse supersonique. Les ondes de détente sont de nouveau réfléchies avec inversion de signe et le phénomène se duplique jusqu'à ce que l'énergie soit absorbée par le milieu extérieur et fini par s'atténuer.

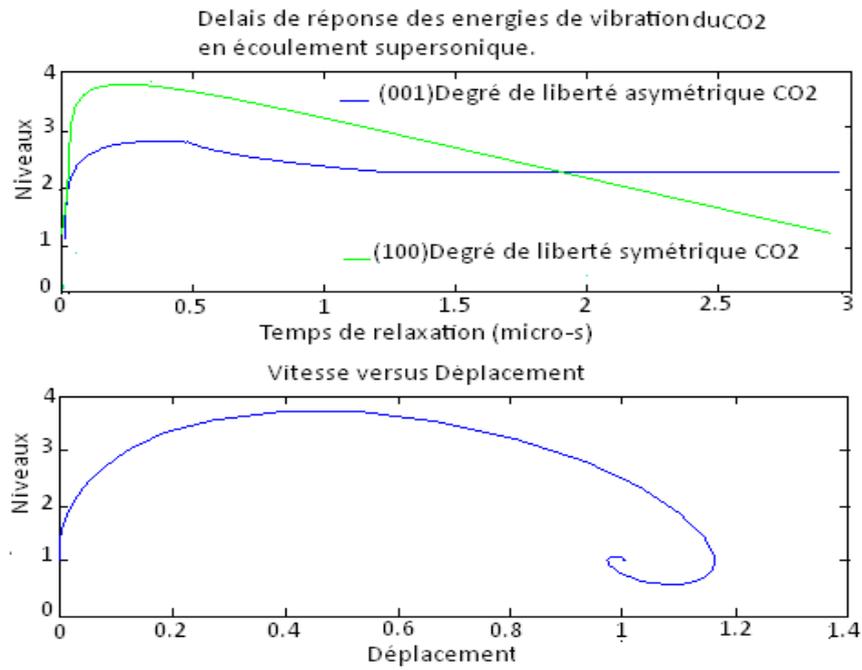
Si  $P_S \geq P_A$ , les ondes de compression se croisent sans réfraction notable et le phénomène est relativement simple que précédemment. L'écoulement débute par être convergent à la sortie de la tuyère.



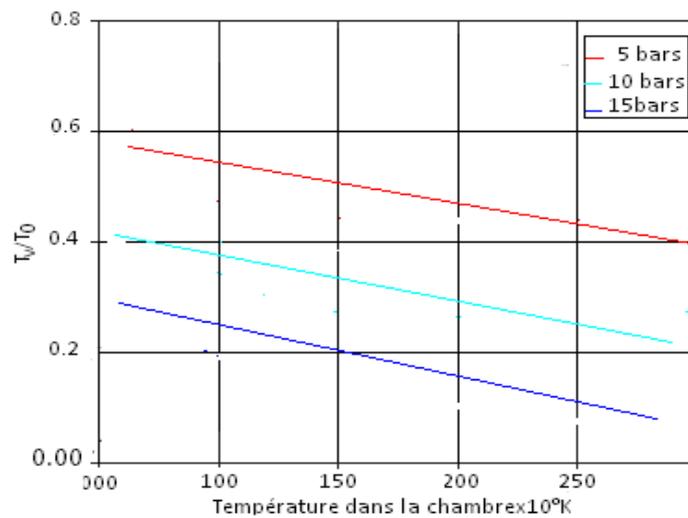
**Figure.3.15 Température de vibration dans le col versus la pression.**

Les éléments de congélation comme *He* (dans des pourcentages de l'ordre de 90%), injecté dans les tuyères avec le mélange de  $CO_2$  permet à la température de relaxation vibrationnelle de subir des détenteurs mais sans pour autant altéré le temps de désactivation afin de permettre à la molécule de  $CO_2$  de se relaxée dans la cavité chimique. A la rentrée du bloc de tuyères les gaz en expansion, à savoir le  $CO_2$  mélangé à *He* changent considérablement de rapport de chaleur spécifique  $\gamma$  derrière le choc réfléchi, issue du générateur de gaz, qui (mélange) en voyageant hors équilibre thermodynamique à une température vibrationnelle maintenue élevée sous l'action de l'élément de congélation, comme donné par la figure.3.15.

La figure.3.16, exprime la variation du temps de réponse des degrés de libertés de la molécule de  $CO_2$  durant son voyage à travers les tuyères, de plus on constate que seule la déformation (001) maintient l'élan de son énergie bien excitée durant le parcours, par contre le degré de liberté (100) monte au niveau supérieur mais se relaxe très rapidement pour se résorbé au niveau fondamental : donc ce degré de liberté n'est pas porteur de la transition laser, seul la déformation (001) dite asymétrique est génératrice de l'émission stimulée, ce qui en parfaite accord avec notre formulation au début de cette thèse.



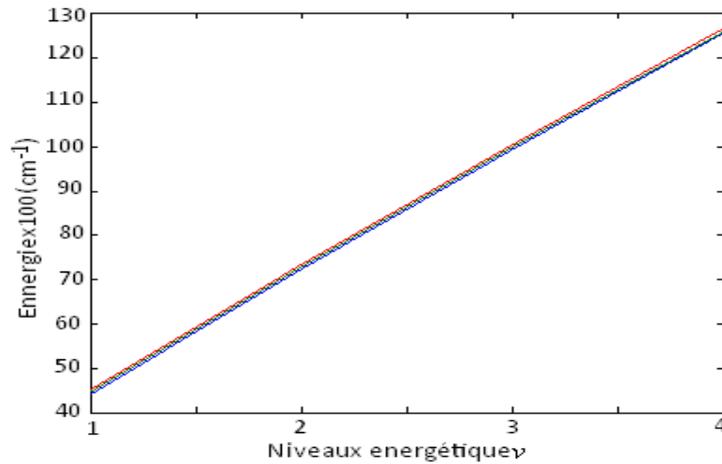
**Figure.3.16 Distribution de relaxation et vitesse avec le temps.**



**Figure.3.17 Température de vibration dans les tuyères.**

De cette figure.3.17 on constate que les trois courbes montrent que le mélange de  $CO_2$  et  $He$  se relaxe approximativement au même moment que l'onde de choc dans son mouvement d'expansion dans les tuyères.

De la figure.3.18 l'énergie quantique des éléments constituant le milieu augmente très rapidement balayant tout les niveaux énergétiques, ce qui explique bien la notion énergie quantique selon la loi de Planck.

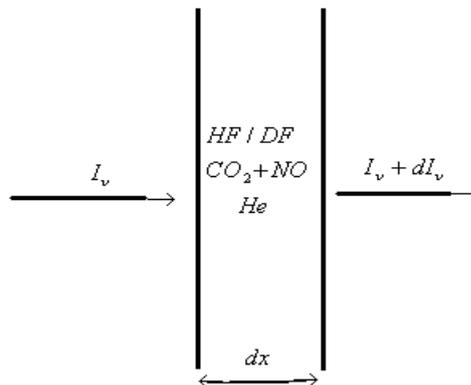


**Figure 3.18. Distribution d'énergie en fonction des niveaux.**

### 3.4. Coefficient d'amplification.

Le gain noté  $G_0$  est défini comme étant l'accroissement de l'intensité de photon due à l'écoulement supersonique au sein de la cavité, pour le formulé on considère un élément de fluide infiniment petit d'épaisseur  $dx$ , on écrit alors :

$$\frac{dI_\nu}{I_\nu} = G_0 dx \quad (3.29)$$



**Figure.3.19 Définition du coefficient du gain.**

En principe l'intensité  $dI_\nu$  augmente en fonction de  $G_0$ . Par contre l'intensité  $I_\nu$ , doit être suffisamment petite telle que le champ de radiation ne doit pas perturber le

mécanisme d'inversion de population; c'est-à-dire on a  $N_{001} > N_{100}$  soit le plus dominant.

Logiquement  $G_0$  est proportionnelle à l'inversion de population selon l'expression :

$$G_0 = \frac{\lambda^2}{4\pi\tau_{21}V_c} (N_{001} - N_{100}) \left(\frac{45.6}{T}\right) e^{-234/T} \quad [55] \quad (3.30)$$

### 3.5. Paramètres laser.

Dans la réalité il existe deux grands modes de fonctionnement des lasers : à trois et quatre niveaux comme donné par la figure.3.20, ainsi les composés chimiques et/ou ions sont excités à partir de l'état fondamental 1 par pompage, soit électrique, thermique ou chimique jusqu'à au niveau 2, par relaxation non radiative.

Ces atomes libèrent une partie de leurs énergies au niveau supérieur et le peuplent rapidement (le niveau émetteur 3), c'est après que se situe la divergence entre le laser à trois niveaux et le laser à quatre niveaux, c'est à partir du niveau 3, les atomes se désexcitent radiativement : c'est la transition laser. Cette relaxation se fait au niveau 1 pour le laser à 3 niveaux, soit au niveau 4 pour le laser à 4 niveaux.

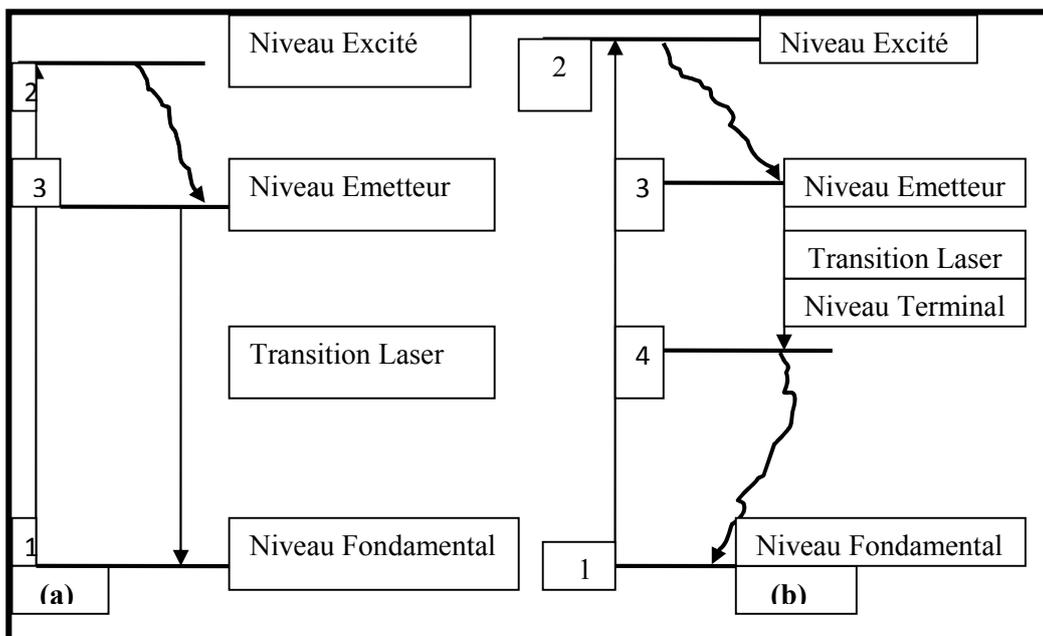


Figure.3.20 Schéma de principe du laser à 4 niveaux.

En règle générale, le niveau 4 se situe à des énergies suffisamment élevées pour ne pas être inexorablement peuplé à haute température "phénomène d'émission stimulé suit une statistique de Boltzmann". Par voie de conséquence il est plus aisé d'obtenir une inversion de population avec les lasers à quatre niveaux.

Par contre dans le cas des lasers à trois niveaux, le niveau terminal est identiquement confondu avec le niveau fondamental, la transition laser ne pouvant se réaliser, pour cause ce niveau est fortement peuplé. Pour mieux comprendre la notion de laser à trois niveaux et celle à quatre niveaux, on commence à expliquer les notions suivantes :

Dans le cas d'une émission laser à trois niveaux, il apparaît réellement plus difficile à mettre au point que son homologue à quatre niveaux, qui présente un gain positif. Ainsi un laser à trois niveaux sera par excellence adéquat pour un laser en mode impulsion, par contre un laser à quatre niveaux est beaucoup plus performant en mode continu.

Physiquement cette particularité réside dans la configuration électronique constituant la matière (propriété intrinsèque), pour un système à trois niveaux la transition d'un électron du niveau 2 vers le niveau 1 se termine par perdre deux unités dans la différence  $N_2 - N_1$  (un pour  $N_2$  qui descend et un pour  $N_1$  qui augmente), par contre, dans un système à quatre niveaux, les transitions très rapides entre les niveaux 1 et 0 permettent de laminé cette différence à une seule unité.

### **3.5.1. Processus directe et indirecte de l'inversion de population.**

On remarque que si les molécules effectuant la transition laser font partie de la réaction chimique, on dit que la réalisation de l'inversion de population est directe, pour ce faire il est nécessaire de trouver ses molécules dans l'état excité correspondant au niveau supérieur de la transition. La figure.3.21, donne la représentation schématique des niveaux d'une molécule constituant un centre actif assimilé à des niveaux vibrationnel.

L'étage 1 et 2 indique respectivement les niveaux d'énergies inférieur et supérieur,  $V$  exprime la vitesse de peuplement du niveau 2, et  $R_1, R_2, R'_2$ , les vitesses de **relaxation** des niveaux, la principale spécificité du pompage chimique est de réaliser une haute sélectivité d'excitation, contrairement au pompage optique, où la montée au stade 2 ne s'accompagne pas d'une *désexcitation*, donc pour le laser chimique la désexcitation se fait d'elle-même.

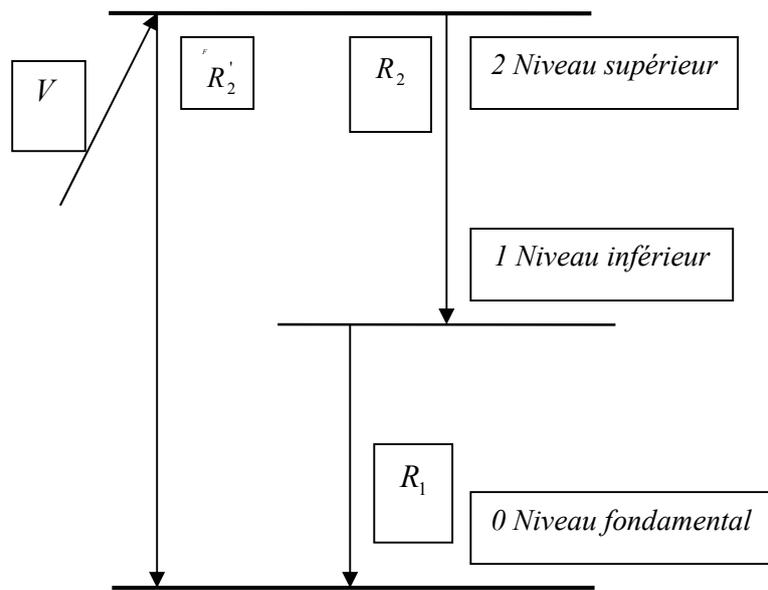


Figure.3.21 Schématisation des centres actifs.

De manière à dire que le pompage chimique *possède en général une prédilection pour des schémas à deux niveaux*, n'est pas vraie, car une telle configuration (figure.3.21) a pour objet d'expliquer seulement la compréhension du phénomène.

Donc le déterminant principal à l'instauration de l'inversion de population est forcément la fraction entre la vitesse de la réaction chimique et les vitesses de relaxation des niveaux, c'est donc une compétition entre deux phénomènes diamétralement opposés.

On écrit alors l'inégalité nécessaire et suffisante pour établir le phénomène :

$$R_1)R_2 \quad (3.31)$$

D'un point de vue thermodynamique, *pour le cas des molécules diatomique, l'équation (3.31) est difficile à réaliser faute de l'existence d'un processus réalisant le dépeuplement sélectif des niveaux vibrationnels inférieurs.*

Ceci d'une part, d'autre part, pour le cas des lasers chimiques, les transitions  $(v+1) \rightarrow v$  sont en général plus rapides que les transitions  $v \rightarrow (v-1)$ , c'est pourquoi dans la pratique on privilégie cette transition, *car elle dure beaucoup plus longtemps pour permettre un bon balayage du niveau inférieur pour se dépeuplé, et laissé la place aux molécules excités du niveau supérieur de se relaxées (se trouvant au niveau supérieur) pour assuré une inversion de population adéquate.*

Par voie de conséquence, il est plus rationnel de réaliser un processus indirect pour accomplir l'inversion de populations (pour paré au problème du rendement médiocre). Lors de l'accomplissement indirecte de l'inversion de la population, le combustible se fractionne pour donné des molécules diatomiques à l'état excité provenant de la réaction chimique, le transfert de l'énergie d'excitation aux autres molécules triatomique à l'état non excité se fait par **résonance**, et ils se relaxent (désexcitent) dans la cavité optique pour donné le laser.

Lors de la rencontre entre les molécules des produits à l'état excité provenant de réaction chimique avec les autres molécules non actives à cette même réaction précitée sont dites "froides" et qui sont sur des transitions vibrationnelles, alors l'inversion de population ait lieu. C'est le cas de la molécule triatomique comme le  $CO_2$ .

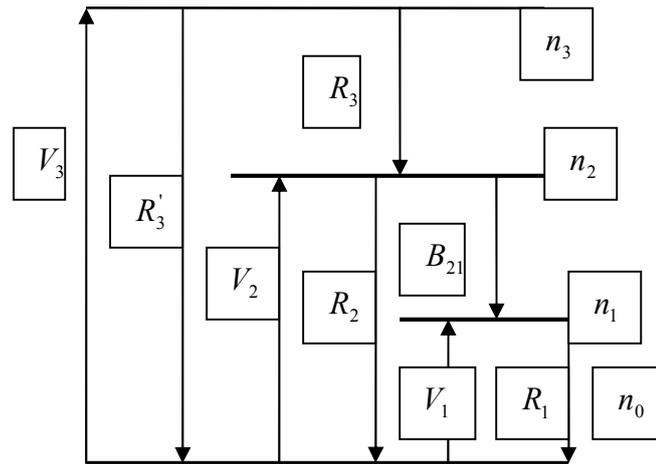
### 3.5.2 Equations gouvernant l'inversion de populations.

La nomenclature de la figure.3.22, est comme suit :

$V$  : Désigne la vitesse de croissance dans les différents niveaux,

$R$  : Désigne la vitesse de décroissance dans les différents niveaux,

$B_{21}$  : Coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée.



**Figure.3.22 Laser à 4 niveaux.**

Dans ce model à quatre niveaux on tient compte de toute les transitions possible dans l'espace temporel rapporté à l'unité et dans un volume de contrôle infiniment petit en régime stationnaire, l'effet laser prend naissance de la transition  $n_3 \rightarrow n_2$  schématisant la relaxation  $R_3$ , la transition  $n_2 \rightarrow n_1$  représente une émission de type spontanée, et qui conditionne dans ce cas là, le phénomène d'inversion de population et l'apparition du mécanisme laser, se référé à la figure.3.22.

Durant le pompage il y a création d'un déséquilibre dans le milieu actif constituant les ingrédients nécessaire à l'apparition du laser, pour ce faire ces centres actifs peuplent tous les niveaux de  $n_0 \rightarrow n_3, n_0 \rightarrow n_2, et n_0 \rightarrow n_1$ , mais cela ne donne pas nécessairement à tous les niveaux l'émission stimulée, donc toute l'analyse réside dans l'établissement du système d'équation qui régissent l'inversion de population on écrit alors :

$$4 V_3 n_0 - (R_3 + R_3') n_3 = 0 \quad (3.32)$$

$$R_3 n_3 + V_2 n_0 - (R_2 + B_{21}) n_2 = 0 \quad (3.33)$$

$$V_1 n_0 + B_{21} n_2 - R_1 n_1 = 0 \quad (3.34)$$

Ces équations sont obtenues par simple addition algébrique sur les différents niveaux de transition, du niveau fondamental (0) jusqu'au quatrième niveau indexé (3).

En faisant intervenir le changement de variable suivant on pose :

$$\begin{aligned}\frac{n_0}{n_1} &= x \\ \frac{n_2}{n_1} &= y \\ \frac{n_3}{n_1} &= z\end{aligned}\quad (3.35)$$

On introduisant ces nouvelles variables dans les équations 3.33, 3.34, 3.35, on obtient le système d'équation suivant :

$$\begin{aligned}V_3x &= (R_3 + R'_3)z \\ V_2x + R_3z &= (R_2 + B_{21})y \\ V_1x + B_{21}y &= R_1\end{aligned}\quad (3.36)$$

Maintenant en introduit la condition nécessaire à l'établissement de l'inversion de population, il est alors évident d'écrire :

$$y > 1 \quad (3.37)$$

A partir du système d'équations (3.36) on l'écrit en fonction de la variable d'inversion de population en tenant compte de l'inégalité (3.34), on aura donc :

$$R_1 > \left[ B_{21} + V_1 \frac{B_{21} + R_2}{V_2 + V_3 R_3 / (R_3 + R'_3)} \right] \quad (3.38)$$

C'est une inégalité très importante et qui exprime l'éventualité des centres actifs se trouvant à un niveau élevé de descendre à un niveau plus bas.

$R_3 / (R_3 + R'_3)$ : Probabilité de passage du centre actif du niveau 3 à descendre au niveau 2.

$V_3 R_3 / (R_3 + R'_3)$ : Probabilité de peuplement du niveau 2 par le niveau 3, par contre les centres actifs peuvent aller au niveau 2 suivant la transition  $0 \rightarrow 2$ , on pose :

$$V = V_2 + \left[ V_3 R_3 / (R_3 + R'_3) \right] \quad (3.39)$$

La probabilité globale de dépeuplement du niveau *supérieur de la transition laser*, et enfin, on a :

$$R = B_{21} + R_2 \quad (3.40)$$

Est la probabilité totale de dépeuplement du niveau supérieur : c'est la relaxation. A partir des équations (3.39), (3.40) et la relation (3.38) de l'inversion de population peut être écrite de la façon suivante :

$$(R_1 - B_{21}) / R > \frac{V_1}{V} \quad (3.41)$$

Dans le régime stationnaire de fonctionnement, l'accomplissement de l'inversion de population exige l'inégalité de l'équation (3.41) :

$$R_1 > B_{21} \quad (3.42)$$

Cette inégalité définit la probabilité totale de dépeuplement du niveau inférieur de la transition laser, et doit être plus rapide que la probabilité de son peuplement par suite des transitions spontanées à partir du niveau supérieur.

De l'équation (3.41) on montre que pour établir l'inversion de population il est primordial d'assurer au moins une des deux inégalités :

$$V \gg V_1 \quad (3.43)$$

$$R_1 \gg R \quad (3.44)$$

Là, on constate que ces inégalités définissent la notion de sélectivité, ou combien nécessaire à l'inversion de populations.

Ainsi l'adéquation (3.43) définit que la probabilité totale de dépeuplement du niveau supérieur de la transition laser doit être nettement supérieure que la probabilité totale de peuplement du niveau inférieur.

Dans le même raisonnement l'inéquation (3.44), désigne que la probabilité totale de relaxation du niveau inférieur doit être sensiblement supérieure au moins à la probabilité totale de relaxation du niveau supérieur de la transition laser, autrement dit en terme de vitesse, la vitesse de relaxation du niveau inférieur doit être largement

supérieur à celle du niveau supérieur pour laissé la place aux molécules du niveau supérieur de se relaxé au niveau plus bas pour que la transition laser peut s'opérée.

Le mariage entre le laser  $HF/DF$  avec la molécule  $CO_2$ , montre que l'excitation des niveaux par des réactions chimiques exothermiques dûment sélectionnées, dont le pompage est régi par la condition nécessaire de relaxation (3.43), chose contraire dans le cas du pompage thermique, ou l'excitation des niveaux se fait par échauffement à l'aide d'un dispositif auxiliaire dans le milieu actif, et la réalisation de ce laser se fait selon la condition nécessaire :

$$V < V_1 \quad (3.45)$$

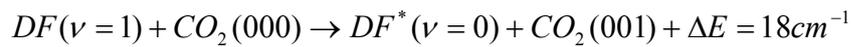
Comme dans l'objet de la thèse, on est dans un processus indirecte d'obtention d'un laser, ou à l'entrée de la chambre de combustion, il y a injection par des trous calibrés du di fluor  $F_2$  moléculaire, avec le gaz inerte hélium  $He$ , dans l'enceinte fermée on dispose d'un système d'allumage à l'instar de celui qui équipe les moteurs à réaction, encore il est utile d'avoir un système, qui permet de crée une faible dépression (une telle tache est assurée par une pompe à vide, pour obtenir quelques millibars).

Sous l'effet de cette haute température la molécule de fluor de dissocie pour devenir à l'état d'atomes, la présence de l'hélium est éviter l'explosion prématurée du fluor atomique, donc entraînée par l'écoulement réaliser par la pompe à vide, les gaz formant ce milieu migrent en traversant un premier empilement de tuyères, durant ce trajet on injecte radialement après les tuyères du  $CO_2$  et  $NO$ .

Durant le parcours le  $CO_2$ , voyage à l'état fondamental, aussi il y a  $F$ ,  $He$  et  $NO$  en entrant dans la deuxième série de tuyères posée juste avant le résonateur, là dans cette partie on injecte diamétralement au sens de l'écoulement le deutérium/hydrogène, durant la contact la rencontre du Deutérium ou l'hydrogène avec le fluor atomique, provoque instantanément une réaction allergolique c'est-à-dire sans dispositif d'allumage.

On à explosion et libération d'une quantité phénoménale de chaleur nécessaire à rompre la liaison covalente qui reliant les atomes formant la molécule  $D_2/H_2$  : on dit que les atomes sont dans un état vibrationnel excité (100) à un niveau métastable.

A l'échelle quantique on dit que l'inversion de population est produite par cette réaction exothermique dans le milieu amplificateur, ces réactions produisent des molécules (l'inversion de population est donc automatique) sur des niveaux de vibrations élevés, qui en se désexcitant, rencontrant les molécules de  $CO_2$  qui sont à l'état vibrationnel (001) au niveau de la cavité de Fabry Perrot par résonance peuvent émettre de la lumière cohérente en infrarouge (dans la gamme  $3-5\mu m$ ), le schéma réactionnel est donné par:



Aussi, on peut dire que l'énergie générée par la réaction chimique exothermique du fluor avec  $D_2/H_2$ , rencontre la molécule de  $CO_2$  qui vient de la chambre de réaction dans un état d'équilibre, à ce niveau il y a synchronisation et récupération de la chaleur de la réaction en mode de vibration excité, par transfert vibrationnel (001) résonant le gaz carbonique se relaxe pour obtenir le laser, comme donné par la figure.3.23.

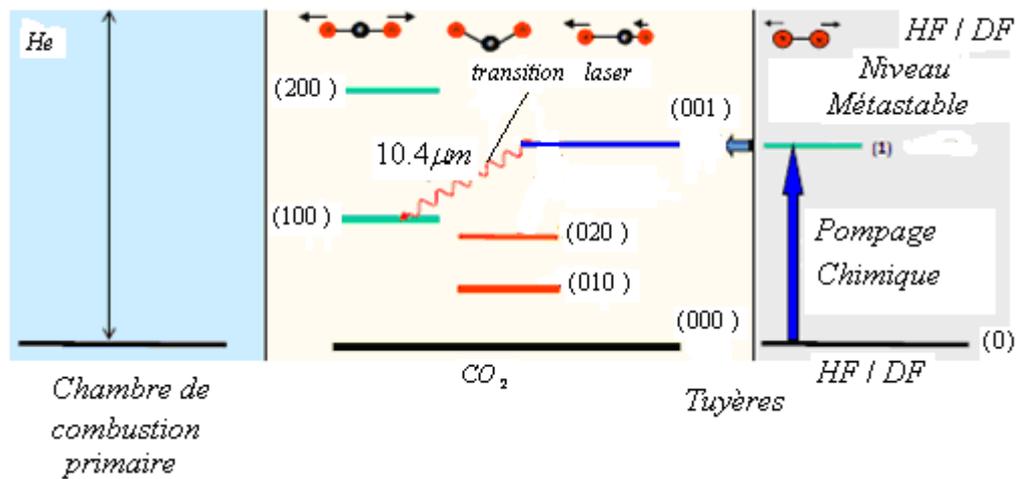


Figure.3.23 Schéma quantique des éléments de la combustion.

## Chapitre IV

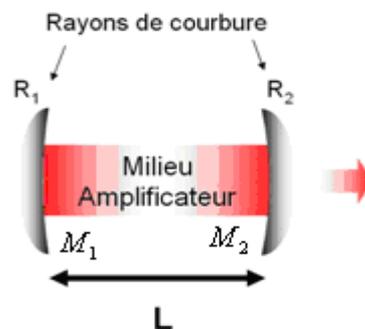
### La Cavité

#### 4.1. Définition de la cavité.

Son rôle est de permettre *l'amplification entretenue de l'onde optique* grâce à un système réfléchissant (système constitué de miroirs). C'est aussi la cavité qui permet, au moyen de ses pertes (un des miroirs utilisés n'est que partiellement réfléchissant) d'obtenir le faisceau laser utile. En dernier lieu la géométrie de la cavité détermine en grande partie les caractéristiques spatiales et spectrales du rayonnement laser émis.

#### 4.2. Description du résonateur.

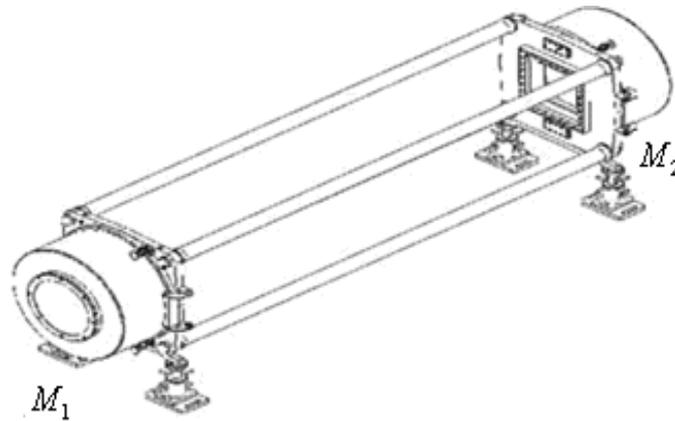
Dans sa forme la plus simple, c'est une boîte parallélépipédique fermée, dont toutes les parois sont métallisées, si on dispose d'un milieu amplificateur dans cette cavité, les modes vont se mettre à osciller et on aura l'amplification laser. Cependant pour que l'onde obtenue soit cohérente, il est nécessaire que le nombre de modes susceptible d'osciller, soit faible. Donc, cette enceinte est formée d'un résonateur linéaire, ou une et une seule direction d'oscillation est permise, ça constitue un résonateur ouvert, constitué dans sa configuration la plus simple de deux miroirs diamétralement opposés dans une disposition dite d'interféromètre de Fabry Perrot. Un tel interféromètre est donné par le schéma.4.1



**Figure.4.1 Cavité linéaire de Fabry Perrot.**

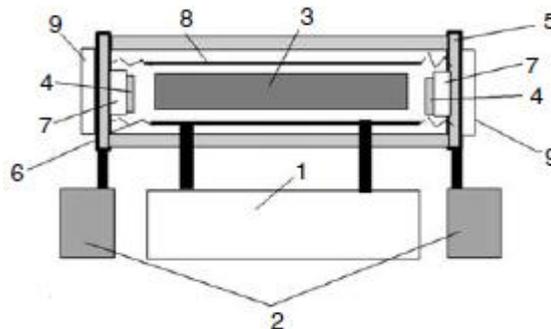
En réalité, cette cavité est de forme tridimensionnelle comme illustré dans la photo 4.2., l'accent est mis sur la nature des miroirs (dans notre cas ils sont

concaves), possédant des rayons de courbures spécifique, dans le cadre des lasers chimique la cavité est non sélective (car la relaxation se fait d'elle-même), le miroirs  $M_1$  est entièrement réfléchissant à un revêtement en or (Au), par contre le miroirs  $M_2$  est partiellement réfléchissant, fait en Germanium avec un revêtement diélectrique, d'où sort le rayon laser.



**Figure.4.2 Photo d'artiste de la cavité laser  $HF/DF-CO_2$ .**

#### 4.3. Convertisseur de l'énergie chimique en énergie cohérente.



**Figure.4.3 Vue de face du résonateur.**

La nomenclature de la cavité est comme suit :

- 1 : Socle du système d'écoulement,
- 2 : Appuis du résonateur,
- 3 : Batterie de tuyères,

4 : Miroirs,

5 : Cadres de maintien du résonateur,

6 : Garnitures d'étanchéité des miroirs,

7 : Appuis ajustables,

8 : Pièces accessoires d'écoulement,

9 : Carter de fermeture des miroirs.

Maintenant il est plus tentant d'expliquer la phénoménologie photonique du laser  $DF$ ,  $HF$  et  $CO_2$ .

#### 4.4. Equations décrivant la densité du flux.

Dans la cavité laser, après libération de l'énergie chimique contenue dans les atomes  $HF/DF$  et  $CO_2$  sous l'effet du pompage, il y a établissement d'un phénomène hautement opto-quantique, dont nous essayons d'établir les équations qui régissent ce phénomène, dans le cadre unidimensionnel.

On suppose que le rayonnement laser se propage dans le milieu actif le long de l'axe  $y$  c'est-à-dire le long de l'axe optique de la cavité laser, on désigne par les symboles, les paramètres suivants :

$S_+(y,t)$  : Densité du flux lumineux, dans le sens positif de  $y$ ,

$S_-(y,t)$  : Densité du flux lumineux, dans le sens négatif de  $y$ ,

$\Delta S_+$  : L'accroissement du flux  $S_+$ , durant sa propagation sur  $y$ , d'un point  $y + \Delta y$ .

*L'application de la loi différentielle de Bouguer, dont l'énoncé, stipule qu'un rayonnement électromagnétique de longueur d'onde  $\lambda$ , traversant un milieu transparent, l'intensité de ce rayonnement subit une diminution exponentielle relativement à la distance parcourue et de la densité des espèces constituant le milieu.*

Nous donne :

$$\Delta S_+ = [\chi(y,t) - \eta_1] S_+(y,t) \Delta y + q(y,t) \Delta y \quad (4.1)$$

Ou :

$\chi(y,t) S_+(y,t) \Delta y$  : Augmentation de la densité du flux, causé par m'amplification du rayonnement des centres actifs, de plus :

$\chi(y,t)$  : Gain d'amplification de l'environnement actif,

$-\eta_1 S_+(y,t) \Delta y$  : détermine la baisse de densité de flux, lié à l'absorption par les centres non actifs, et aussi la diffusion du rayonnement,

$\eta_1$  : Coefficient de pertes nuisibles;

$q(y,t) \Delta y$  : L'augmentation de la densité du flux, entraînée par le processus spontané sous forme de luminescence, et qui est dans le cas général négligé.

L'équation (4.1) acquiert la forme suivante :

$$\Delta S_+ = [\chi(y,t) - \eta_1] S_+(y,t) \Delta y \quad (4.2)$$

Durant son mouvement le flux à l'instant  $t$ , se trouve à l'abscisse  $y$ , et à l'instant  $t + \Delta t$  se trouve au point  $y + \Delta y$ , pour traverser cet espace il met le temps  $\Delta t = \frac{\Delta y}{c}$ , bien sure  $c$  est la célérité de la lumière dans le milieu actif.

La variation de la densité du flux à l'instant  $t + \Delta t$  est :

$$\Delta S_+ = S_+(y + \Delta y, t + \Delta t) - S_+(y, t) \quad (4.3)$$

Puisque l'augmentation de la densité du flux est causée par deux variations, l'une dans l'espace et l'autre au cours du temps, cela nous permet d'écrire :

$$\frac{\partial S_+}{\partial t} \frac{\Delta t}{\Delta y} \Delta y = \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \Delta y$$

$$\Delta S_+ = \frac{\partial S_+}{\partial y} \Delta y + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \Delta y \quad (4.4)$$

Injectant équation (4.3) dans l'équation (4.4), on obtient :

$$[\chi(y,t) - \eta_1]S_+(y,t) = \frac{\partial S_+}{\partial y} \Delta y + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \Delta y, \text{ faisant sortir } \Delta y \text{ en facteur, ce qui}$$

donne après transformation sur l'opérateur Laplace on a :

$$[\chi(y,t) - \eta_1]S_+(y,t) = \left( \frac{\partial S_+}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \right) \Delta y \quad (4.5)$$

En égalisant (4.5) avec (4.4), on aura enfin :

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial S_+}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \right) \Delta y &= [\chi(y,t) - \eta_1]S_+(y,t)\Delta y \Rightarrow \\ \left( \frac{\partial S_+}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \right) &= [\chi(y,t) - \eta_1]S_+(y,t) \end{aligned} \quad (4.6)$$

Le coefficient d'amplification ou le gain est lié à la section efficace et à l'inversion de population par la relation linéaire :

$$\chi(y,t) = \sigma N(y,t) \quad (4.7)$$

L'équation (4.7) prendra la forme suivante :

$$\left( \frac{\partial S_+}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} \right) = [\sigma N(y,t) - \eta_1]S_+(y,t) \quad (4.8)$$

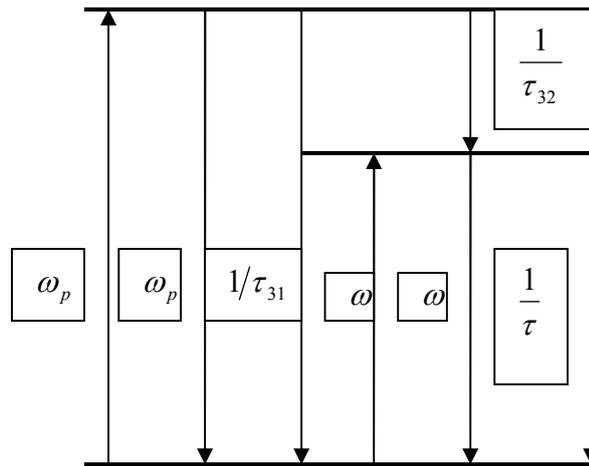
L'équation (4.8) différentielle de la densité du flux lumineux dans le sens des  $y$  positif, par contre, l'autre équation dans le sens des  $y$  négatif (4.9), on multiplie le membre du gradient de la densité du flux par  $-1$  (du faite que le flux fait un mouvement aller et retour dans l'élément actif au sein de la cavité), il vient alors :

$$\left( -\frac{\partial S_-}{\partial y} - \frac{1}{c} \frac{\partial S_-}{\partial t} \right) = [\sigma N(y,t) - \eta_1]S_-(y,t) \quad (4.9)$$

On remarque que les équations régissant les densités de flux dans le milieu actif sont exprimées en fonction des inconnues à savoir :

$S_+(y,t), S_-(y,t), et N(y,t)$ , on a alors trois inconnues et seulement deux équations, dans la section qui suit on se propose d'explorer le phénomène pour trouver l'équation de densité de population.

#### 4.5. Equation de densité d'inversion de populations.



**Figure.4.4 Formulation d'un système à 4 niveaux.**

Comme dans la section précédente, on va maintenant approfondir encore plus notre exploration dans la compréhension du phénomène d'inversion de population, mais sous forme d'équations différentielles.

On suppose que la particule quantique se meut dans un espace bidimensionnel, ou les transitions possibles et probables par rapport à l'unité temps, doivent être cohérent dans l'espace et dans le temps.

Soit :

$\frac{1}{\tau_{31}}$  : La probabilité de transition spontanée des niveaux 1 à 3,

$\frac{1}{\tau_{32}}$  : La probabilité de transition spontanée des niveaux 3 à 2,

$\frac{1}{\tau}$  : La probabilité de transition spontanée dans les niveaux d'oscillation 2 à 1,

$\omega$  : La probabilité de transition stimulée du niveau 2 à 1, due au rayonnement cohérent,

$\omega_{pomp}$  : La probabilité de transition stimulée du niveau 1 à 3, causée par le pompage.

En règle générale, le rayon laser est obtenu durant les transitions s'opérant entre les niveaux énergétiques bien établis des centres actifs appelés communément : niveaux de transitions laser. Pour un laser élémentaire à deux niveaux, on formule le procédé comme suit : le niveau fondamental est symbolisé par  $n_1$ , est le niveau excité est représenté par  $n_2$ , on écrit :

$$N = n_2 - n_1 \quad (4.10)$$

Cette équation n'a de sens que lorsque  $N > 0$ , dans ce cas là on parle d'inversion de population du milieu actif, bien entendu  $N$ , à une double égalité spatio-temporelle.

On note que la faculté d'inversion de population est relative à des intervalles de temps bien déterminés et à des zones bien déterminées du milieu actif. La condition nécessaire et suffisante pour l'obtention d'un rayonnement cohérent est l'inversion de population du milieu actif, on fait intervenir le paramètre coefficient d'amplification d'un milieu homogène noté :

$$\chi = \sigma N \quad (4.11)$$

Avec :

$\sigma$  : La section efficace des transitions lasers stimulée entre les niveaux.

D'un point de vue physique, on doit garder à l'esprit que  $N > 0$ , pour que le processus d'émission stimulée sur la transition laser, l'emporte sur le processus d'absorption du rayonnement qui se produise en même temps. Pour que cette inversion de population soit toujours établie, il est capital que le processus de pompage soit constant dans le temps.

On établi :

$n_i(y,t)$ : Densité de population du  $i$  – ième niveau/temps,

$n'$  : Nombre global de centres actifs/unité de volume.

D'après la figure.4.4. On pose les équations du bilan des populations :

Pour  $n_1$  :

$$\frac{\partial n_1}{\partial t} = w(n_2 - n_1) - w_p(n_1 - n_3) + \frac{n_2}{\tau} + \frac{n_3}{\tau_{31}} \quad (\text{i})$$

Pour  $n_2$  : (4.12)

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} = -w(n_2 - n_1) + \frac{n_3}{\tau_{32}} - \frac{n_2}{\tau} \quad (\text{ii})$$

Pour  $n_3$  :

$$\frac{\partial n_3}{\partial t} = w_p(n_1 - n_3) - \frac{n_3}{\tau_{32}} - \frac{n_3}{\tau_{31}} \quad (\text{iii})$$

Les membres de gauche des équations de bilan, définissent des vitesses de variation des populations par rapport au temps, de plus le nombre des centres actifs n'est tributaire du temps, mais de la nature du milieu et de sa composition moléculaire.

Par ces simplifications, et on faisant (i)-(ii) on écrit :

$$\frac{\partial(n_2 - n_1)}{\partial t} = w(n_2 - n_1) - w_p(n_1 - n_3) + \frac{n_2}{\tau} + \frac{n_3}{\tau_{31}} - \left[ -w(n_2 - n_1) + \frac{n_3}{\tau_{32}} - \frac{n_2}{\tau} \right]$$

Ce qui donne :

$$\frac{\partial(n_2 - n_1)}{\partial t} = -2w(n_2 - n_1) + w_p(n_1 - n_3) - 2\frac{n_2}{\tau} + n_3\left(\frac{1}{\tau_{32}} - \frac{1}{\tau_{31}}\right) \quad (4.13)$$

Notre raisonnement commence par l'assertion, lorsqu'on démarre d'une émission à deux niveaux, selon la figure 4.4, on suppose qu'au niveau 3 tous les centres actifs ne rassemblent pas un à un, ce qui implique qu'ils sont en déficit d'énergie (on dit mieux que ça, ils sont en perte de cinétique), logiquement ils (centres actifs) descendent au niveau 2, mathématiquement on écrit :

$$\begin{aligned} n_3 &\ll n_1; \\ \frac{\partial n_3}{\partial t} &\approx 0; \\ \tau_{32} &\ll \tau_{31} \end{aligned} \quad (4.14)$$

L'équation (4.14) injectée dans l'équation (iii), on aura alors :

$$w_p n_1 = \frac{n_3}{\tau_{32}} \quad (4.15)$$

On remplaçant les équations (4.14) et (4.15) dans (4.13) on obtient donc :

$$\frac{\partial(n_2 - n_1)}{\partial t} = -2w(n_2 - n_1) + 2w_p n_1 - 2\frac{n_2}{\tau} \quad (4.16)$$

Faisant usage de l'équation (4.14), en considérant aussi  $n_3 \ll n_1$  et on pose:

$$n_1 + n_2 = n' \quad (4.17)$$

Eliminant  $n_2$  de l'équation (4.17) et le remplacer dans l'équation (4.16) on obtient alors :

$$n_1 = \frac{1}{2}(n' - N) \quad (4.18)$$

De même pour  $n_1$  on a :

$$n_2 = \frac{1}{2}(n' + N) \quad (4.19)$$

L'équation (4.13) sera exprimée en fonction de  $n'$  et  $N$ , ce qui donne :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -2wN + w_p(n' - N) - \frac{(n' + N)}{\tau} \quad (4.20)$$

Ordonnant cette équation graduellement dès les niveaux d'énergie vers les centres actifs on aura donc :

Dans le cas d'un laser à quatre niveaux, le chemin logique prend la forme suivante, voir la figure.4.4, le pompage passe du niveau 0 jusqu'au niveau 3 et l'oscillation laser s'opère à partir du niveau 2 vers le niveau1, cela dit que le niveau 1 se vide rapidement pour laissé la place à la relaxation laser, dans ce cas de figure on écrit :

$$N = n_2$$

Et l'équation différentielle (4.20) endossera la forme suivante :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -(w_{Pomp} + \omega + \frac{1}{\tau})N + n' w_{Pomp} \quad (4.21)$$

### **L'équation générale d'inversion de population dans un système de pompage à quatre niveaux.**

On appliquant la relation (4.21), on sachant :

$$I = (S_+ + S_-) / \hbar \omega \quad (4.22)$$

Substituant cette équation dans l'équation (4.22) on obtient donc :

$$\sigma = w / (S_+ + S_-) / \hbar \omega \Rightarrow \sigma = w \hbar \omega / (S_+ + S_-) \quad (4.23)$$

L'expression de pompage  $w$ , dans le milieu actif pour l'émission stimulée est définie par :

$$w = B_{21}(S_+ + S_-) / \nu \quad (4.24)$$

Avec :

$B_{21}$  : Coefficient d'Einstein,

$(S_+ + S_-)$  : Densité du flux lumineux,

$\nu$  : Fréquence.

On remplaçant (4.24) dans (4.23) on a :

$$\sigma = \frac{B_{21}(S_+ + S_-)}{\nu} \times \frac{\hbar\omega}{(S_+ + S_-)}$$

Enfin :

$$\sigma = \frac{B_{21}\hbar\omega}{\nu} \quad (4.25)$$

A partir des équations (4.21) et (4.22) avec l'apport de (4.23) on obtient le système complet d'équations de bilan pour un laser à quatre niveaux : (4.8) et (4.9).

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_+}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} &= [\sigma N(z,t) - \eta_1] S_+(z,t) \\ -\frac{\partial S_-}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_-}{\partial t} &= [\sigma N(z,t) - \eta_1] S_-(z,t) \quad (4.26) \\ \frac{\partial N}{\partial t} &= -\left[ w_p + \frac{\sigma}{\hbar\omega} (S_+ + S_-) + \frac{1}{\tau} \right] N + n' w_p \end{aligned}$$

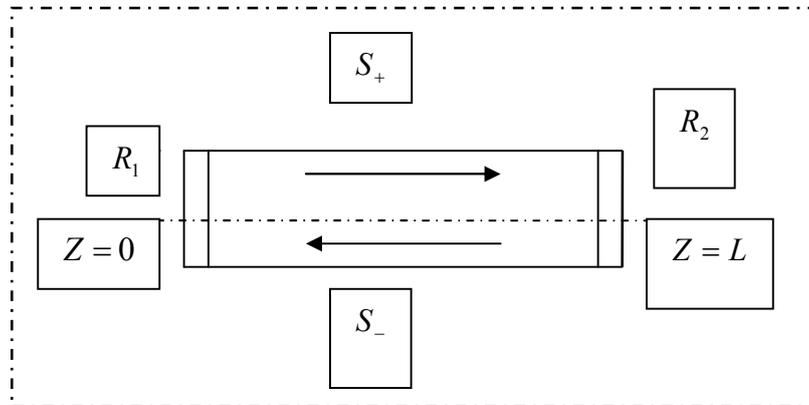


Figure.4.5 Formulation de la cavité résonante.

$Z : 0 - L$  : Longueur caractéristique de la cavité résonnante,

$R_1, R_2$  : Rayon de courbure des miroirs pour  $Z = 0, Z = L$ ,

$\sigma$  : Section efficace.

L'équation générale des conditions aux limites s'écrit :

$$S_+(z, t) = R_1 S_-(z, t)$$

$S_+$  Signifie l'amplification des centres actifs pour mieux transformer l'énergie chimique en effet photonique.

$S_-$  Explique que les centres non actifs chimiquement constituent des absorbeurs d'énergie.

Appliquant les conditions aux limites de la cavité laser, se référés à la figure.4.5 :

$$\begin{aligned} S_+(0, t) &= R_1 S_-(0, t) \\ S_-(L, t) &= R_1 S_+(L, t) \end{aligned} \quad (4.27)$$

On pose en premier lieu les conditions suivantes, tout en agissant sur le paramètre d'inversion de population, et la densité du flux lumineux approximées à leurs valeurs moyennes, on écrit :

$$\begin{aligned} S_+ + S_- &= S \\ S_+ - S_- &= S' \end{aligned} \quad (4.28)$$

En faisant la somme des deux premières équations du système (4.26), et en tenant compte de l'équation (4.28) on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial S_+}{\partial y} - \frac{\partial S_-}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_+}{\partial t} + \frac{1}{c} \frac{\partial S_-}{\partial t} = \\ [\sigma N(z, t) - \eta_1] S_+(z, t) + [\sigma N(z, t) - \eta_1] S_-(z, t) \end{aligned}$$

Après avoir ordonné, on aura :

$$\frac{\partial S'}{\partial y} + \frac{1}{c} \frac{\partial S}{\partial t} = [\sigma N(z, t) - \eta_1] S(z, t)$$

La solution de cette équation différentielle non homogène, on pose la condition aux limites suivantes :

$z : 0 \rightarrow L$ , on écrit donc :

$$S'(L, t) - S'(0, t) + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \int_0^L S(z, t) dz = \sigma \int_0^L N(z, t) S(z, t) dz - \eta_1 \int_0^L S(z, t) dz \quad (4.29)$$

On moyennant cette équation sous la forme suivante :

$$\langle f \rangle = \frac{1}{L} \int_0^L f(z, t) dz$$

Sous cette formulation on écrit alors (4.29) :

$$S'(L) - S'(0) + Lcd\langle S \rangle dt = \sigma L \langle NS \rangle - \eta_1 L \langle S \rangle \quad (4.30)$$

On utilisant l'approximation :

$$\langle NS \rangle \approx \langle N \rangle \langle S \rangle \quad (4.31)$$

L'équation (4.30) devient :

$$S'(L) - S'(0) + \left(\frac{L}{c}\right) d\langle S \rangle / dt = L(\sigma \langle N \rangle - \eta_1) \langle S \rangle \quad (4.32)$$

Par identification avec l'équation (4.31), l'équation (4.32) devient, ce qui donne l'expression l'intensité du flux lumineux issu de la relaxation du  $CO_2$  dans la cavité est :

$$\begin{aligned} S_{sor} &= [S_+(L) - S_-(L)] + [S_-(0) - S_+(0)] = \\ &= S'(L) - S'(0) \end{aligned} \quad (4.33)$$

Faisant intervenir le coefficient de perte utile noté  $\eta_2$  la puissance de sortie est :

$$S_{sor} = L \langle S \rangle \eta_2 \quad (4.34)$$

Avec bien sure  $\eta_2 = \left(\frac{1}{2}L\right) \ln\left(\frac{1}{R_1 R_2}\right)$ . (4.35)

On liant les relations (2.624.34) et (2.614.33) on écrit :

$$S'(L) - S'(0) = L\langle S \rangle \eta_2 \quad (4.36)$$

De cela, on écrit l'équation :

$$\left(\frac{L}{c}\right) \frac{d\langle S \rangle}{dt} = L\sigma\langle S \rangle \langle N \rangle - L(\eta_1 + \eta_2)\langle S \rangle \quad (4.37)$$

On introduit la désignation suivante :

$$K = w_p \tau \quad (4.38)$$

Le système d'équation (4.26) prend la forme, pour **le laser à quatre niveaux** :

$$\begin{aligned} \frac{1}{c} \frac{dS}{dt} &= \sigma S(t) N(t) - (\eta_1 + \eta_2) S(t) \\ \frac{dN}{dt} &= -\frac{\sigma S(t) N(t)}{\hbar \omega} - \frac{N(t)}{\tau} (K + 1) + \frac{n'}{\tau} K \end{aligned} \quad (4.39)$$

#### 4.6. Equations de Statz et De Mars.

Sous certaines simplifications dans le milieu actif, ces équations de bilan (4.39) seront nommées équations de **Statz et De Mars** et vont êtres écrites comme suit :

$$\begin{aligned} \frac{dM}{dt} &= B' M(t) N(t) - \frac{M(t)}{T} \\ \frac{dN}{dt} &= -\beta B' M(t) N(t) + \frac{N_0 - N(t)}{T_1} \end{aligned} \quad (4.40)$$

On pose donc :  $B' = B\hbar w$

$B$  : Coefficient d'Einstein de la transition stimulée,

$T$  : La durée de vie d'un photon dans la cavité  $T = \frac{Q}{\omega} = \frac{\text{perte.dans.la.cavité}}{\text{Energie.totale.fournie}}$ ,

$T_1$  : Temps de relaxation longitudinale, c'est-à-dire la relaxation qui se mit en place entre les niveaux d'énergie,

$\frac{1}{T_1}$  : La probabilité de variation d'inversion de population des niveaux suite à la relaxation,

$\beta$  : Terme correctif entier en cas d'émission d'un photon en énergie laser,

$N_0$  : Densité d'équilibre d'inversion de population sans oscillation.

De ce système d'équation on constate les inconnues suivantes :

$$\begin{aligned} N(t), \\ M(t). \end{aligned}$$

$N(t)$  : Densité d'inversion de population,

$M(t)$  : Densité de nombre de photons de l'effet laser.

On sait que :

$$M(t) = \frac{S(t)}{c\hbar w} \quad (4.41)$$

$c$  : Vitesse de la lumière,

$\hbar w$  : Energie de photon.

Les équations de Statz et De Mars détiennent une interprétation physique très significative, à savoir que la première équation du système (4.39) stipule que la densité des photons dans la cavité augmente suite *aux transitions stimulées* (fait établi, car la transition stimulée l'emporte sur le phénomène d'absorption) et diminue suite aux pertes dans la cavité, et régresse suite aux déperditions à l'intérieur du résonateur.

On constate que la vitesse de croissance est le produit de la densité d'inversion de population  $N$  par  $w$  qui constitue la probabilité sur le temps de la transition laser, on utilisant l'équation (4.24) on écrit alors :

$$w = BS / c = B\hbar\omega M = B'M \quad (4.41')$$

On obtient l'expression de la vitesse :

$$wN = B'MN$$

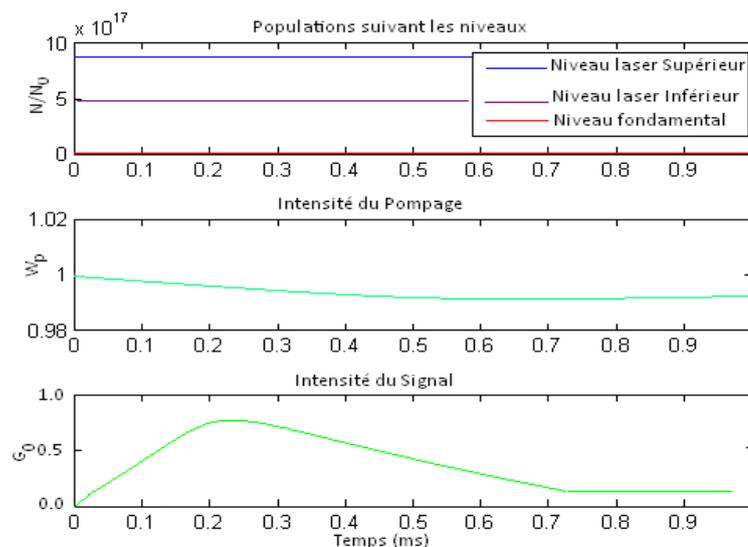
Cette relation est la première équation du système (4.40), pour ce qui est du facteur  $\frac{M}{T}$ , il stipule la vitesse de décroissance de la densité de nombre de photons, qui est inversement proportionnel à la durée de vie du photon dans la cavité, on peut aussi l'écrire:

$$\frac{1}{T} = c(\eta_1 + \eta_2) \quad (4.42)$$

$\eta_1$  : Coefficient de pertes nuisibles,

$\eta_2$  : Coefficient de pertes utiles.

La figure 4.6 donne la densité de population, qui pour le niveau excité est de l'ordre de  $10^{17}/\text{cm}^3$ , ce qui remarquable pour l'effet laser, pour le pompage il varie sensiblement au alentour de 90% cela s'explique par la haute vivacité des réactions chimique activées par le fluor.



**Figure.4.6.Densité de Populations, Pompage, et signal vs Temps.**

La deuxième équation du système (4.40) exprime le caractère que la densité d'inversion de population diminue pendant l'émission induite et augmente grâce à l'effet entretenu du pompage, au détriment de l'effet de vidange du niveau supérieur de la transition laser conditionné antérieurement par l'étape de relaxation.

L'expression de la vitesse de décroissance est :

$$V_{\text{déc}} = \beta B' MN$$

Et la vitesse de croissance est aussi :

$$V_{\text{croi}} = \frac{N_0 - N}{T_1}$$

Le composant  $N_0$  de cette équation est nommé densité d'équilibre d'inversion de population en absence d'oscillation laser, ce paramètre là mérite un temps d'arrêt pour mieux l'expliqué, on suppose, qu'on a réalisé les conditions rendant impossible l'effet laser, par exemple une rupture dans la réaction en chaîne, ou aussi un désalignement dans le parallélisme des miroirs, et c'est bien cette deuxième supposition qui retenue pour mieux expliqué le paramètre  $N_0$ . Mais on admet que le pompage chimique est stationnaire dans le temps.

Si le processus de relaxation ne s'opère pas (vidange des niveaux inférieurs sous l'émission spontanée ne se produit pas), la densité d'inversion de population  $N$  devrait augmenter jusqu'à ce que tous les centres actifs formant le milieu dans la cavité de Fabry Perrot passent au niveau supérieur de la transition laser ( $N = n'$ ).

Alors que le processus de relaxation est un phénomène qui se produit de façon **continue**; de ce fait la fonction croissante  $N(t)$  tend vers une valeur constante ( $\langle n' \rangle$ ) pour laquelle les deux effets à savoir **pompage- relaxation** s'équilibrent mutuellement. C'est bien cette valeur de densité d'inversion de population qu'on écrit  $N_0$ .

On établit que cette valeur  $N_0$  pour laquelle on a la compensation **pompage- relaxation** est d'autant plus grande que la puissance de pompage due à la réaction chimique exothermique est conséquente. D'où l'appellation de ce paramètre  $N_0$ : **paramètre de pompage**.

Restant toujours dans la deuxième équation du système (4.40) dit de Statz et De Mars :

$$\frac{dN}{dt} = -\beta B' M(t) N(t) + \frac{N_0 - N(t)}{T_1}$$

La solution triviale à une telle équation est comme suit :

Si on pose  $M = 0$  (on dit qu'on a absence d'oscillation), la solution  $N = N_0$ ,

et  $\frac{dN}{dt} = 0$ , on dit aussi, que le pompage et le processus de relaxation s'équilibrent mutuellement.

#### 4.7. Relation entre le système de Statz et De Mars et les équations de bilan.

A partir de l'équation (4.39), (4.40), (4.42) et (4.41'); le système de Statz et De Mars devient donc :

$$\frac{dS}{dt} = c\sigma S(t)N(t) - c(\eta_1 + \eta_2)S(t) \quad (*)$$

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{\sigma}{\hbar\omega} S(t)N(t) - \frac{N(t)}{\tau}(K+1) + \frac{n'}{\tau}K \quad (**)$$

Ce qui est frappant c'est que l'équation (\*) se superpose avec l'équation du bilan moyenné (2.67), par contre pour la seconde relation est différente, pour cause, le système moyenné tiens en considération de cas réel des niveaux de transitions laser à quatre niveaux.

Par identification entre le système (4.40) et (\*\*) on tire les paramètres suivant :

Ou :

*TVR* : désigne le transfert vibrationnel résonant,

*DR* : désigne la désactivation radiative,

*NLS* : désigne le niveau laser supérieur,

*NLI* : désigne le niveau laser inférieur,

*000* : niveau fondamental,

*001* : niveau vibrationnel excité.

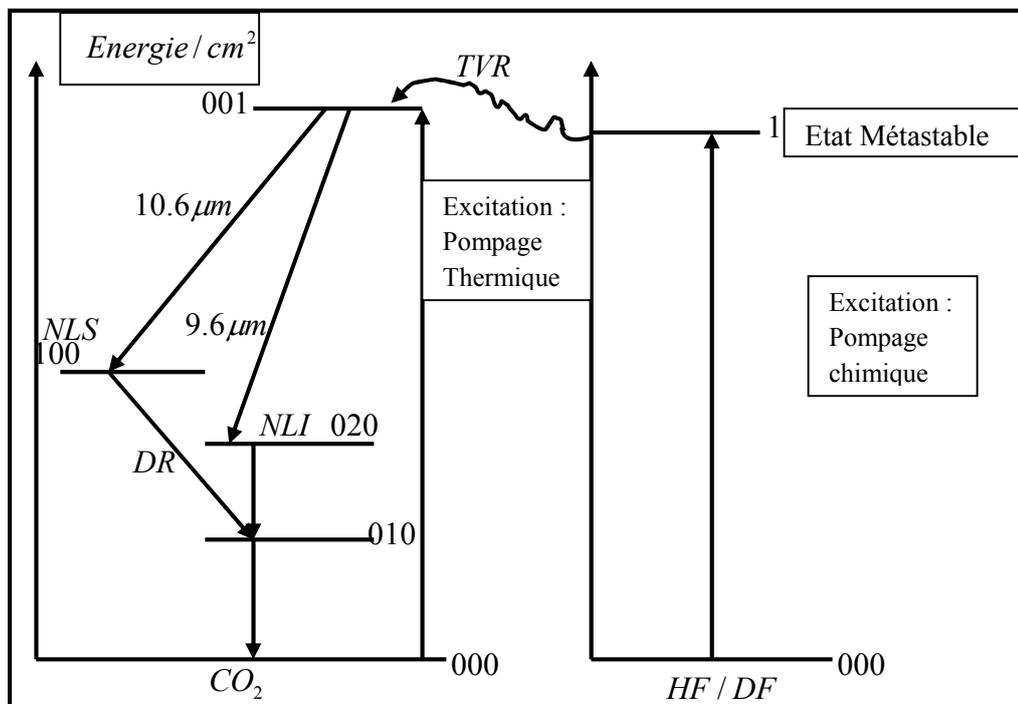


Figure.4.7 Diagramme énergétique des transitions  $HF / DF - CO_2$ .

Ainsi, indexer 1 le niveau fondamental, la mise en place de photons dans la transition  $2 \rightarrow 1$  aura pour conséquence une chute de la différence de population des centres actifs du niveau supérieur mais aussi par suite de l'augmentation de la population du niveau inférieur.

Donc, la naissance d'un photon devra s'accompagner d'une diminution de la différence de population des niveaux de la **transition laser, se produit seulement par suite de la réduction de la population du niveau supérieur car les centres actifs atterrissent au niveau inférieur et passent directement au niveau fondamental ce qui justifie le paramètre  $\beta = 1$ .**

A partir de l'équation  $T_1 = \frac{\tau}{K+1}$ , on faisant son inverse on obtient :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{K+1}{\tau} = w_p + \frac{1}{\tau}$$

De cette relation découle que, la probabilité globale de relaxation est l'addition de deux probabilités à savoir :

L'une de pompage notée :  $w_p$ ,

Et l'autre de relaxation notée :  $\frac{1}{\tau}$

Par contre la fonction  $N_0 = \frac{n'K}{K+1}$ , stipule la variation du paramètre de pompage chimique, due à la réaction de  $HF/DF$ , qui durant son parcours à travers les tuyères percute le dioxyde de carbone, il y a là échange vibrationnel asymétrique (001) par résonance vers le niveau (100), pour donner le laser :

Comme il a été défini par (4.7) le gain est :

$$\chi_0 = \sigma N_0$$

Pour que l'oscillation ait lieu il est important de réaliser la condition :

$$N_0 \gg N_{seuil}$$

Sachant que :

$$N_{seuil} = \frac{\eta_1 + \eta_2}{\sigma} \text{ et } N_0 = \frac{n'K}{K+1}$$

$$\Rightarrow \frac{n'K}{K+1} \gg \frac{\eta_1 + \eta_2}{\sigma}$$

Dans le cas du laser à quatre niveaux on écrit :

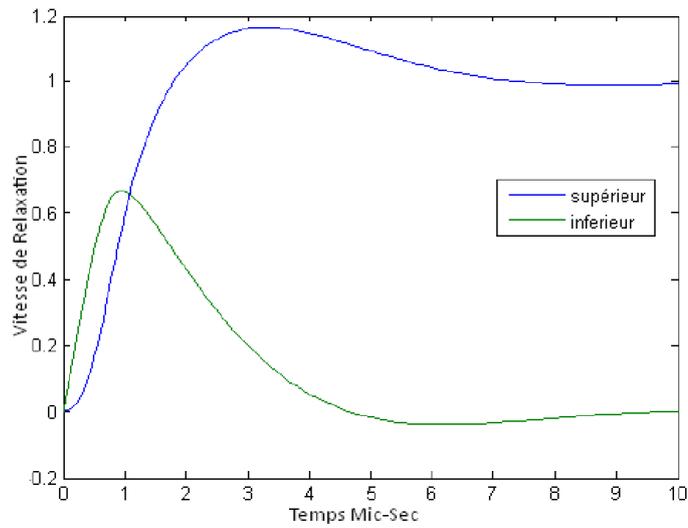
$$K_{seuil} \gg \left[ \frac{\eta_1 + \eta_2}{\sigma n' - (\eta_1 + \eta_2)} \right]$$

Enfin la probabilité de réalisation d'un pompage efficace, pour réaliser une émission stimulée est :

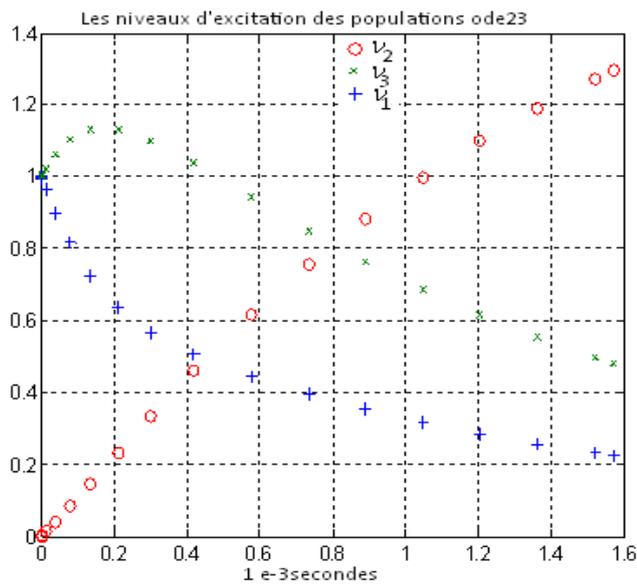
$$w_{pseuil} = \frac{K_{seuil}}{\tau} = \frac{\eta_1 + \eta_2}{\tau [\sigma n' - (\eta_1 + \eta_2)]}$$

De cette équation on constat que le seuil de pompage est tributaire du rayonnement issue des sections efficaces, des pertes nuisibles et utiles.

De la figure 4.8, on constate que la vitesse de relaxation du niveau inférieur est plus rapide que celle du niveau supérieur ce qui caractéristique des lasers chimiques, pour permettre le vidange du niveau inférieur avant le niveau supérieur pour que la désactivation radiative puisse avoir lieu.

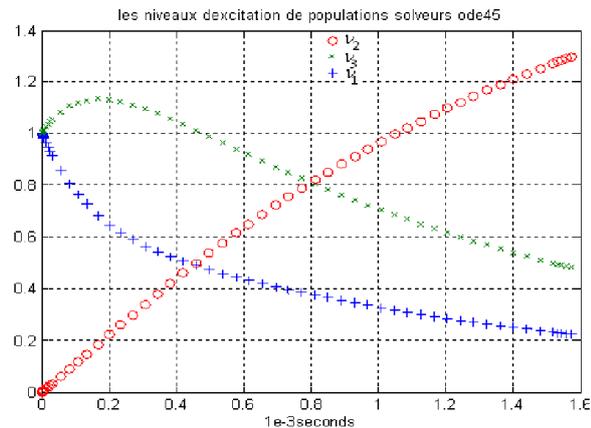


**Figure.4.8 Distribution de la vitesse de relaxation versus temps.**



**Figure.4.9 Distribution des populations ODE23.**

La figure 4.9, explique la variation des nombres quantiques  $\nu_1, \nu_2, \nu_3$  qui décrivent l'état des degrés de libertés des constituant de nitre milieu, pour notre cas c'est la molécule de  $\text{CO}_2$ , les densités de population pour  $\nu_3$  commence à baissé après leurs passage dans le milieu actif.



**Figure. 4.10** Distribution des populations ODE45.

**4.8. Définition des sections efficaces effectives.**

Puisque on agit dans un environnement à une échelle infiniment petite, et pour donner aux équations différentielles de bilan une signification plus réaliste, on fait intervenir le paramètre de la **section efficace** ou **aussi section de capture**, notée  $\sigma$ , [56]. on fait intervenir le paramètre de la **section efficace** ou **aussi section de capture**, notée  $\sigma$ , [56].

Pour excité le milieu actif on déclenche une réaction chimique exothermique, nécessaire à rompre la liaison inter atomique, donc la molécule  $F$  rencontre  $D_2/H_2$ , il y a libération d'une quantité gigantesque de chaleur, à cause de la petitesse des éléments formant le milieu, l'énergie déployée pour accélérer un grand nombre de centre actifs formés de particules, ce nombres de particules dépasse de beaucoup l'énergie récupérée dans les rares collisions produites.

La probabilité d'un processus est  $w$  tel que :

$$w = \sigma n dx,$$

Quant un faisceau de  $I$  particules par  $cm^2/s$  percute une particule cible, il génère

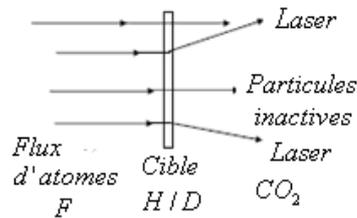
$I \sigma dx$  : Réactions par seconde et par unité de surface, pour une épaisseur élémentaire, la section efficace sera :

$$\sigma = w / I \quad [Barn] \quad (4.43)$$

Cette unité, viens de la section géométrique d'un atome  $\pi d^2 / 4 \approx 10^{-14} \text{ cm}^2$ ,

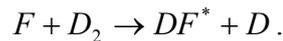
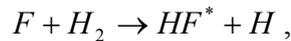
On remarque que le taux de relaxation des molécules  $HF$  dans le mélange  $H_2, F_2$  est moindre, et la transformation significative provienne principalement du déséquilibre qui s'opère dans le milieu actif, en créant une distribution au sein des niveaux supérieurs.

Cette transformation ne s'opère qu'après seulement un large nombre de collisions moléculaires à travers les sections efficaces constituant les centres actifs.



**Figure.4.11 Schéma d'une section efficace.**

En premier lieu, on n'atteste que les réactions :



Sont réalisables, seulement si le pompage est suffisamment efficace en instaurant un peuplement des niveaux supérieur et par la suite il y a relaxation vers des niveaux plus bas.

La relation liant ces deux particules est notée  $\sigma$  qui est la section efficace, le lien entre le taux d'interaction  $T$  et  $\sigma$  est :  $T = \sigma \Phi P_{cible} = \sigma \Phi_{cible} S$

$\Phi$  : Le flux de particules incidentes/unité de surface et par temps,

$P_{cible}$  : Nombre de particules cible dans l'incidence correspond à la surface  $S$  couverte par le faisceau,

$s_{cible}$  : Le nombre de particules cible par unité de surface.

On cherche maintenant le nombre de particules par unité de volume notée  $n_{cible}$ , soit  $d$  l'épaisseur du milieu cible,  $\rho$  la masse volumique de ce milieu et  $A$  sa masse atomique,  $N_A$  le nombre d'Avogadro, on écrit donc :

$$n_{cible} = \frac{P_{cible}}{V} = \frac{(n_{mol} N_A)}{V} = \left( \frac{M N_A}{A} \right) / V = \rho N_A / A$$

De plus le nombre de particules dans la cible  $P_{cible}$  :

$$P_{cible} = n_{cible} V = n_{cible} S d = (\rho N_A / A) S d$$

Par contre le nombre de particules par unité de surface  $s_{cible}$  :

$$s_{cible} = \frac{P_{cible}}{S} = \frac{n_{cible} S d}{S} = n_{cible} d$$

$$= \left( \frac{\rho d N_A}{A} \right) \Rightarrow s_{cible} = \left( \frac{\rho d N_A}{A} \right) [cm^{-2}]$$

#### 4.9. Probabilité d'interaction.

Par cette notion on définit la probabilité d'interaction des particules avec la matière, on se préoccupe généralement du paramètre ( $p$ ) qu'une entité réagit avec un environnement d'épaisseur donné, et elle est définie par le rapport entre le taux d'interaction sur le flux surfacique, on pose :

$$p = \frac{T}{\Phi S} = \sigma s_{cible} = \sigma \frac{N_A \rho d}{A}$$

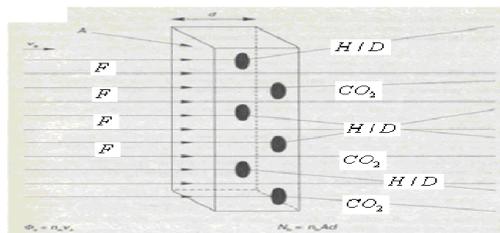


Figure. 4.12 Schéma de la section efficace HF/DF-CO<sub>2</sub>.

Cette probabilité d'interaction étroitement à la quantité  $\rho d$ , nommée densité de masse surfacique dont l'unité est  $g/cm^2$ , et aussi  $\sigma$  en  $cm^2$ , finalement le paramètre  $p$  est adimensionnel mais exprime la probabilité qu'une collision avec une cible s'opère dans une surface bien déterminée.

Pour mieux vulgariser ce concept qui est primordial, on doit imaginer  $\sigma$  comme une surface géométrique, au sein de laquelle une particule percutant une cible dans cette aire serait diffusée, par contre à l'extérieur de cette aire elle pénètre la cible sans diffusion.

L'accent est mis sur cette aire qui représente l'éventualité presque certaine qu'un processus de transfert vibrationnel d'énergie, par transformation en photon cohérent peut avoir lieu avec efficacité, voir la figure.4.12.

#### 4.10. Principe de calcul de la probabilité d'interaction.

On définit la probabilité par unité de distance est donné par :

$$w = \frac{p}{d} = \frac{N_A \rho \sigma}{A} = \sigma n_{cible}$$

$n_{cible}$  : Densité volumique des noyaux cible.

La probabilité pour qu'une particule incidente ait une interaction entre les distances  $x$  et  $x + dx$  est :

$$w dx = \frac{N_A \rho \sigma}{A} dx = \sigma n_{cible} dx$$

L'accroissement du flux de particules pendant sa traversé de la distance infinitésimale  $dx$  va varier de :

$$d\Phi = -\Phi w dx = -\Phi \sigma n_{cible} dx$$

On ordonnant cette égalité on obtient :

$$\frac{d\Phi}{\Phi} = -\sigma n_{cible} dx$$

Après intégration de cette simple équation différentielle on écrit :

$$\int \frac{d\Phi}{\Phi} = -\int \sigma n_{cible} dx \Rightarrow \ln \Phi = -\sigma n_{cible} x$$

D'où la variation du flux de particules incidentes :

$$\Phi(x) = \Phi_0 e^{-\sigma n_{cible} x}$$

$\Phi(x)$  : Nombre de particules n'ayant interagit après l'abscisse  $x$  .

Par contre le reste des particules qui ont interagit avec le milieu est :

$$\Phi(x) = \Phi_0 (1 - e^{-\sigma n_{cible} x})$$

Pour le cas de transmission de flux moléculaire  $CO_2$  transmis derrière une cible de  $HF$  de  $1mm$  si on prend la section efficace totale d'interaction de  $10^{-16} cm^2$ , on a les données pour la molécule  $HF$  .

$$x = 1mm = 10^{-3} m ,$$

$$\sigma = 1.5 \cdot 10^{-18} m^2$$

$$\rho = 987 kg / m^3$$

$$A = 0.02001 kg / mole$$

$$N_A = 6.02 \cdot 10^{23} mole^{-1}$$

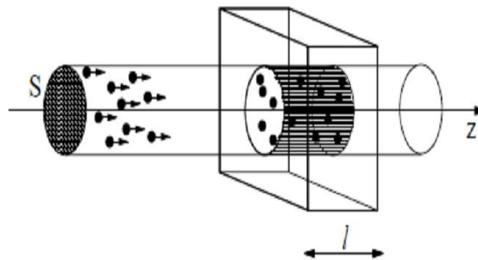
Le calcul donne alors :

$$n_{cible} = \frac{\rho}{A} N_A = \frac{987}{0.02001} 6.02 \cdot 10^{23} = 49325 \cdot 10^{23} = 0.49325 \cdot 10^{28} m^{-3}$$

$$\sigma n_{cible} x = 1.5 \cdot 10^{-18} \cdot 0.493 \cdot 10^{28} \cdot 10^{-3} = 0.73 \cdot 10^{-7}$$

$$\frac{\Phi}{\Phi_0} = e^{-0.73 \cdot 10^{-7}} = 0.99$$

On suppose le faisceau de section géométrique  $S$  percute un milieu dense renfermant  $n$  particules par unité de volume, les particules incidentes vont Interagir avec les  $N$  cibles hachurées par le faisceau incident dans le milieu cible, représenté par la figure.4.13.



**Figure.4.13 Schéma des particules incidentes.**

Dans le cas où la cible est amplement mince afin qu'il n'y ait pas de recouvrement des sections présentées au faisceau par les particules cibles, la probabilité d'interaction sera aisément  $N$  fois plus consistante :

$$P = \frac{N_{chocs}}{N_{proj}} = \frac{N_{cibles} \sigma}{S}$$

$N_{cibles}$  : Est exprimée en relation avec les cotes du parallélépipède tel que :

$$N_{cibles} = nV = nSl$$

En remplaçant dans la relation ci-dessus on écrit :

$$P = \frac{N_{chocs}}{N_{proj}} = \frac{\sigma}{S} N_{cibles} = \sigma nl$$

On constate d'après cette expression, que le paramètre  $S$  du faisceau est absent explicitement, mais tacitement il y a une relation entre la probabilité de collision et la densité surfacique tel que :

$$\frac{N_{cibles}}{S} = nl$$

D'après la relation de probabilité de collision  $P = \sigma nl$ , on constate que cette probabilité de collision est indépendante de la surface  $S$ , et pour que le choc soit efficace il est important que le faisceau ou la cible soit homogène.

Enfin ce concept de probabilité permet de définir la logique de *cible mince* pour délimiter le domaine de validité, pour ce faire on doit vérifier la condition

$$P = \sigma nl \leq 1$$

#### 4.11. Rendement Quantique et Energétique d'un laser.

C'est un paramètre important dans l'évaluation du phénomène, et relatif à une pléiade de facteurs, parmi lesquels le choix d'un schéma de niveaux des centres actifs et du procédé de pompage.

Le raisonnement débute par la supposition que les centres actifs sont régies par un schéma à quatre niveaux le niveau 3 est peuplé sous l'effet du pompage : c'est un niveau excité métastable, de plus on suppose que toute l'énergie de pompage est consommée par les centres actifs constituant le milieu de pompage, de manière que les transitions parasite et dégénérées ne peuvent avoir lieu : c'est un scénario idéal qu'on juge opportun d'étudier. Donc, le rendement laser est maximal pour un seul centre actif et il est formé par le rapport de deux énergies, l'une fournie (celui du pompage) et l'autre reçue (celle des atomes libérant l'énergie à l'état quantique).

$$\eta' = \bar{h} \omega / E_{\text{pompe}} \quad (4.44)$$

La relation (4.43) définit donc le rendement quantique d'un laser, essayons maintenant d'aborder la quantification réelle d'un rendement énergétique, pour ce faire, on tient compte que toute la puissance due au pompage n'est pas nécessairement consommée par les centres actifs. *Alors une partie de cette puissance est dissipée et une autre est épongée par les particules non actives. Pour mieux schématiser la formule de rendement on fait appel à des termes correctifs qui tiennent compte de l'énergie siphonnée par ces centres actifs, soit  $\gamma$ .*

On se trouve ici devant une dialectique concernant le mode de comportement des centres actifs, durant la relaxation l'ensemble des centres actifs ne s'arrêtent pas au niveau 2, mais ils descendent directement du niveau 3 jusqu'au niveau 1 ou au niveau 0.

On fait intervenir un autre paramètre caractérisant la puissance de pompage absorbée par les centres actifs et transformée en énergie nominale pour accomplir la relaxation de ces centres pour faciliter leurs atterrissages au niveau 2 (pour que l'effet laser ait lieu), soit  $\nu$ .

De plus tous les centres actifs arrivant *au niveau 2 ne sont pas générateur de la transition laser*, nombre de ces centres convergent directement du niveau 2 au niveau 0, il intervient là un nouveau rapport dans l'expression du rendement, ce terme est la fraction des centres actifs ayant passée par la transition laser rapportée au nombre global des centres actifs excité au niveau 2, ce rapport est  $f$ . L'expression de rendement d'un laser devient alors :

$$\eta = \gamma \nu f \hbar \omega / \Delta H_{pomp} \quad (4.45)$$

Cette relation exprime le rendement énergétique d'un laser, qui est proportionnel à  $\gamma$  c'est-à-dire avec le rapport de puissance de pompage consommé par les centres actifs. L'importance est portée sur le choix du milieu actif dans lequel les transitions parasite ne peuvent avoir lieu, ces transitions parasites sont par exemple du niveau 3 au niveau 1, du niveau 3 au niveau 0, du niveau 2 au niveau 0 qui constitue le niveau fondamental, par l'élévation des paramètres  $\nu f$ .

De ce fait on énonce une caractéristique inhérente au pompage: c'est la *sélectivité*, qui est une faculté que les centres actifs peuplent uniquement le niveau supérieur 3, qui est un niveau métastable, c'est-à-dire que ces centres actifs ont tendance à tendre vers les niveaux plus bas. D'autre part l'usage d'un pompage moins sélectif sous entend bien sure l'utilisation d'un milieu dans lequel les centres actifs sont réceptif au dépeuplement vers les niveaux inférieurs donc incapable d'instauré la transition laser.

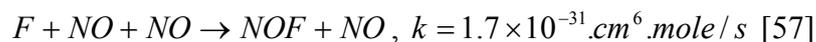
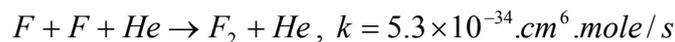
Pour obtenir un fonctionnement continu, il est nécessaire d'assurer un écoulement rapide des gaz, pour ce faire :

a) Les molécules  $HF$  doivent rester dans le milieu amplificateur moins que le temps nécessaire à leurs relaxations (quelque microseconde à 1 torr) [55].

b) Les molécules  $HF$  qui ont perdu leurs énergies à la suite de l'émission stimulée d'un photon doivent être évacuées le plus rapidement possible, sinon elles absorberaient le rayonnement qui se propage dans la cavité.

Le rendement de ce laser est évalué en fonction de la quantité d'énergie générée de la cinétique chimique et transférée en densité de flux radiatif, donc il est (rendement) tributaire par la réserve de l'énergie laser emmagasinée dans les molécules  $CO_2$  chauffé par  $HF/DF$  à la sortie des tuyères. **L'apogée obtenu de la puissance acquis des radiations est proportionnel au flux laser stocké dans les échanges des vibrations asymétrique des molécules de  $CO_2$ .**

La formation des composés à trois corps, donnés par les réactions chimiques suivantes constitue un autre visage de l'écoulement réactif au sein du milieu, ainsi les constantes d'équilibre, définissent un processus hautement rapide : ça constitue les **centres non actifs**, ces derniers agissent directement sur le rendement quantique, par le biais de la contamination des centres actifs se trouvant dans les différents niveaux laser.



Avec bien sure  $M$  une molécule qui neutralise l'énergie cédée par la recombinaison des atomes, la chaîne se propage par additions successives des radicaux aux molécules de fluor et de deutérium. Toute réaction entraînant une recombinaison des radicaux libres, provoque la rupture pure et simple de la chaîne, donc du processus d'approvisionnement en combustible. On dit qu'une telle réaction est à trois corps, très complexe à gérer du point de vue cinétique de la réaction, parmi les composants qui forment  $M = He, Ar$ .

4.12. Les résultats.

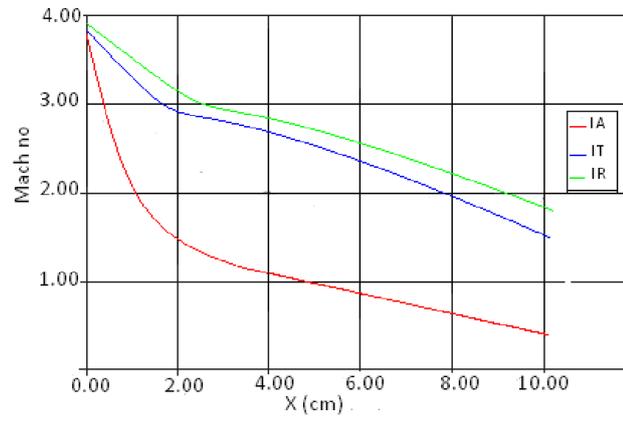


Figure.4.14 Distribution de la vitesse dans la cavité.

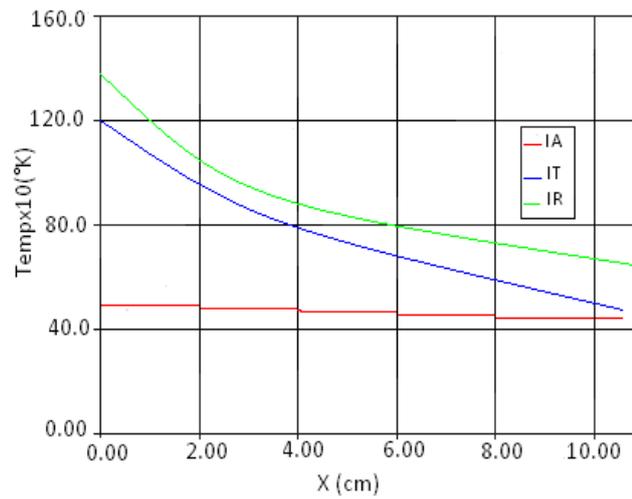
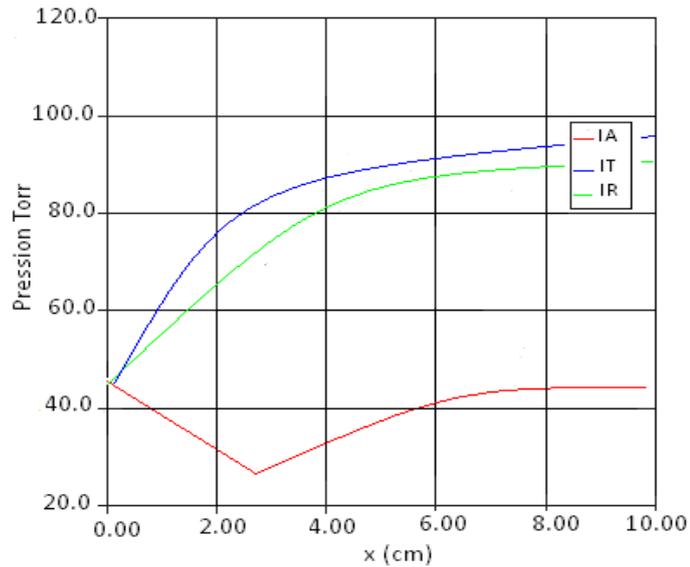
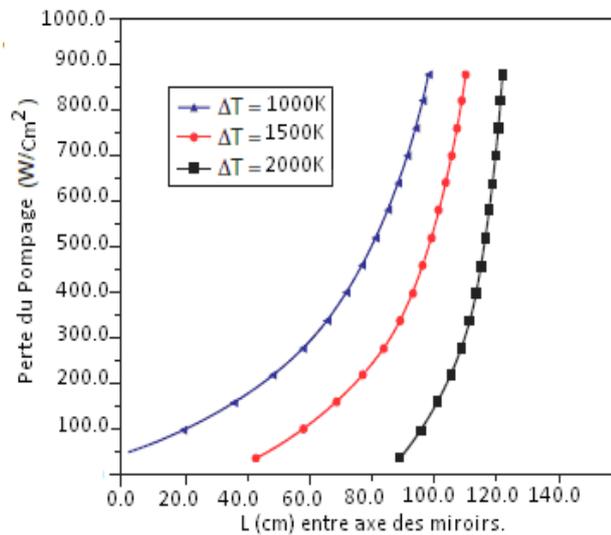


Figure.4.15 Distribution de la température dans la cavité.



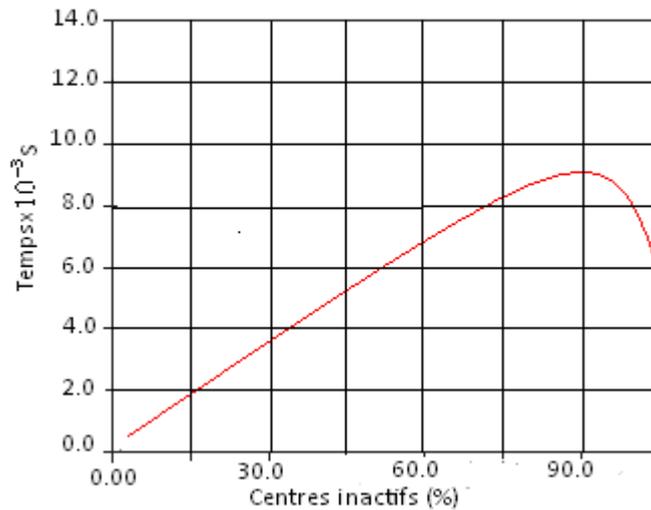
**Figure.4.16 Distribution de la pression dans la cavité.**

Les paramètres thermodynamiques dans les figures.4.14-4.16, issus de la combustion du fluor en voyageant dans les tuyères, on a détente, seule les tuyères à injecteur axial donnent de bons résultats.



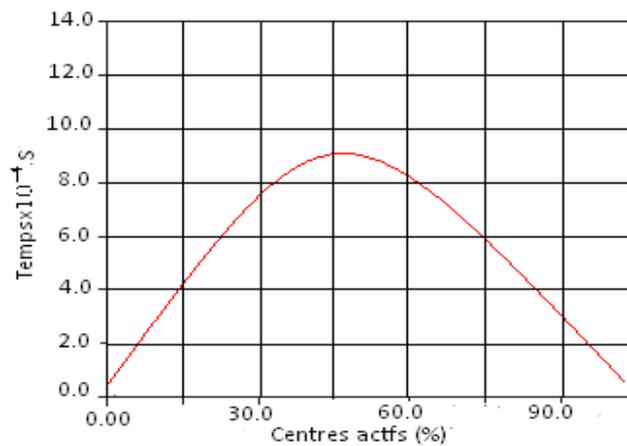
**Figure.4.17 Pertes dans la cavité versus la température.**

Les pertes dans la cavité chimique augmentent avec la température et la distance qui sépare les deux miroirs, mais il est important de faire évacuer les produits de combustions (centres non actifs) pour ne pas altérer les surfaces des miroirs.



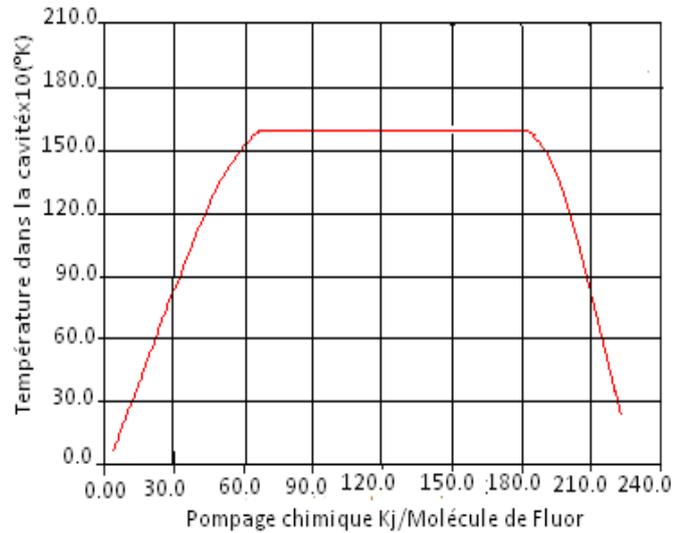
**Figure.4.18** Variation des centres non actifs avec le temps.

La figure.4.18 exprime la variation des centres non actifs avec le temps, ces derniers sont des conséquences directe et inévitable du phénomène de combustion, tout l'intérêt est de les neutralisés par l'addition de molécules tels que l'eau  $H_2O$  ou l'azote  $N_2$ .



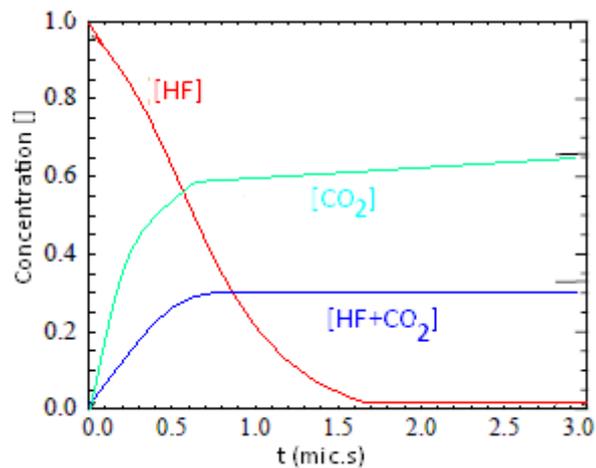
**Figure.4.19** Variation des centres actifs avec le temps.

Les centres actifs donnés par la figure.4.19, sont les seules éléments gouverneurs du phénomène laser, le schéma idéal consiste à avoirs (centres actifs) sans les contaminants, mais cela s'avère impossible, ces centres donnent le maximum de leurs énergies sur un temps relativement long pour permettre la relaxation dans le volume utile.



**Figure.4.20 Température et Pompage dans la chambre.**

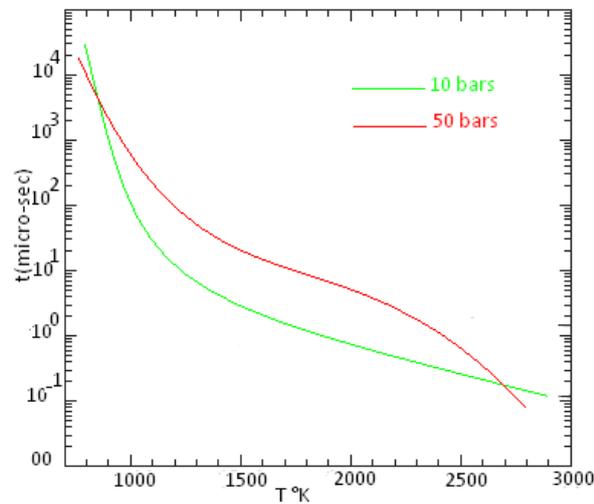
De la figure.4.20 il découle une forte activité due à l'échange d'énergie à l'échelle moléculaire sous l'effet d'élévation de température, cela jusqu'à une valeur de 1500°K puis se stabilisant le temps avant de quitter les tuyères.



**Figure.4.21 Concentration des centres actifs.**

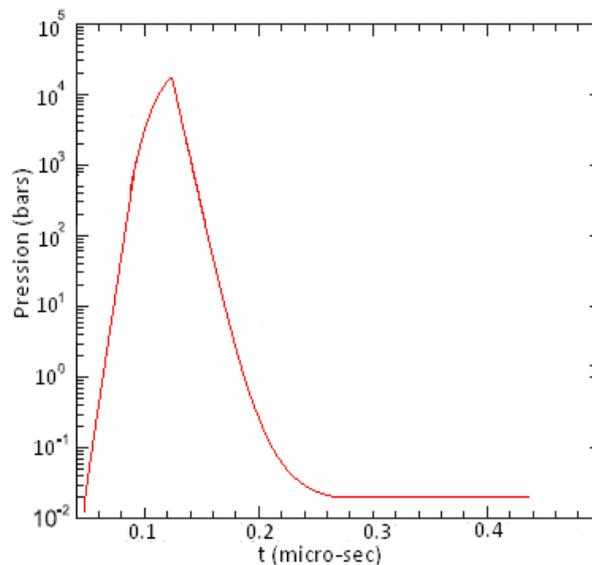
De la figure.4.21 on constate que la réaction en chaîne démarre une fois que la dissociation de la molécule de di-fluor s'opère une fois dans le premier générateur on à contacte avec le mono-oxyde d'azote, cette concentration est en perte de vitesse d'autant qu'on à interaction des centres chimiquement actifs avec le

volume utile de la cavité chimique, une bonne concentration de  $\text{CO}_2$  reste stationnaire en continuant son voyage pour se relaxer dans la cavité.



**Figure.4.22 Temps d'induction HF/DF- $\text{CO}_2$  à différentes pressions.**

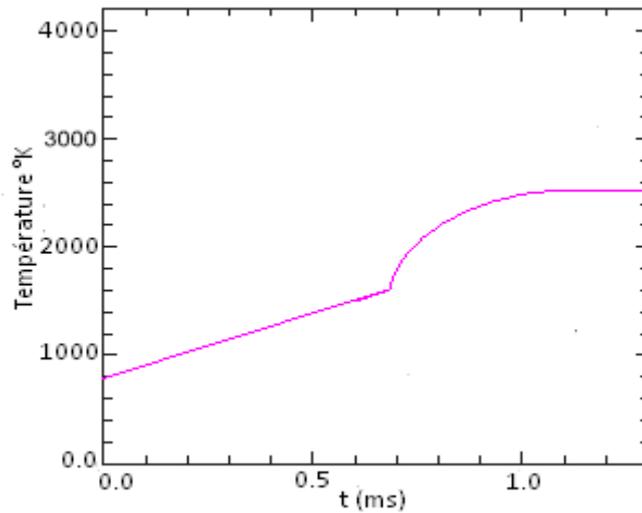
Cette figure.4.22 montre un phénomène inhérent à l'auto allumage résultant de la réaction inconditionnelle du fluor avec l'hydrogène/deutérium, siège d'onde de choc interne et élévation de température, la première valeur de pression est celle qui vient du générateur primaire, par contre la deuxième est celle qui naît du choc.



**Figure.4.23 Pression de la flamme dans le choc avec le temps.**

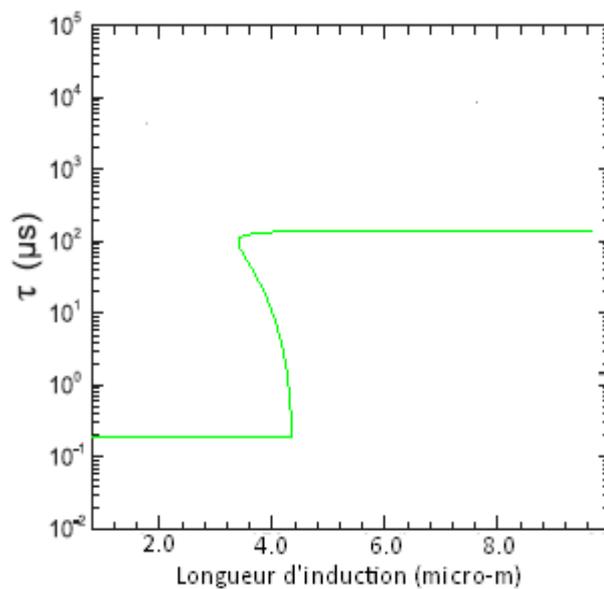
La figure.4.23 illustre les conséquences de l'onde de choc de la flamme laminaire qui se meut à une vitesse de 1200m/s avec une haute température, la

pression dans le générateur atteint alors l'ordre de  $10^4$  bars, ce qui explique pour quoi dans les systèmes laser de puissance le carter est dimensionner avec une épaisseur de 200mm, pour encaissé ces énormes pressions dues à l'auto inflammation.



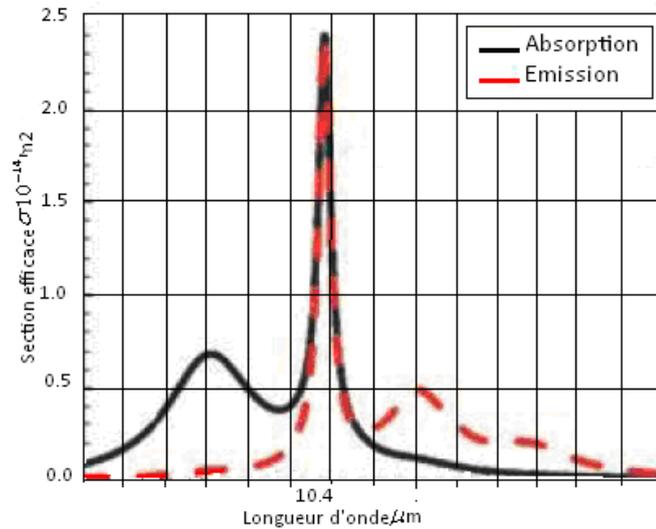
**Figure 4.24 Evolution de la température d'induction dans le choc.**

De cette figure.4.24, montre que les premiers millisecondes la température d'induction augmente proportionnellement, puis sans doute à cause des réactions chimique de production des composés dissociés comme le fluor, on à alimentation de la flamme ce qui explique l'augmentation soudaine le la température d'induction.



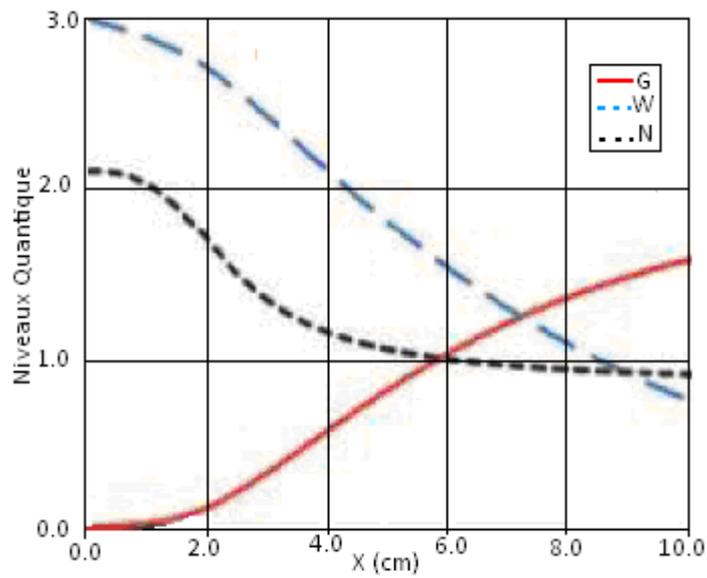
**Figure.4.25 Temps d'induction versus longueur d'induction.**

La figure.4.25 élucide l'esprit de la flamme supersonique laminaire selon le model ZND, ainsi, on à une course entre la propagation la flamme des centres chimiquement actifs et l'onde de choc qui se produit suite à l'auto allumage, en réalité l'onde de choc consomme l'énergie de la combustion de plus l'épaisseur de cette onde de flamme est nettement inférieur au libre parcours moyen des atomes du milieu par rapport à la vitesse de déplacement.



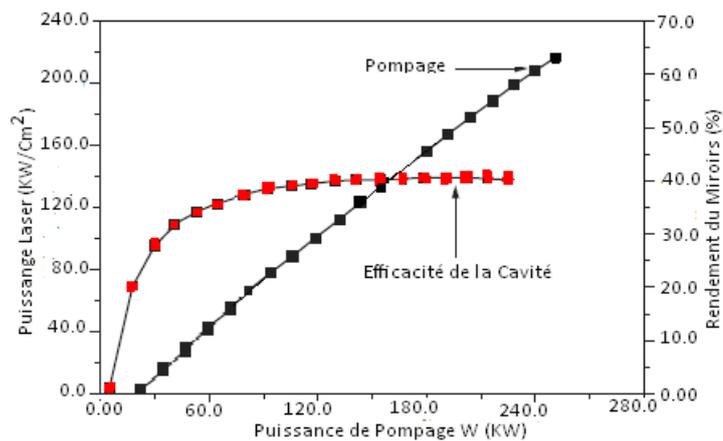
**Figure.4.26 Section efficace d'absorption et émission.**

La figure.4.26 illustre la variation des sections efficaces du milieu actif dans son mouvement vers la cavité chimique, il est clair qu'on remarque qu'il y a compétition entre deux phénomènes constituant l'activité laser, à savoir l'absorption et l'émission stimulée, elle atteint son apogée dans la gamme d'onde de 10.4 micron, ce qui est en accord avec la nature du phénomène.



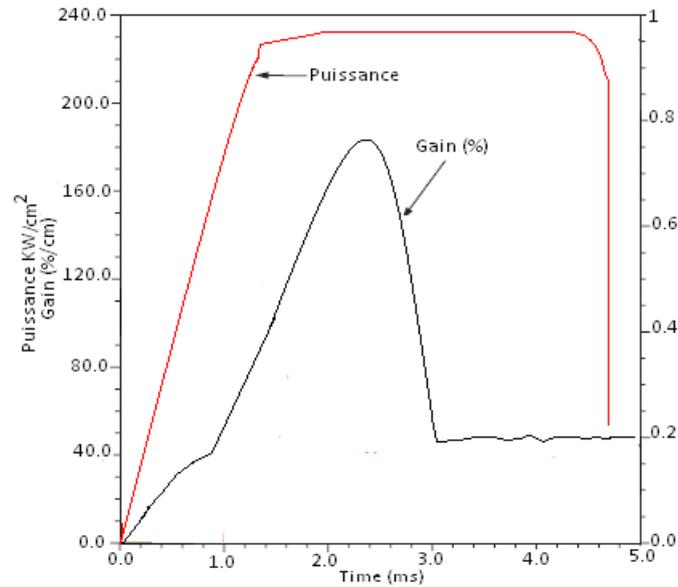
**Figure.4.27 Pompage, Gain, et population versus niveaux.**

La figure.4.27 donne l'évolution des paramètres laser dans le générateur, en direction de la cavité, le pompage  $W$  est en diminution en s'éloignant des tuyères primaires, de plus les populations  $N$  des centres actifs laser demeurent au niveau quantique 1, pour finalement se relaxer dans la cavité augmentation au fur et à mesure qu'on s'approche des miroirs, la paramètre gain  $G$  augmente énormément dans la cavité pour donner l'énergie cohérente.



**Figure.4.28 Puissance de sortie et rendement des miroirs.**

La figure.4.28 explique l'efficacité de la cavité conséquence directe de la manifestation du phénomène électromagnétique qui s'opère dans la cavité chimique, on a une interaction entre le pompage du à la réaction en chaîne et l'émission stimulée qui naît dans la cavité.



**Figure.4.29 Variation de la Puissance et gain avec le temps.**

Enfin et non des moindres, le résultat finale exprime la forte activité des centres chimiquement actifs **HF/DF+CO<sub>2</sub>**, plus **HF/DF**, plus **CO<sub>2</sub>** et **NO**, là on à une réelle compétition qui arrive en premier dans la cavité préalablement en traversant les tuyères pour réalisé les conditions d'équilibre selon l'équation de Boltzmann afin de réalisé l'émission stimulée, de cette courbe on constate que la puissance et le gain varient presque en phase, notre générateur donne alors une puissance de l'ordre de  $240\text{kw/cm}^2$  ce qui important. Cette puissance se stabilise sur un palier de quelques millisecondes, fait concordant avec les lasers en régime continu.

## Conclusion Générale

Cette thèse touchant à des disciplines très variées, de la mécanique quantique, la spectroscopie, la cinétique chimique, la mécanique des fluides, la détonique, et l'interférométrie pour explorer un domaine très jeune, né dans les années soixante: c'est le laser.

Le laser *HF/DF* utilisé à la base pour générée de l'énergie qui sera transférée au gaz dynamique laser  $\text{CO}_2$ , l'utilisation de l'outil informatique particulièrement le code Matlab Simulink, associé à des solveurs ODE 23 et ODE45, permettent de résoudre les équations d'écoulement dans les tuyères et les équations de la dynamique laser avec le système d'équation de Stanz et Mars, constitue (Matlab) un bon moyen pour la compréhension de la phénoménologie.

On a constaté que le milieu réactif constitué fluor, hélium, mono oxyde d'azote, gaz carbonique, sont de parfaits composés énergétiques qui permettent l'amorçage et le fonctionnement du système laser, le potentiel emmagasiné dans ces composés, simple par leurs industries et aussi pour leurs utilisations.

Le choix de tuyères à écoulement, axiale, tangentielle et radiale, constitue la clé de voûte du laser, principalement la préparation du milieu réactif à la détente et l'amplification des photons dans la cavité chimique pour donner le laser, c'est bien cette partie qui est déterminante pour le bon déroulement du processus, mais dans un tel milieu il y a confluence d'une multitude de réactions chimiques, les unes sont autonomes, tel que l'allumage la réaction en chaîne (*FetNO*), et d'autres composés ( $\text{CO}_2$ ) qui récupèrent l'énergie de la combustion pour engagé le transfert vibrationnel dans le milieu actif, vu que le composé principal est le fluor, dans les propriétés chimiques sont capitale pour la mise en place de la combustion en régime largement supersonique.

On a remarqué que les composés issue des réactions chimiques peuvent se reformés pour donné lieu à des corps sous forme de radicaux stable, comme le *NO* et cela après avoir relaxé dans la cavité chimique, toute l'idée est de pensé comment réutilisé ces composés pour alimenté le générateur afin d'obtenir le fluor atomique, pour continué le processus d'auto allumage.

L'idée est de mettre en place un système de récupération des gaz de combustion, une fois refroidis et filtrés pour les réinjectés une fois encore dans le circuit du générateur primaire, donc notre laser est devenu de la sorte comme une machine frigorifique, qui fonctionne à circuit fermé.

Dans cette exploration des écoulements à grande vitesse et à haute température qui font intervenir des phénomènes de relaxation, comme dans notre générateur *CO<sub>2</sub>-HF/DF* qui utilisent la relaxation de vibration afin de récupérer l'énergie résultant des "inversions de population" pour obtenir un laser de puissance en mode infrarouge.

La recherche de l'équilibre thermodynamique pour les particules formant le milieu actif, afin de respecté la loi de Boltzmann, nous à conduit à exploré le système formant les blocs de tuyères, lieu dans lequel se réalise la détente des gaz issu du générateur, on fait intervenir trois familles de tuyères à savoir :

- Les tuyères à injecteurs axial,
- Les tuyères à injecteurs tangentiel,
- Les tuyères à injecteurs radial.

La résolution numérique des équations de la dynamique des fluides régissant un tel phénomène, couplées aux équations de la dynamique des populations pour un laser à quatre niveaux, nous dirigent à établir que la famille des tuyères axial est la mieux placée pour donner un laser de haute puissance, et cela à partir des paramètres fluide, tel que la variation de température, pression, et vitesse.

Les ondes de chocs droites ont une contribution capitale pour la réalisation de l'équilibre pour assuré la relaxation et l'inversion de population dans le milieu actif, par leurs natures de décélérateur de mouvement, les centres chimiquement actifs freinent inexorablement dans le volume utile, pour permettre l'amplification des ondes électromagnétique afin d'oscillées pour donne le laser.

Ainsi le pompage entretenue par la réaction en chaine, pour assuré la production des centres chimiquement actifs nécessaire à l'excitation de la molécule de  $\text{CO}_2$ , qui on migrant du générateur primaire en se mélangeant aux autres molécules, le fluor par sa nature hautement réactif donne un pompage presque énergique et permanent, mais on a aussi la production de centre chimiquement inactifs, quant à eux ils constituent de véritables absorbeurs d'énergie issue du pompage, il faut mettre dans l'esprit qu'une véritable compétition ait lieu dans le générateur :

D'une part une course entre les centres actifs et inactifs, d'autre part la course dans le processus laser, qui ne peut se manifesté que si l'effet de l'émission stimulée l'emporte sur l'absorption, l'accent est mis quant à l'entre axe entre les miroirs de cavité, nos calculs préconisent pour ce type de laser de puissance une distance optimale, au-delà de laquelle les pertes augmentent drastiquement avec la haute température, encore une fois le refroidissement les gaz réactifs au moyen des tuyères à injection axiale constitue une solution de choix pour le bon fonctionnement du système.

La cavité proprement dite est tapissée d'une couche réfléchissante, qui ne peut supportée les hautes températures durant des moments infini, faute de quoi leurs parois (miroirs) se désagrègent, c'est grâce à la vitesse d'évacuation des gaz brulé issu de l'auto allumage et l'onde de choc de combustion supersonique, que le temps de séjours des produits de combustion est extrêmement réduit de l'ordre de milli seconde, que les fenêtres aérodynamique constituant la cavité de sortie laser sont refroidies.

## Perspectives

Ce type de laser de puissance ne peut consommer toute l'énergie issue des réactions chimiques de dissociation, une bonne partie des atomes se recombinent pour donner des molécules à savoir le di fluor et le mono oxyde d'azote, l'idée est pourquoi ne pas réutiliser ces composants de nouveau pour réapprovisionner le générateur de gaz.

A la sortie des tuyères les gaz se retrouvent portés à une température suffisamment élevée, en outre le courant gazeux sortant de la cavité emporte une certaine quantité de molécules de  $HF/DF$  excitées qui n'ont pas eu le temps de transférer l'énergie d'excitation aux molécules de  $CO_2$ , ainsi qu'une certaine quantité de ces molécules qui n'ont pas arrivées à se désexciter, faute de temps qui est très court.

La manière avec laquelle il est préconisé de réutiliser ces molécules est comment les séparées entre elles, et l'une des idées est la création de filtres à l'instar de ceux utilisés dans la séparation des isotopes, et principalement la diffusion gazeuse, dans ce cas on se ramène à la compression des molécules et leurs séparation dans une paroi solide perméable qui ne laisse passer que les molécules actrice de la combustion dans le générateur.

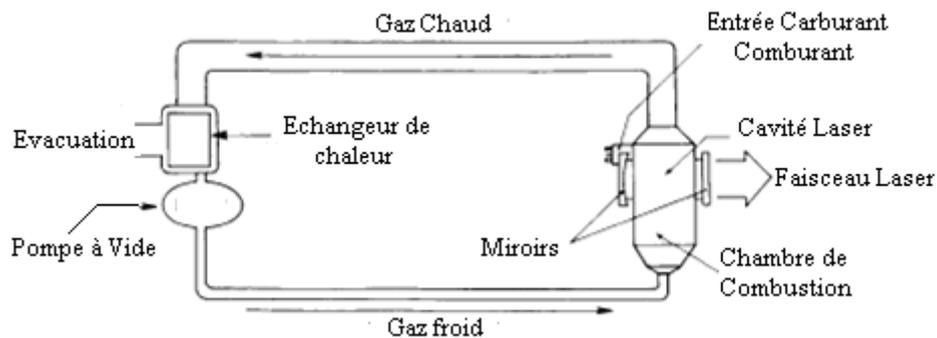


Figure du système laser en boucle semi fermée.

Donc, c'est la création d'un système de circulation à circuit semi fermée, qui comporte des accessoires à savoir : un compresseur, un diffuseur, et un échangeur de chaleur. Qui sont destinés à donner au fluide une température et une pression nécessaire à sa mobilité, ainsi l'énergie du mouvement de translation du courant gazeux peut être utilisée pour faire revenir le gaz à son état initial.

Dans ce cas, le système laser s'assimile à une machine thermique régie par le cycle de Carnot, comme montré dans la figure ci-dessus.

## Références

- [1] **Polanyi, J.C.**, Proposal for an Infrared Maser Dependent on Vibrational Excitation, *J.Chem. Phys.*, **34**, 347, 1961.
- [2] **Kasper, j.v.v and Pimentel, G.C.**, *phys.rev.lett.* 14 (1965)352.
- [3] **Kompa, k. I.**, (chemical laser (springer-verlag) 1973.)
- [4] **Emanuel, G., Cohen, N., and Jacobs, T.A.**, *j.Quant.Spectrosc.Radiat.Transfert.* 13 (1973)1365.
- [5] **Gagné, J.M., MAH, S.Q. and Conturie, Y.**, *Appl.Opt.* 13 (1974) 2835.
- [6] **Gagné, J. M., Bertrand, L., Conturie, Y., MAH, S. Q. and Monchalín, J.P.**, *J. opt.soc.am.* 65(1975) 876.
- [7] **Gross, R.W.F. and Bott, J.F.** (edit), *Hand book of Chemical Lasers.* New York, NY: John Wiley and Sons 1976.
- [8] **Deskevich, M.P., Hayes, M.Y., Takahashi,K., Skodje, R.T., and Nesbitt, D.J.**, *J.Chem. Phys.* **124**, 224303 (2006).
- [9] **Anderson, J.b.**, *Adv. Chem.Phys.*, **41**, 229, 1980.
- [10] **Kasper, J.V. and Pimentel, G.C.**, *HCL Chemical Laser, Phys. Rev. Lett.*, **14**; 352, 1965.
- [11] **Aviation Week and space Technology**, 113-5(1985), 55.
- [12] **Boran, kraut.** *Manuel Universel"Strojarski prirucnil"* de, edition Tehnicka Knjiga, Zagreb 1982.
- [13] **Tarassov, L.**, Edition Mir.Moscow.60-64.1981.
- [14] **Grass,R.W.F, Bott, J.F.** *Hand Book of Chemical Laser*, Wiley and Sons, New York, (1976)
- [15] **Kompa, K.L. and Pimentel, G.C.**, *J.Chem. Phy.*, 47(1976).857.
- [16] **Gross et al, Gross, R.W.F., Cohen, N., and Jacobs, T.A.**, *Journal of Chemical Physics*, 48, 3821, 16)
- [17] **Spencer, D.J. et al.**, *Inter. Journal. Of Chemi.Phy.* 1. 493, 1969.
- [18] **Cool** (Industrial Research, L2, April 1970.)
- [19] **Basisio, R.G., Weissfloch, C.F.and Wertheimer, M.R.**, *J.Microwave Power* 7(1972)325.
- [20] **Gregg, D.W., et al.**, "Electron Beam Initiation of pulsed Chemical Laser," Report UCRL-72434, April 23, 1970.

- [21] **Basov, N.G. and Oraevskii, A.N.** i, Zh. Eksp. Teor. Fiz., 1742, 1963.), Hurle et Herzberg.
- [22] **Hurle, I.R. and Hertzberg, A.**, Bull. Am. Phys. Soc., 9, 852, 1964.), Wells [31] (W.H. Wells, J. Appl. Phys. 36, 2838, 1965.).
- [23] **Shimoda, K.**, Inst. Of. Phys. And Chem. Res., 59, 53, 1965.)
- [24] **Garry, E.T.**, APS Meeting, Washington, D.C., April, 29, 1970.)
- [25] **Symposium** on Gas Flow and Chemical Laser, Madrid, 10-14 September 1990, Orza J.M. and Domingo C. (SPIE vol. 1397))pp.273-276.
- [26] **Homann, K., Solomon, W.C, Warnatz, J, Wagner. HGg C(1970)** Eine Methode zur Erzeugung von Fluoratomen in inerter Atmosphäre. Ber Bunsenges Phys Chem 74:585.
- [27] **Baldwin, G.D.** Out Power Calculations For Continuously Pumped Q-Switched YAG: Nd<sup>3+</sup> laser.-IEEE J., 1971, QE-7, No 6.)
- [28] **Vasil'yev, G.K., and Batovskiy, O.M.**, Chemical lasers based on Chain and Branched chain Reactions- Kinetika i Kataliz, v.ii, n<sup>o</sup>.2, 1970, pp. 277-289
- [29] **Batovskiy, O.M., Vasil'yev, G.K., Makarov, Ye.F., and Tal'roze, V.L.** Chemical Laser Based on a Branched Chain Reaction of Fluorine with Hydrogen. Zhurnal eksperimental'noy i teoreticheskoy fiziks. Pis'ma v redaktsiyu, v. 9, n<sup>o</sup> 6, 1969, pp.341-343(Russian)
- [30] **Batovskiy, O.M., Vasil'yev, G.K. and Tal'roze, V.L.** Proceedings of International Symposium on Chemical Lasers, Moscow, 2-4 Sept.1969.
- [31] **Chase, M.W., Syverud, C. A.**, J. Phys. Chem. Ref. Data **14**, 1 (1985).
- [32] **Homann, K., Solomon, W.C., Warnatz, J**, Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie. Volume81, Issue8, Auguste1977, page: 724-728.
- [33] **Bott, J.F.**, Vibrational relaxation of HF (v=1, 2, and3) in H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, and CO<sub>2</sub>. J.Chem.Phy. 65, 4239(1976).
- [34] **Bott &Cohen, Bott ,J.F., and Cohen, N.**, J.Chem.Phy.58, 4539(1973)
- [35] **Poole, P.R., and Smith, I.W.**, J.Chem.Soc.Faraday Trans.273, 1447(1977).

- [36] **Cottrim, H.E., and Marcus. R.A.,** J.Chem.Phy.73, 4390(1980), (b) 76, 2379(1982).
- [37] **Herzog,G.,** Molecular Spectra and Molecular Structure,I. Spectra of diatomic molecules(D.Van Nostrand Company, Inc., New York, 1961), pp. 124-125.)
- [38] **Lee,G.,** Phys.Fluids 17, 644 (1974).
- [39] **Journal de physique,** Colloque C2, supplément au n° 11-12, Tome34, Novembre-Décembre1973, page C2-81).
- [40] **Brun, Raymond.,** Introduction à la dynamique des gaz réactifs, Edition 2011, p : 36-37).
- [41] **KLING, R.,** Thermodynamique Générale et applications, Edition Technip 1980, page 48-49)
- [42] **Physique générale.,** Alonso-Finn tome I mécanique, Inter Edition 1970, p 399-400.
- [43] **Hagop, Injeyan., Goodno, Gregory. D.,** High-Power Laser Hand Book, Mc Graw Hill, p: 49-51. 2011.
- [44] **Chase, M.W., Syverud, C. A.,** J. Phys. Chem. Ref. Data **14**, 1 (1985).
- [45] **Forman, L., et al.,** Advanced Fuels for Chemical Lasers, AFRPL-TR-75-3, Rockwell International, May 1975.
- [46] **Cool,T.A., Falk, T.J., and Stephens, R.R.,** App.Phys. Lett. 15, 318 (1969).
- [47] **Soloukhine, R.I., and Fomin, N.A.,** Zh. Prikl. Mekh. Fiz. **1**, 42 (1977).
- [48] **Gross, R.W.F., and Bott, J.F.,** Handbook of Chemical lasers, p. 300, Wiley-Interscience, 1976.
- [49] **Bott, J.F.,** Empirical Correlation and Comparison of Vibrationnel-Translation Involving the Hydrogen Halides, TR-0074(5530)-3, the Aerospace Corporation, January 1975.
- [50] **Mass,U., Warmatz,J.,** "Ignition process in hydrogen-oxygen mixtures". Comb Flame74:53, (1988).
- [51] **Warnatz,J.,** (1981c) Chemistry of stationary and instationary combustion processes. In: Ebert KH, Deuflhard P, Jager W (Eds) Modeling of chemical reaction systems, p 162. Springers, Heidelberg.
- [52] **Mechanics and thermodynamics of propulsion.,** page 519-520. Hill Peterson 1992.

- [53] **Endo, Masamori., Walter. Robert F.,** Gas lasers, p: 69-72, CRC Press Taylor and Francis Group 2006.
- [54] **Madden, M.T., Anderson, J.D., Jr., and Piper, C.H.,** "Equilibrium Normal Shock Properties for Vibrationally Excited CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-He Gas Mixture," NOLTR 70-103, May 1970.
- [55] **Chester, A. N., and Hess, L.D.,** *IEEE J, Quantum electron.* QE **8**(1972) 1.
- [56] **Ouahes, R., Devallez, B.,** (Chimie Générale, R. Ouahes, B.Devallez. O.P.U. p.44-45, 7<sup>ème</sup> Edition 2013).
- [57] **Lixiong, L.,** Singlet Oxygen Generator for Chemical Oxygen-Iodine Laser-A Literature Review, AFRL Technical report, AFRL-ML-TR-2004-4541.

## **Terminologie et lexique laser.**

Les grandeurs énergétiques couramment utilisés dans le domaine des lasers, avec les unités dans le système international (SI) ainsi que leurs translations en anglais :

-**Energie** "Energy",  $E$  [J, joule], par exemple: énergie entre deux niveaux laser.

-**Densité d'énergie surfacique** dite aussi **fluence**, "fluence",  $F=dE/dS$  [ $\text{j.m}^{-2}$ ] énergie projetée par unité de section droite du faisceau (cas de fluence d'une impulsion laser, nommée communément exposition énergétique).

-**Puissance** "power",  $P=dE/dt$  [W, watt] : énergie par unité de temps d'une onde électromagnétique progressive traversant sa section droite (cas d'un faisceau laser en mode continu).

-**Intensité** "intensity",  $I=dP/dS$  [ $\text{W.m}^{-2}$ ] : densité surfacique de puissance, puissance par unité de section droite du faisceau.

-**Flux de photons**, "photon flux",  $\phi = \frac{I}{h\nu}$  [ $\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ] nombre de photon de fréquence  $\nu$  traversant l'unité de section droite par unité de temps (flux de photon d'une lumière polarisée).

-**Intensité spectrale**, "spectral intensity",  $I(\nu)$  [ $\text{W.m}^{-2}.\text{Hz}^{-1}$ ] : intensité par unité de fréquence établi dans l'intervalle spectral  $[\nu, \nu+d\nu]$  par la relation  $dI = I(\nu)d\nu$ . A ne pas confondre avec l'intensité spectrale par unité de longueur d'onde, définie par:  $I(\lambda)$  [ $\text{W.m}^{-3}$ ], intensité par longueur d'onde définie dans l'intervalle spectral  $[\lambda, \lambda + d\lambda]$  par l'équation  $dI = I(\lambda)d\lambda$ .

-**Densité d'énergie**, "energy density",  $u = dE/dV$  [ $\text{j.m}^{-3}$ ]: énergie de l'onde électromagnétique par unité de volume (cas de densité d'énergie électrique d'une onde stationnaire dans une cavité).

**-Densité spectrale d'énergie**, "spectral energy density",  $\rho(\nu) [j.m^{-3}.Hz^{-1}]$  : densité d'énergie par unité de fréquence définie dans l'intervalle spectral  $[\nu, \nu + d\nu]$  par la relation  $du = \rho(\nu)d\nu$ . De même on établit la densité spectrale d'énergie par unité de longueur d'onde, ayant pour dimension  $\rho(\lambda)[j.m^{-4}]$ , densité d'énergie par unité de longueur d'onde définie sur l'intervalle  $[\lambda, \lambda + d\lambda]$  par la relation  $du = \rho(\lambda)d\lambda$ .

**-Luminance spectrale**, "spectral radiance ou 'Brightness'",  $L(\nu)[W.m^{-2}.Hz^{-1}.sr^{-1}]$  puissance transférée par unité de surface de la source, par unité de fréquence et par unité d'angle solide (stéradian). C'est une grandeur utile pour caractériser un faisceau lumineux issu d'une source conventionnelle ou d'une source laser de surface  $S$ , de puissance  $P$ , d'angle solide  $\Delta\Omega$  et de largeur spectrale  $\Delta\nu$  :  $L(\nu) = P / S\Delta\Omega\Delta\nu$ .

Cette luminance spectrale est faible pour les sources classiques et importantes pour les sources lasers.

## Conversion des unités en système international

<u>Unités de base</u>	<u>Quelque unités usuelles</u>	<u>Quelques Préfixes</u>
Mètre (m)	énergie (J)	terra (T) $10^{12}$
Kilograms (kg)	force (N)	giga (G) $10^9$
Seconds (s)	fréquence hertz (Hz)	méga (M) $10^6$
Kelvin (k)	Puissance (w)	kilo (k) $10^3$
Mole (mole)	Pression (Pa)	
<u>Convertir de</u>	<u>A</u>	<u>Multiplier par</u>
Atmosphère	pascal	$1.013250 \times 10^5$
Calorie	joule	4.18
Celsius	Kelvin	+273.15
Electron volt	joule	$1.60219 \times 10^{-19}$
Erg	joule	$1.00 \times 10^{-7}$
Fahrenheit	Kelvin	$(t_f + 459.67) / 1.8$
Foot	mètre	0.3048
Foot <sup>3</sup>	m <sup>3</sup>	$2.831685 \times 10^{-2}$
Gallon (liquide U.S.)	m <sup>3</sup>	$3.785412 \times 10^{-2}$
Pouce	m	$2.54 \times 10^{-2}$
Kilowatt-hour	joule	$3.60 \times 10^6$
Mile (U.S.)	mètre	$1.609344 \times 10^3$
Torr (mmHg, 0°C)	pascal	$1.333224 \times 10^2$

## Abstract

The purpose of this thesis is to use the chemical pumping of the di fluoride molecule with *NO* in a cavity, and to be dissociated to the fluoride atoms, then this component is mixed with Hydrogen or Deuterium (*H* or *D*), unconditionally this reaction product an important ratio of energy in form of enthalpy, and vehiculed by stream created by vacuum pump, in some places of the generator we mount the caliper holes by theme we diffuse *CO<sub>2</sub>* and *He*, helium is use to prevent explosion, *CO<sub>2</sub>* is chosen for his high radiative life time, all chemical component pass through the holes of the nozzles, this action is to diminishing the value of the temperature and pressure and to prepared the medium to be able to the equilibrium condition for realize the laser phenomena.

We explored then the medium with three models of the nozzles, the first one is the axial jet, the second one is the tangential jet and the last one is the radial jet. The study shows that only the axial variant is able to give the optimum of the relaxation of the atoms forming the medium by the proof of the physical parameters (P, T), here the molecules of *CO<sub>2</sub>* is excited to upper level by the enthalpy of *HF/DF* and the stored energy in degrees of freedom of *CO<sub>2</sub>* in vibration asymmetric regime is transformed to laser energy in infrared and continuous wave.

We can note explain the phenomena of laser without talking about an important part of chemical reaction in the medium, here there is a real competition with actives centers and inactive one, the first one for generate the medium for giving the laser, and the others to consume a large part of chemical energy.

The equations governing density of populations in four levels laser constituting the medium are formula by the system of Statz and Mars, using the Simulink of Matlab with the solvers *ODE 23* and *ODE 45* we can explorer the deep of actors in different levels.