



**HAL**  
open science

# Spectroscopie 5C-2D de plasma induit par laser pour la détermination de concentrations locales

Axel Ivaldi, Laurent Zimmer

► **To cite this version:**

Axel Ivaldi, Laurent Zimmer. Spectroscopie 5C-2D de plasma induit par laser pour la détermination de concentrations locales. 17<sup>ème</sup> Congrès Francophone de Techniques Laser (CFTL 2022), Sep 2022, Louvain, Belgique. hal-03866898

**HAL Id: hal-03866898**

**<https://hal.science/hal-03866898v1>**

Submitted on 23 Nov 2022

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## SPECTROSCOPIE 5C-2D DE PLASMA INDUIT PAR LASER POUR LA DETERMINATION DE CONCENTRATIONS LOCALES

Axel Ivaldi<sup>1\*</sup>, Laurent Zimmer<sup>1</sup>

(1) Laboratoire EM2C, Université Paris-Saclay, CNRS, CentraleSupélec, 91190, Gif-sur-Yvette, France

\*Correspondant: [axel.ivaldi@centralesupelec.fr](mailto:axel.ivaldi@centralesupelec.fr)

**Résumé :** Cet article se concentre sur la spectroscopie par claquage induit par laser (LIBS) à coup unique pour l'analyse d'événements non répétables. Cette étude vise à présenter une nouvelle approche de la LIBS pour déterminer des mesures de rapports de concentration bidimensionnels résolus dans l'espace. Pour obtenir de tels résultats, une caméra ICCD est focalisée sur la rupture induite par le laser. Ensuite, des miroirs sont placés pour réfléchir le signal de claquage vers la caméra. Des filtres passe-bande sont placés sur le trajet du signal des miroirs pour cibler l'émission atomique attendue. Les signaux sont ensuite remodelés numériquement pour s'adapter à la configuration physique actuelle du plasma. Une comparaison entre chaque signal est effectuée pour accéder au rapport de concentration local. Ce diagnostic est validé en l'appliquant à un co-flux air/azote connu. La variation de la composition locale dans la décomposition est mesurée.

### 1 Introduction

La mesure de l'information sur la fraction du mélange est une question importante dans de nombreuses situations pratiques. Pour les écoulements purement gazeux, des techniques telles que la diffusion Raman sont très puissantes [1], car elles fournissent la concentration détaillée des molécules dans le volume de la sonde. L'extension au profil 1D a été démontrée avec succès [2] pour obtenir simultanément jusqu'à 11 points de mesure (chacun avec une résolution spatiale de 300 micromètres) pour un seul tir. Cela nécessite un laser pulsé à haute énergie pour obtenir un rapport signal/bruit élevé. L'impulsion est généralement étirée dans le temps pour éviter un claquage local. Dans le cas du combustible liquide, l'impulsion à haute énergie créera un plasma local, et la diffusion Raman ne peut donc pas être utilisée. Plusieurs solutions alternatives existent pour obtenir la fraction de mélange avec le combustible liquide. Entre autres, l'imagerie quantitative par fluorescence induite par laser planaire s'est avérée faisable en phase vapeur, en utilisant des traceurs organiques [3]. Lorsque la phase liquide est prédominante, des techniques d'imagerie de particules interférométriques [4] peuvent être appliquées pour connaître la taille des gouttelettes dans le volume de la sonde. Néanmoins, on s'attend à ce que la densité des gouttelettes empêche des mesures précises en raison de la superposition des signaux.

Une solution possible est de bénéficier d'un seuil de rupture plus bas pour mesurer avec précision la concentration de combustible liquide. La spectroscopie à plasma induit par laser a déjà été présentée comme une technique permettant d'obtenir des fractions de mélange dans plusieurs cas avec du combustible gazeux (du cas laminaire [5] au cas turbulent avec différentes températures d'entrée [6]) ainsi qu'avec des combustibles liquides [7]. Il est

également possible de résoudre spatialement les gradients d'espèce à l'intérieur du plasma.

Une différence notable entre la spectroscopie à plasma induit par laser en milieu gazeux et milieu diphasique est lorsqu'il y a interaction entre le spray et le plasma. La forme du plasma peut alors être modifiée [8]. Ceci rend l'utilisation de moyenne impossible. Il est alors nécessaire d'obtenir ces informations en coup unique. Ce papier propose une méthode de spectroscopie qui remplit ces critères.

### 2 Dispositif Expérimentale

Le dispositif expérimental est présenté dans la figure 8 en fin d'article.

#### 2.1 Plasma induit par laser et mesure de l'énergie

La source de plasma est induite par un laser Continuum Nd:YAG 532 nm à Q-switch. Le délai entre la lampe et le Q-switch est fixé à 170  $\mu$ s pour atteindre l'énergie maximale du laser de 100 mJ. Cela garantit le claquage du plasma pour chaque impulsion et une intensité maximale du signal plasma. Le laser est ensuite réfléchi par un miroir 532 nm ThorLabs NB1-K13 vers un diviseur de faisceau (réflexion 12,9 %, transmission 87,1 %). Un capteur d'énergie pyroélectrique (ES145C, ThorLabs) est placé le long du chemin de réflexion pour mesurer l'énergie avant claquage. Une lentille convexe de 200 mm est placée sur le trajet de transmission pour focaliser le faisceau laser et concentrer localement l'énergie laser pour la rupture du plasma. Ensuite, un deuxième diviseur de faisceau est placé (62,1 % de réflexion, 37,9 % de transmission). Un deuxième capteur d'énergie (ES145C) est placé le long du chemin de réflexion pour mesurer l'énergie laser restante après le claquage. La transmission conduit à un arrêt de faisceau.

## 2.2 Spectroscopie du plasma

L'imagerie du plasma est obtenue avec une caméra PI-MAX 4 ICCD montée avec un objectif AF MICRO NIKKOR de 60 mm avec une ouverture de 2,8. 4 miroirs à large bande (BBSQ2-EO2, Thorlabs) avec une réflectance de 400-900 nm 99 % sont placés de façon que la rupture du plasma se produise entre la caméra et le miroir. Les réflexions des miroirs sont alignées pour refléter les signaux du plasma sur le capteur ICCD. Sur les 5 chemins optiques (plasma focalisé + 4 signaux plasma défocalisé réfléchi par les miroirs), des filtres interférentiels sont placés (FB660-10, FB750-10, FB760-10, 2 FL780-10 de ThorLabs). Les images sont acquises avec un délai de 1500~ns après la création du plasma et un temps d'intégration de 1000~ns.

## 3 Méthode expérimentale

Pour valider ce dispositif de mesure, il est installé sur un injecteur coaxial. Cet injecteur est présenté figure 1.

De l'air est injecté par le centre et de l'azote est injecté de manière à former une gaine autour de l'injection d'air centrale. Un diagnostic de type vélocimétrie par imagerie de particules (PIV) a été effectué pour s'assurer que les vitesses débitantes de l'air et de l'azote sont égales, ainsi que pour identifier les 3 zones : une zone avec 100 % d'azote (en rouge) une zone avec de l'air (en bleue), et une zone de mélange entre les deux.

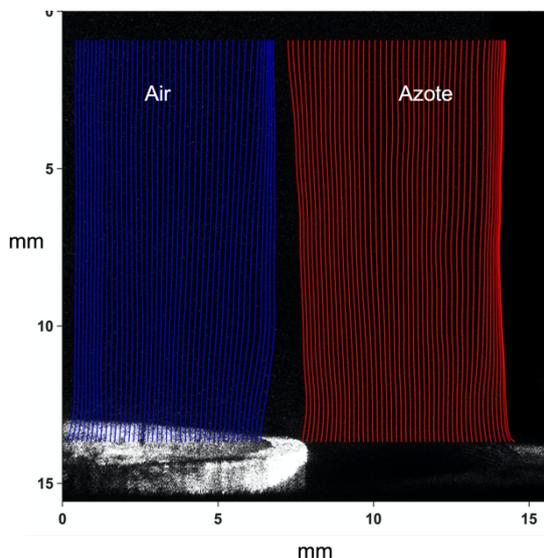


Figure 1 : Image en sortie de l'injecteur coaxial avec les lignes de courant dans l'air (bleu) et dans l'azote (rouge).

Ainsi, en déplaçant la localisation du claquage plasma de l'air vers l'azote, on s'attend à ce que le signal d'oxygène diminue progressivement jusqu'à être nul dans la zone 100 % azote.

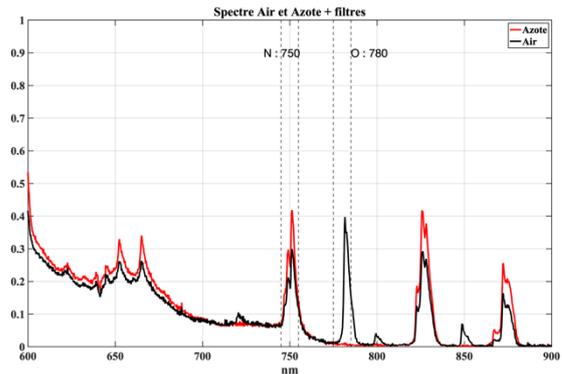


Figure 2 : Comparaison entre les spectres dans l'air et dans l'azote

L'utilisation d'un spectromètre à fibre optique a permis de vérifier que la zone 100 % azote ne contient bien que de l'azote. La figure 2 montre la superposition des spectres d'émission du plasma dans l'air et dans l'azote. On voit notamment pour une longueur d'onde de 780 nm, la présence d'un pic d'émission de l'oxygène présent dans l'air qui n'est plus présent sur le spectre d'émission de l'azote. En revanche, pour 750 nm, on observe un pic d'émission lié à l'azote, présent également dans l'air. Ce sont ces deux longueurs d'onde qui sont choisies dans la suite de l'étude pour l'analyse du rapport O/N lors de la transition de la localisation du claquage du plasma de l'air vers l'azote. En pointsillés, on voit également la largeur des filtres utilisés. Cette largeur est de  $\pm 5$  nm par rapport à la longueur d'onde ciblée.

## 4 Traitement d'image

La figure 3 montre une image brute typique obtenue. Pour une meilleure compréhension, les zones d'intérêt de cette image sont schématisées sur la figure 4. Le cercle montre les régions d'intérêt correspondant aux quatre signaux réfléchis par les miroirs. La forme de disque de la réflexion est due à la dé-focalisation de sorte que l'ouverture de la caméra façonne le signal. Le plasma focalisé est mis en évidence par une ovale montrant la longueur du plasma. Le reste étant du bruit ou des réflexions. L'emplacement du plasma focalisé s'avère être le point le plus intense de l'image. Le rapport entre la hauteur et la longueur du plasma en fonction de l'énergie du plasma mesurée a été étudié et est constant.

Un algorithme d'analyse d'image maison a été développé à l'aide de Matlab et de bibliothèques Matlab pour analyser cette image.

La première étape de ce processus consiste à extraire le signal des quatre réflexions. L'image est binarisée avec un seuil donné de sorte que seuls les disques issus des réflexions restent. Comme une zone de bruit peut également subsister, et sachant où la réflexion est supposée se trouver sur l'image, toutes les zones

détectées sont filtrées par la position centrale afin de ne conserver que les quatre régions d'intérêt.

On s'attend à ce qu'aucun signal ne soit mesuré lorsque le signal de réflexion est filtré avec un filtre passe-bande à oxygène dans la zone 100 % d'azote. Dans ce cas, la région d'intérêt est extraite en utilisant la position attendue du centre et le rayon moyen mesurés sur les images précédentes.

Ainsi, pour chaque image, quatre régions d'intérêt correspondant aux quatre signaux réfléchis sont extraites. Un traitement numérique est ensuite effectué pour que les surfaces de chaque réflexion soient égales et puissent être comparées.

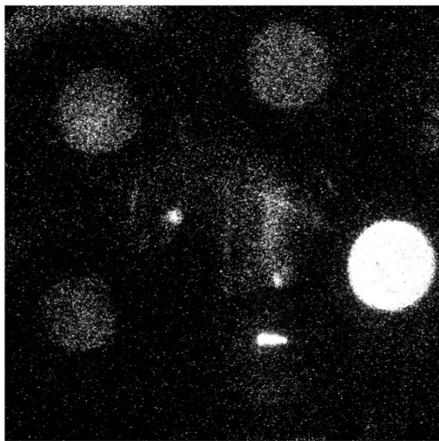


Figure 3 : Exemple d'image brute obtenue par caméra ICCD

Le même processus est appliqué pour extraire la zone de plasma focalisée.

En résumé, à ce stade, nous avons extrait de l'image les quatre disques correspondant aux quatre signaux défocalisés du plasma miroir et du plasma focalisé.

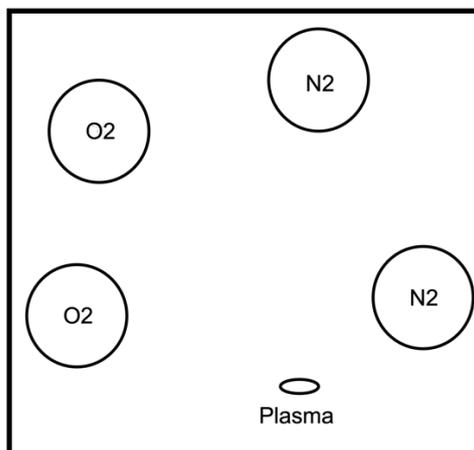


Figure 4 : Schéma d'une image brute

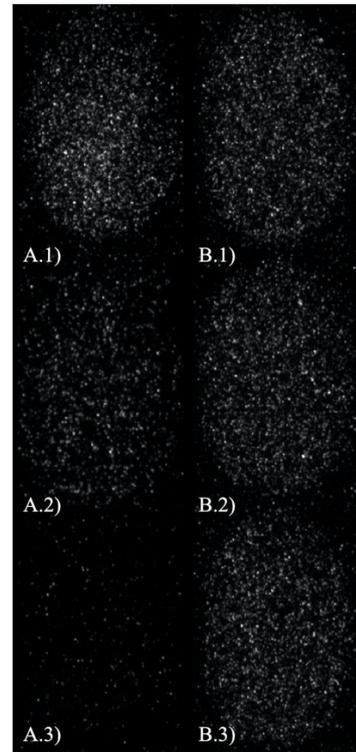


Figure 5 : Signaux isolés pour une raie d'oxygène et d'azote dans 3 zones différentes

La figure 5 montre l'évolution d'un signal d'oxygène 780 nm (colonne A) et d'un signal d'azote 750 nm (colonne B) en fonction de la localisation de claquage plasma. En 1, le claquage est dans la zone avec un débit d'air. On peut voir que les deux signaux sont présents. En 2, le claquage est situé dans la zone de mélange air/azote. On peut voir que le signal d'oxygène A.2 a diminué en intensité comme attendu. Enfin, en 3, le claquage a lieu dans la zone 100 % débit d'azote et l'on peut voir que le signal d'oxygène A.3 est nul, traduisant l'absence d'oxygène dans cette zone.

L'objectif étant de mesurer le rapport O/N, il est nécessaire de quantifier l'intensité relative de ces signaux. Pour ce faire, l'algorithme somme la valeur en intensité de chaque pixel sur une réflexion et ce, pour chaque point de mesure. On obtient ainsi une valeur d'intensité pour une longueur donnée et pour un point donné. Ces valeurs sont ensuite normalisées par la valeur d'intensité maximum obtenue par réflexion.

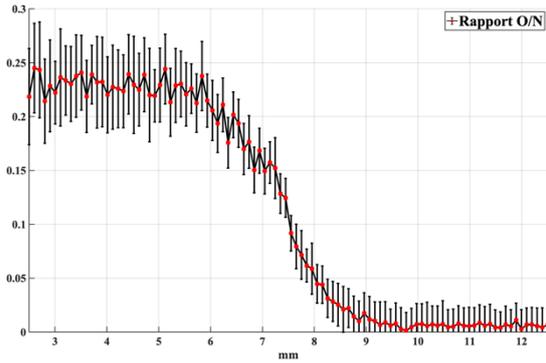


Figure 6 : Rapport O/H en fonction de la position dans l'écoulement

Pour l'expérience de validation, 100 points de mesure ont été effectués, déplaçant le point de claquage plasma de la zone d'air vers la zone azote par pas de 0,1 mm. Connaissant le rapport O/N dans l'air, on peut alors obtenir la variation du rapport O/N lors de la transition de la zone air vers la zone 100 % azote. Ce résultat est présenté dans la figure 6. Le coefficient retenu pour calibrer la rapport O/ne mesuré est de 0.25, correspondant au rapport oxygène/azote dans l'air.

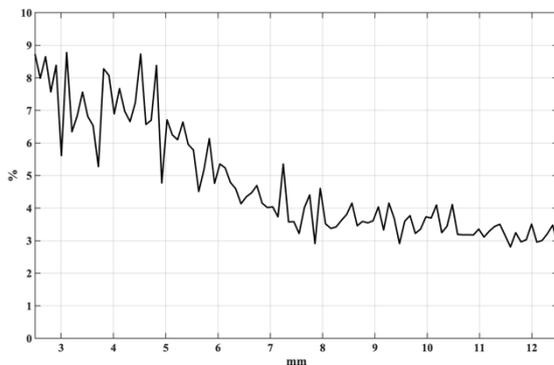


Figure 7 : Évolution de la variation à la moyenne en %

Il est nécessaire de quantifier les incertitudes de la méthode présentée. Pour cela, la même mesure a été répétée 100 fois. La convergence statistique a été vérifiée. Les résultats sont présentés sur la figure 7.

La variation du résultat est de l'ordre de 8 % dans la zone air et de l'ordre de 4 % dans la zone d'azote. Cette différence peut s'expliquer par le fait que dans la zone azote, le signal d'oxygène est nul. L'incertitude est alors uniquement reliée à l'incertitude sur le signal d'azote. Dans la zone d'air, les incertitudes du signal d'oxygène et du signal d'azote sont cumulées. Ces valeurs d'incertitude sont jugées acceptables et permettent de conclure sur la pertinence de la méthode pour la mesure de rapport d'espèces par LIBS simple coup 5C2D.

## 5 Discussion

Il a été montré que la méthode présentée dans cet article permet d'obtenir un rapport d'espèce dans un milieu avec une incertitude allant jusqu'à 10 %. Il est à noter que les longueurs d'onde ont été choisies pour des questions pratiques, mais qu'elles ne sont pas optimales au regard de l'efficacité quantique de la caméra ICCD. En effet, l'efficacité de la caméra ICCD diminue fortement au-delà de 700 nm (à vérifier). Les incertitudes pourraient alors être améliorées en utilisant une autre caméra plus efficace dans ces longueurs d'onde ou bien en ciblant d'autres raies d'émission.

Également, cette méthode mesure un rapport de quantité d'espèces et non la quantité absolue de chaque espèce. Une calibration au préalable est alors nécessaire. Dans cet article, le rapport oxygène/azote de l'air bien connu a été utilisé.

Enfin, cette méthode a été validée pour un écoulement gazeux. Mais un avantage certain est qu'elle peut être utilisée dans tout type de milieu : gazeux, liquide, diphasique (spray).

## 6 Conclusion

Une nouvelle méthode de spectroscopie d'émission de plasma a été présentée couplée à un algorithme de traitement d'image. Cette méthode a été développée pour répondre à la nécessité de mesure de fraction de mélange dans un spray en interaction avec un plasma. L'interaction plasma spray ayant pour conséquence l'obligation de mesure en coup unique. La méthode mise en place à répondu à ces exigences a montré l'obtention de résultats de mesure avec une incertitude maximum de l'ordre 8 % sur un cas de validation de transition d'un écoulement l'air à un écoulement d'azote pur.

Un autre avantage de cette méthode, non présenté dans cet article, permet de reconstituer le gradient du rapport d'espèce à l'intérieur du plasma. En effet, en ayant accès à la forme physique de plasma, il est possible de reconstituer pixel par pixel, à partir des disques de réflexions, la forme du 2D plasma. Ainsi, on obtient les variations en intensité des raies d'émission ciblée en 2D dans le plasma. On peut alors obtenir le gradient 2D des rapports d'espèce dans le plasma.

Pour aller plus loin, d'autres validations sont nécessaires. Des mesures en spray sont envisagées, ainsi que des validations sur des géométries d'écoulement plus complexe. L'objectif final étant

l'utilisation de cette méthode pour des mesures de fraction de mélange dans un écoulement diphasique et turbulent.

## 7 References

[1] K. Kohse-Höinghaus, R. S. Barlow, M. Aldén, J. Wolfrum, Combustion at the focus: laser diagnostics and control, Proceedings of the Combustion Institute 30 (1) (2005) 89–123.  
 [2] H. Ajrouche, A. Lo, P. Vervisch, A. Cessou, Assessment of a fast electro-optical shutter for 1d spontaneous raman scattering in flames, Measurement Science and Technology 26 (7) (2015) 075501.  
 [3] S. Faust, M. Goschütz, S. A. Kaiser, T. Dreier, C. Schulz, A comparison of selected organic tracers for quantitative scalar imaging in the gas phase via laser-induced fluorescence, Applied Physics B 117 (1) (2014) 183–194.  
 [4] C. Tropea, Optical particle characterization in flows, Annual Review of Fluid Mechanics 43 (1) (2011) 399–426.  
 [5] T. X. Phuoc, F. P. White, Laser-induced spark for measurements of the fuel-to-air ratio of a combustible mixture, Fuel 81 (13) (2002) 1761–1765.  
 [6] L. Zimmer, S. Tachibana, Laser induced plasma spectroscopy for local equivalence ratio measurements in an oscillating combustion environment, Proceedings of the Combustion Institute 31 (1) (2007) 737–745.

[7] S. H. Lee, H. Do, J. J. Yoh, Simultaneous optical ignition and spectroscopy of a two-phase spray flame, Combustion and Flame 165 (2016) 334–345.

[8] R. George, Développement de nouvelles stratégies d'allumage laser : application à la propulsion aéronautique et/ou spatiale. Autre. Université Paris-Saclay, 2017

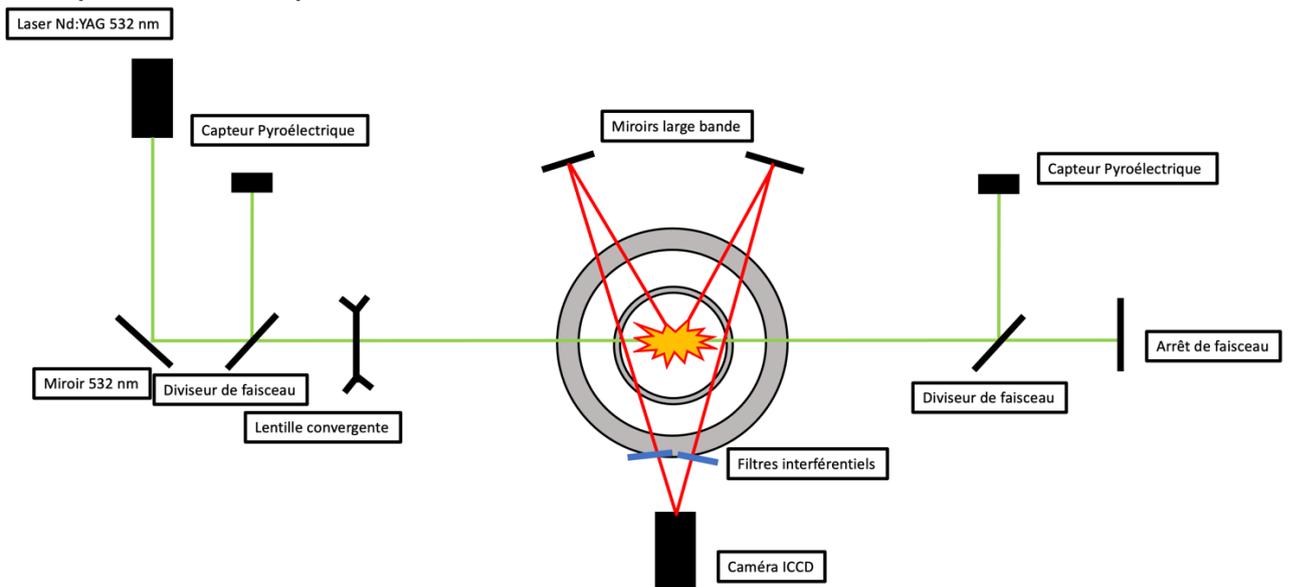


Figure 2 Ceci est la légende d'une image dont la complexité nécessite que sa largeur (160mm) dépasse celle d'une colonne. Il est fortement recommandé de placer ce type de figure en fin d'article.