

## Fluorescence measurement with high temporal resolution for thermometry in shock tube

Dimitri Bonnet<sup>1,a</sup>, Jean-Marc Bouvet<sup>1</sup>, Jérôme Luc<sup>1</sup> and Philippe Hervé<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, Direction des Applications Militaires, Centre de Gramat, BP 80200, 46500 Gramat, France

<sup>2</sup>Laboratoire Energétique Mécanique Electromagnétisme, UFR SITEC, 50 rue de Sèvres, 92410 Ville d'Avray, France

**Abstract.** CEA-Gramat uses a shock tube to calibrate dynamic pressure sensors. In order to get a fine comprehension of this tool, high speed temperature measurements have to be performed. This article presents a method based on fluorescence properties of anisole to measure temperature with high acquisition frequency, using high power arc lamp as excitation source.

### 1 Introduction

Le CEA réalise des expériences sur le site de Gramat qui nécessitent des capteurs de pression capables de mesurer des phénomènes rapides. Ces capteurs doivent donc être étalonner en dynamique. Le temps de montée de ce type de capteur pouvant être de l'ordre de la microseconde, il est nécessaire de pouvoir réaliser un étalonnage en hautes fréquences. Pour réaliser de tels étalonnages, les moyens employés sont généralement des tubes à chocs. Le CEA-Gramat possède un tube à choc, développé avec la société VEGATEC [1], pour étalonner en dynamique les capteurs de pression utilisés pour les expérimentations du CEA-Gramat. Pour avoir des étalonnages fiables, il faut connaître parfaitement le comportement du tube à choc, c'est pourquoi nous désirons obtenir des mesures ultra-rapides de température dans le tube à choc.

Le tube à choc est un dispositif qui permet d'augmenter la température et la pression d'un gaz en un temps très court lors du passage d'une onde de choc. Un tube à choc est composé d'une chambre haute pression (HP) où est stocké un gaz moteur, d'une chambre basse pression (BP) dans laquelle se trouve un gaz de travail. Ces deux chambres sont reliées par une membrane calibrée pour se rompre lorsque la différence de pression entre les deux chambres HP et BP atteint un seuil fixé. Lorsque la membrane se rompt, une onde de compression se déplace dans le gaz de travail, élevant la température et la pression de ce gaz. Dans le même temps, le gaz moteur se détend. Les deux gaz sont séparés par une surface de contact. Lorsque l'onde de compression atteint le fond du tube, elle se réfléchit, augmentant encore la température et la pression du gaz de travail. Ces élévations de température et de pression au passage des ondes de choc incidente et réfléchie se font en un temps très court, de

sorte que nous pouvons considérer que ce sont des échelons de pression. Les températures dans le tube à choc du CEA-Gramat peuvent varier entre 300 K et 800 K, et les pressions varient, elles, entre 0,1 MPa et 2 MPa, et le nombre de Mach de l'onde de choc incidente varie entre 1 et 2.

Les temps mis en jeu dans ces phénomènes sont inférieurs à la microseconde, nous souhaitons donc obtenir une méthode de mesure de la température avec une fréquence d'acquisition suffisante. Les mesures intrusives comme les thermocouples ont des temps de réponse relativement longs dans le contexte de notre étude (supérieurs à la microseconde). De plus, pour obtenir des temps de réponse courts, ces dispositifs doivent être miniaturisés et sont donc fragiles. C'est pourquoi nous nous sommes dirigés vers les solutions de méthodes optiques qui permettent d'observer le milieu à distance, et qui ne sont limitées en résolution temporelle que par le nombre de photons détectés pendant le temps de mesure.

### 2 Choix de la méthode de mesure

La sélection de la méthode de mesure s'est faite sur plusieurs critères. D'abord, la finalité de l'étude étant d'effectuer des mesures de température dans le tube à choc d'étalonnage du CEA-Gramat, la méthode employée doit satisfaire les conditions opératoires de ce moyen. Ainsi, le dispositif doit être capable de mesurer des températures variant de 300 K à 800 K avec des pressions variant de 0,1 MPa à 2 MPa. Afin de prendre en compte les phénomènes très rapides du tube à choc, nous souhaitons avoir des fréquences d'acquisition les plus élevées possibles, supérieures au MHz.

<sup>a</sup> Corresponding author: dimitri.bonnet@gmail.com

La gamme de température, relativement faible pour des mesures optiques, couplée à une fréquence d'acquisition élevée, induisent un niveau de signal faible. De plus, la température et la pression varient simultanément dans le tube à choc, alors que les méthodes optiques sont généralement sensibles à ces deux paramètres. C'est pourquoi nous nous sommes tournés vers la technique de fluorescence qui permet d'obtenir des signaux de plus forte intensité comparée à d'autres techniques optiques telles les mesures d'émission, de transmission, ou encore les diffusions Rayleigh ou Raman [2].

La technique de Fluorescence Induite par Laser (LIF) a largement été utilisée pour des mesures de concentration d'espèces ou de pression et aussi pour des mesures de températures [3]. La fluorescence induite par laser (LIF) est une méthode qui repose sur le phénomène de fluorescence de molécules excitées par un laser. En excitant une molécule avec un laser ayant une longueur d'onde dans le spectre d'absorption de la molécule, celle-ci émet, en se désexcitant, un signal sur un spectre étendu décalé par rapport à son spectre d'absorption. Le signal d'émission de LIF est dépendant de la température, de la pression et de la concentration en espèce. Certaines molécules ont leur signal de fluorescence qui est plus sensible à la température, d'autres à la pression, ou à d'autres paramètres. En utilisant une molécule qui est majoritairement sensible à la température, nous pouvons utiliser deux détecteurs pour deux largeurs spectrales différentes dans le spectre d'émission pour affaiblir considérablement l'influence des autres paramètres que la température. Ainsi, il est possible de mesurer la température, c'est la technique LIF 2 lignes [4]. Cette méthode est employée en particulier dans les moteurs automobiles dans lesquels les niveaux de température et de pression sont équivalents à ceux rencontrés dans le tube à choc.

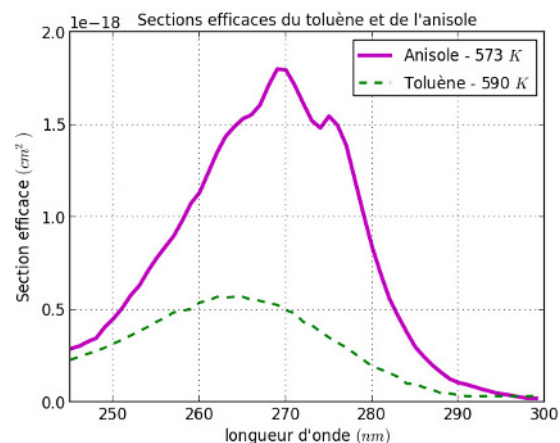
### 3 Fluorescence induite par lampe à arc

La technique de LIF est souvent employée pour obtenir un champ d'une grandeur (température ou concentration par exemple) dans un plan avec ce que l'on appelle la fluorescence induite par laser planaire (PLIF). Dans ce cas, un laser impulsionnel de forte puissance (couplé à une lentille cylindrique pour obtenir une nappe laser) est employé pour exciter les molécules, et une caméra permet de visualiser le plan considéré. L'emploi de ce type de source et de détecteur limite la fréquence d'acquisition à quelques dizaines de Hz. Pour augmenter la fréquence d'acquisition, il est nécessaire d'utiliser des appareillages plus rapides et donc d'une puissance de la source inférieure, et d'un point de mesure moins étendu (une ligne ou un point de mesure au lieu d'un plan 2D). Cette dernière limitation est obligatoire pour garantir une densité d'énergie suffisante, aussi bien pour l'excitation que pour le signal à détecter. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés à l'emploi d'une source continue pour l'excitation de molécules fluorescentes en un seul point de mesure. La base de temps de la mesure ne sera alors plus définie par la source comme en PLIF, mais par le

détecteur. Les études de fluorescence se font souvent en utilisant des molécules fluorescentes sensibles dans le domaine de l'ultra-violet. Ainsi, Cheung et Hanson [5] ont déjà étudié la faisabilité d'utiliser la molécule de toluène excitée par un laser continu de 266 nm (532 nm doublé par une cavité) pour une puissance laser effective de 430 mW, le signal étant acquis par un photomultiplicateur. Il en est ressorti qu'il est possible d'obtenir suffisamment de signal jusqu'à des fréquences d'acquisition proches de 10 kHz. Il n'existe pas actuellement de source laser plus puissante à cette longueur d'onde, et il n'est pas possible d'obtenir ces fréquences d'acquisition de l'ordre du MHz avec ce type d'appareillage. Nous avons donc décidé de réaliser le même type d'expérience, mais en choisissant un autre type de source qu'on suppose plus puissante, couplée à une autre molécule dont le signal de fluorescence est sensible à la température et dont la section efficace est supérieure à celle du toluène, l'anisole. Cette molécule a déjà été utilisée [4] pour des mesures de température instantanées dans des conditions semblables (en température et pression) à celles du tube à choc. Le choix de la source s'est porté sur une lampe à arc mercure-xénon (HgXe) de 1000 W, qui émet sur un spectre étendu de l'ultra-violet à l'infrarouge. Si nous ne considérons que la longueur d'onde de 266 nm comme pour le laser utilisé par Cheung et Hanson, la puissance de la source HgXe (environ 10 mW) est bien moins importante que celle du laser (430 mW). En revanche, cette source étant étendue, l'excitation de l'anisole se fera sur un domaine de longueurs d'onde étendu, augmentant considérablement la puissance utile.

En comparaison avec l'expérience de Cheung et Hanson, cette technique présente plusieurs avantages. Tout d'abord, en utilisant l'anisole à la place du toluène, nous obtiendrons un signal de fluorescence plus intense car la section efficace de l'anisole est supérieure à celle du toluène. De plus, le signal de fluorescence émis par l'anisole est particulièrement sensible à la température. Enfin, l'emploi d'une source de spectre étendu nous permettra d'exciter la molécule sur l'ensemble de son spectre d'absorption, et non seulement sur une longueur d'onde comme c'est le cas avec l'emploi d'une source laser.

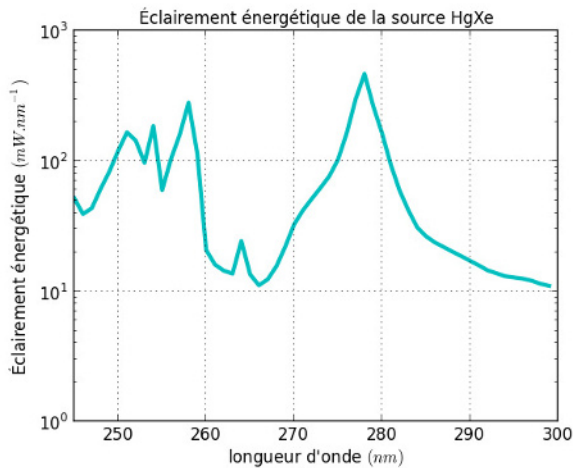
**Figure 1.** Comparaison entre la section efficace du toluène à 590 K [3] et celle de l'anisole à 573 K [4].



La figure 1 montre les sections efficaces du toluène et de l'anisole pour des températures respectives de 590 K [3] et 573 K [4]. La section efficace de l'anisole est bien supérieure à celle du toluène employé par Cheung et Hanson. Dans leur étude, Cheung et Hanson utilisent un laser quadruplé à 266 nm. A cette longueur d'onde, la section efficace du toluène est environ de  $5,5 \times 10^{-19}$  cm<sup>2</sup>. A cette même longueur d'onde, l'anisole a une section efficace supérieure, environ  $1,5 \times 10^{-18}$  cm<sup>2</sup>.

La figure 2 montre l'éclairement énergétique en sortie de la lampe HgXe. A 266 nm, l'éclairement est d'environ 11 mW, ce qui est bien inférieur au 430 mW du laser de l'étude de Cheung et Hanson. Cependant, la lampe ayant un spectre étendu, nous pouvons intégrer cet éclairement sur une large gamme de longueurs d'onde, permettant d'obtenir une puissance plus importante. Il convient tout de même de prendre en compte les sections efficaces pour comparer les deux méthodes.

**Figure 2.** Eclairement énergétique de la lampe HgXe 1000 W.



Pour comparer les puissances utiles dans les deux méthodes, nous prenons comme référence la puissance du laser 266 nm de 430 mW,  $E_{Laser}$ , appliquée sur la section efficace du toluène à 266 nm,  $\sigma_{Toluène-266nm}$ , et nous normalisons les grandeurs à partir de ce cas. Ainsi, si nous utilisons la lampe HgXe sur du toluène en ne tenant compte que de la longueur d'onde 266 nm, nous obtenons un rapport entre les deux méthodes égal au rapport de l'éclairement énergétique de la lampe à 266 nm,  $E_{HgXe-266nm}$ , multiplié par la section efficace du toluène à 266 nm sur la puissance du laser multipliée par la section efficace du toluène à 266 nm (1).

$$\frac{E_{HgXe\ Toluène-266nm}}{E_{Laser}} = \frac{E_{HgXe\ 266nm} \times \sigma_{Toluène-266nm}}{E_{Laser} \times \sigma_{Toluène-266nm}} \quad (1)$$

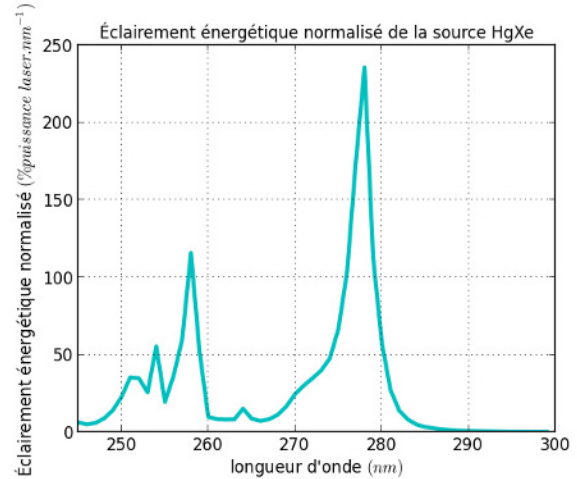
A cette longueur d'onde, la lampe HgXe délivre alors 2% de la puissance fournie par le laser. Si nous considérons que la lampe excite de l'anisole à 266 nm (2), et non du toluène à la section efficace inférieure, cette fois nous obtenons l'équivalent de 7% de la puissance fournie par le laser.

$$\frac{E_{HgXe\ Anisole-266nm}}{E_{Laser}} = \frac{E_{HgXe\ 266nm} \times \sigma_{Anisole-266nm}}{E_{Laser} \times \sigma_{Toluène-266nm}} \quad (2)$$

Si nous tenons compte de la totalité des spectres d'éclairement et de la section efficace de l'anisole, nous

obtenons la courbe de la figure 3, sur laquelle est tracée la puissance utile de la source pour chaque longueur d'onde par rapport à la puissance du laser. A 266 nm, la puissance est faible, mais il existe des longueurs d'onde pour lesquelles la lampe fournit plus de puissance que le laser à 266 nm. Et si nous intégrons cette courbe entre 245 nm et 290 nm, nous nous rendons compte que la lampe peut fournir l'équivalent de plus de 15 fois la puissance du laser. Ce surplus de puissance d'excitation se traduira forcément par une augmentation de l'intensité du signal de fluorescence. Ce signal étant plus important, le détecteur pourra collecter la même énergie que dans l'expérience avec un laser en un temps plus court, et la résolution temporelle pourra alors être considérablement améliorée. La résolution temporelle accessible doit alors être déterminée expérimentalement.

**Figure 3.** Normalisation de l'éclairement de la source HgXe sur de l'anisole par rapport à la puissance du laser sur du toluène.

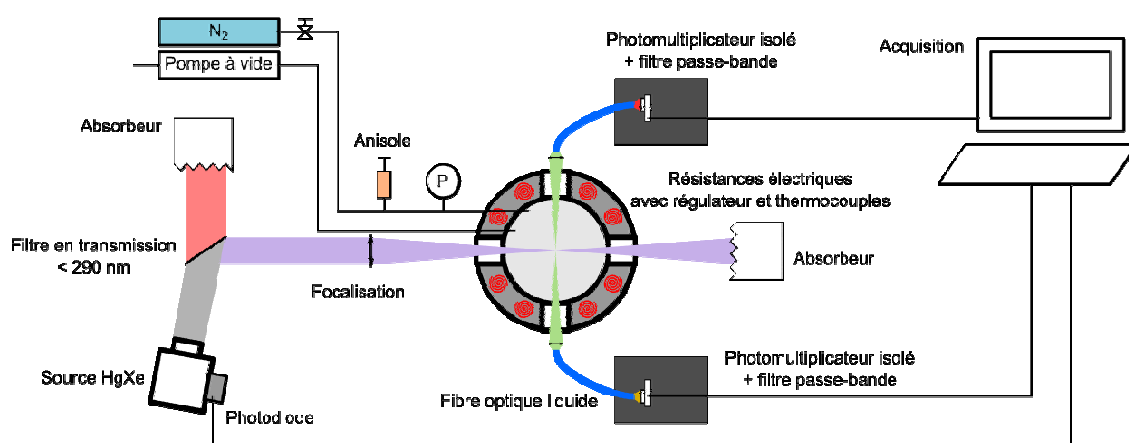


## 4 Expérience

Pour réaliser des mesures de température par fluorescence, il convient d'abord de réaliser une carte de calibrage. Le signal de fluorescence est enregistré pour des conditions connues de pression et de température pour obtenir une carte de calibrage. Cette carte de calibrage est ensuite utilisée comme référence lors des mesures sur l'expérience finale.

Le banc d'expérience (figure 4) pour le calibrage est basé sur une cellule [4] pouvant être mise sous pression entre 0,1 MPa et 2 MPa et réglée en température entre 300 K et 800 K. Une pompe à vide permet d'évacuer les gaz et molécules fluorescentes entre chaque essai. Ensuite, l'anisole est introduite par seringue micrométrique et est vaporisée. La cellule est remplie d'azote, gaz qui n'influence pas le signal de fluorescence contrairement à l'oxygène par exemple. Et la cellule est mise à la pression désirée et réglée à la température de consigne. L'excitation est obtenue par une lampe à arc HgXe de 1000 W dont le spectre est filtré par un filtre passe-bas en transmission de longueur d'onde de coupure 290 nm. Diverses optiques permettent de focaliser le faisceau collimaté issu de la source. Le signal de fluorescence est déporté par deux fibres optiques liquides à haute transmission dans le domaine ultra-violet et la

Figure 4. Normalisation de l'éclairement de la source HgXe sur de l'anisole par rapport à la puissance du laser sur du toluène.



détection est réalisée par deux photomultiplicateurs couplés à deux filtres passe-bandes centrés à 300 nm et 385 nm et de largeurs 10 nm. Les signaux obtenus sont normalisés à partir de la puissance de la source mesurée par une photodiode.

Cette expérience sera réalisée pour montrer la faisabilité de la mesure de température par cette méthode de fluorescence induite par lampe à arc. Elle servira aussi à montrer les fréquences d'acquisition accessibles avec cette technique en fonction de la fraction molaire d'anisole, en comparant le niveau de bruit au signal de fluorescence moyen.

## 5 Conclusion

La mesure de fluorescence sur deux bandes spectrales distinctes est une méthode optique qui permet d'obtenir la température dans un milieu dont la pression varie. L'emploi d'une lampe à arc HgXe de forte puissance comme source d'excitation doit permettre de générer un signal de fluorescence d'intensité suffisante pour être mesuré à des hautes fréquences.

L'expérience décrite permettra de déterminer les fréquences d'acquisition accessibles avec cette méthode et sera ensuite utilisée comme calibrage pour des mesures de température dans le tube à choc.

## Remerciements

Les auteurs souhaitent vivement remercier le Professeur Philippe Guibert de l'Institut Jean le Rond d'Alembert de l'Université Pierre et Marie Curie, pour ses conseils avisés sur la technique de fluorescence et son aide précieuse pour la mise en place de l'expérience de fluorescence.

## References

1. F. Michel, *Dossier de définition - Moyen d'étalonnage dynamique de capteurs de pression* (2001)
2. D. Ramel, *Détermination optique de la température d'un volume de produits de détonation* (2008)

3. C. Schulz, V. Sick, *Prog. Energy Combust. Sci.*, **31**, 75 (2005)
4. K. H. Tran, M. Kühni, C. Morin, P. Guibert, *ECM*, (2011)
5. B. H. Cheung, R. K. Hanson, *Appl. Phys. B*, **98**, 581 (2010)

<sup>a</sup> Corresponding author: dimitri.bonnet@gmail.com