



**HAL**  
open science

## Nouvelle architecture laser pour la thermométrie par spectroscopie DRASC en régime hybride fs/ps

M. Nafa, M. Scherman, H. Danvy, A. Bresson, A. Godard, T. Schmid, P. Joubert, B. Attal-Trétout

### ► To cite this version:

M. Nafa, M. Scherman, H. Danvy, A. Bresson, A. Godard, et al.. Nouvelle architecture laser pour la thermométrie par spectroscopie DRASC en régime hybride fs/ps. CFTL 2016, Sep 2016, TOULOUSE, France. hal-01441686

**HAL Id: hal-01441686**

**<https://hal.science/hal-01441686>**

Submitted on 20 Jan 2017

**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.

# Nouvelle architecture laser pour la thermométrie par spectroscopie DRASC en régime hybride fs/ps

M.Nafa<sup>1,2</sup>, M.Scherman<sup>1</sup>, H.Danvy<sup>1</sup>, A.Bresson<sup>1</sup>, A.Godard<sup>1</sup>, T.Schmid<sup>1</sup>, P.Joubert<sup>2</sup>, B.Attal-Trétout<sup>1</sup>

1 : ONERA, Chemin de la Hunière et des Joncherettes, F-91123 Palaiseau Cedex

2 : Institut UTINAM, UMR CNRS 6213, Université de Franche-Comté, 25030 Besançon Cedex

[malik.nafa@onera.fr](mailto:malik.nafa@onera.fr)

Nous présentons dans cet article le banc de spectroscopie DRASC ro-vibrationnelle de l'ONERA en régime hybride femtoseconde/picoseconde (fs/ps). Les équations qui régissent l'interaction DRASC en régime hybride sont présentées, en détaillant les étapes d'excitation du milieu par des impulsions pompe et Stokes femtosecondes, et de lecture des cohérences à l'aide d'une impulsion de sonde picoseconde. Des spectres DRASC résolvant la structure ro-vibrationnelle de la branche Q de N<sub>2</sub> ont pu être obtenus à l'aide de faisceaux pompe et Stokes à 515 et 583 nm, et d'une sonde à 515 nm de largeur 0.7 cm<sup>-1</sup>. Finalement, nous présentons les mesures de température réalisées à partir des spectres DRASC de N<sub>2</sub> acquis : à haute cadence (1 kHz) dans l'air ambiant, et à basse cadence (2 Hz) dans une flamme CH<sub>4</sub>/air.

## 1 Introduction

La Diffusion Raman anti-Stokes Cohérente est un phénomène d'optique non-linéaire[1] qui est utilisé à des fins de métrologie non-invasive pour l'étude de la combustion depuis les années 1970. La spectroscopie DRASC renseigne sur les populations des niveaux moléculaires, schématisés sur la Figure 1 (a). Ainsi, elle est utilisée pour connaître la composition et les propriétés thermodynamiques (pression, température) d'un milieu. La comparaison simulation/expérience permet de réaliser des mesures de concentration d'espèces majoritaires et de température. Pour cette dernière, la spectroscopie DRASC de N<sub>2</sub> est communément employée.

Initialement développée en régime nanoseconde et à basse cadence[2], le diagnostic DRASC a récemment pu être démontré à haute cadence[3], en utilisant un régime de fonctionnement dit hybride femtoseconde/picoseconde (fs/ps), décrit pour la première fois en 2006 [4]. Cela permet l'étude d'écoulements turbulents à des fréquences d'échantillonnage voisines du kHz notamment. Dans cette optique, une nouvelle architecture laser en régime hybride fs/ps a été développée à l'ONERA. Après description des équations qui régissent le processus DRASC en régime hybride nous présenterons le dispositif expérimental, ainsi que les premiers résultats de thermométrie.

## 2 Diffusion Raman anti-Stokes cohérente et régime hybride fs/ps

La Diffusion Raman anti-Stokes cohérente (DRASC) est une interaction non-linéaire qui engendre à partir de trois impulsions pompe, Stokes et sonde, une quatrième impulsion dite anti-Stokes. Son intensité dépend de la susceptibilité non linéaire  $\chi^{(3)}$  du milieu gazeux sondé, et des intensités des trois impulsions excitatrices.

Le processus peut être décrit en deux étapes : l'excitation des cohérences ro-vibrationnelles par les impulsions pompe et Stokes, illustrée sur la Figure 1(b) ; puis, illustrée sur les Figure 1 (c) et Figure 1 (d), leur interrogation par l'impulsion de sonde après un temps  $\tau$ . En posant les termes  $A_{excitation}(\omega, \tau)$  et  $A_{sonde}(\omega)$  qui décrivent l'excitation des cohérences et leur lecture. L'intensité anti-Stokes (DRASC) se calcule, pour un déplacement Raman  $\omega$  [5] à partir de la relation :

$$I_{DRASC}(\omega, \tau) \propto |A_{excitation}(\omega, \tau) \otimes A_{sonde}(\omega)|^2 \quad (1)$$

L'objet des sections suivantes est de décrire les termes  $A_{excitation}(\omega, \tau)$ , et  $A_{sonde}(\omega)$ .

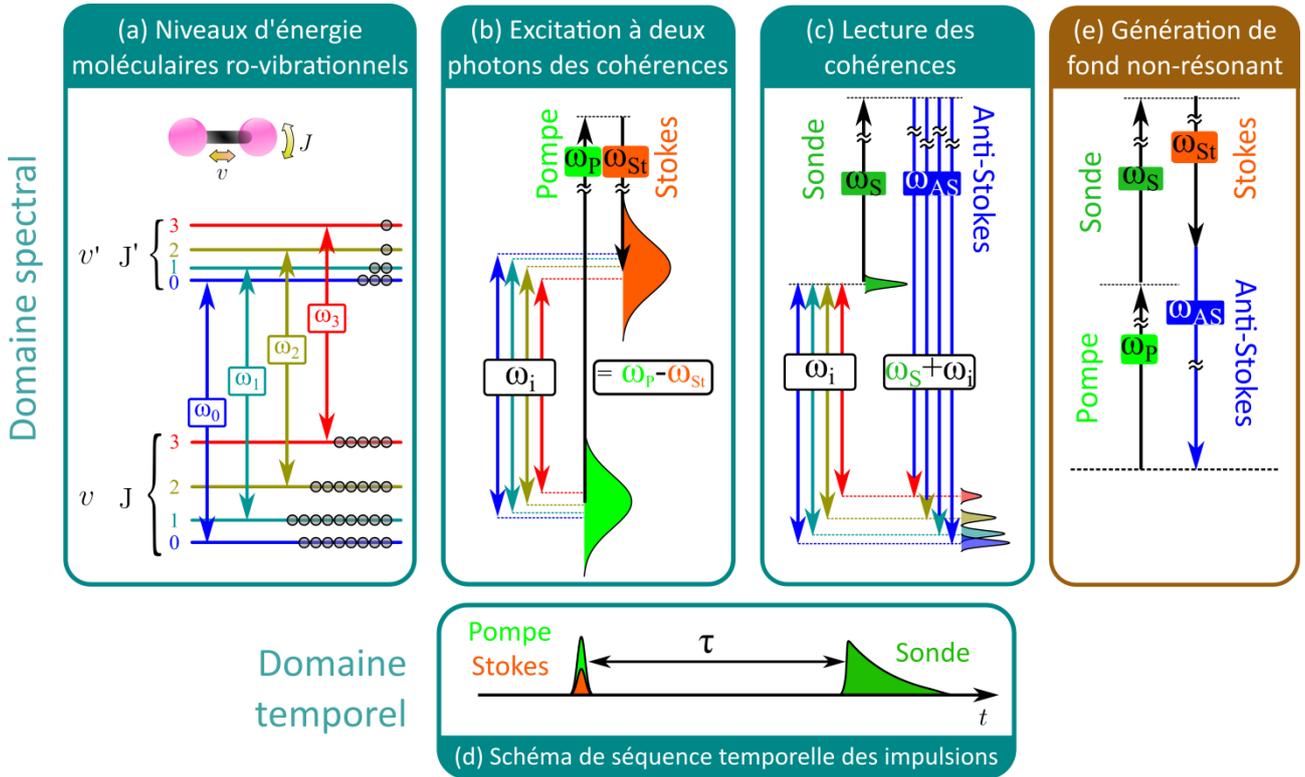


Figure 1 : Illustration de l'interaction DRASC en régime hybride fs/ps. (a) Structure ro-vibrationnelle des niveaux d'énergie d'une molécule. Les transitions Raman correspondant à la branche Q sont représentées par leur déplacement Raman  $\omega_i$ . (b) Excitation large bande des cohérences par les impulsions pompe et Stokes femtosecondes. (c) Interrogation du milieu à l'aide d'une impulsion de sonde picoseconde, dont l'étroite largeur spectrale fixe la résolution du spectre anti-Stokes généré. (d) Représentation temporelle des impulsions pompe, Stokes et sonde. (e) Schéma de la contribution majoritaire au fond non-résonant.

## 2.1 Excitation pompe/Stokes à l'aide d'impulsions femtosecondes, larges spectralement

Une transition Raman, d'énergie  $\hbar\omega_{\alpha\beta}$ , est excitée par les impulsions pompe et Stokes, lorsque leur déplacement en fréquence ( $\omega_{pompe} - \omega_{Stokes}$ ) est égal à la fréquence  $\omega_{\alpha\beta}$ . Ce processus est schématisé sur la Figure 1(b). L'utilisation d'impulsions pompe et Stokes femtosecondes permet de réaliser une excitation large bande: l'ensemble des transitions Raman est alors excité par un seul tir laser. Par ailleurs, les puissances crêtes élevées de ces impulsions exaltent le processus DRASC non-linéaire. Cela permet en outre d'exciter les transitions Raman à une cadence de l'ordre du kHz. La susceptibilité résonante  $\chi_R^{(3)}(\omega)$  s'écrit :

$$\chi_R^{(3)}(\omega) = \sum_{\alpha\beta} \left( \frac{d\sigma_{\alpha\beta}}{d\Omega} \right) \cdot \Delta\rho_{\alpha\beta} \cdot \frac{i\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}\sigma_{Doppler}} \cdot W \left( \frac{\omega_{\alpha\beta} - \omega - i\Gamma_{\alpha\beta}}{\sqrt{2} \cdot \sigma_{Doppler}} \right) \quad (2)$$

où :  $|\alpha\rangle$  et  $|\beta\rangle$  représentent les niveaux d'énergie de la transition Raman, d'écart en énergie  $\hbar\omega_{\alpha\beta}$  ; d'écart en population  $\Delta\rho_{\alpha\beta}$  ; de section efficace  $\left( \frac{d\sigma_{\alpha\beta}}{d\Omega} \right)$  ; et de largeur collisionnelle  $\Gamma_{\alpha\beta}$ . Enfin,  $W(a + ib) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-t^2}}{a - t + ib} dt$  est la fonction d'erreur complexe ; elle décrit l'amplitude spectrale de la transition Raman, sous la forme d'un profil de Voigt complexe.

En plus des processus résonants, la susceptibilité non-linéaire  $\chi^{(3)}(\omega)$ , contient des termes non-résonants, dont une contribution principale est représentée sur la Figure 1 (e). La susceptibilité s'écrit donc

$$\chi^{(3)}(\omega) = \chi_R^{(3)}(\omega) + \chi_{NR}^{(3)}(\omega), \quad (3)$$

$\chi_{NR}^{(3)}(\omega)$  étant modélisé par un scalaire [6].

La susceptibilité non-linéaire représente la réponse impulsionnelle du milieu, et correspond donc dans le domaine fréquentiel, à la réponse à une excitation homogène sur une plage spectrale infinie. La distribution spectrale de l'excitation pompe/Stokes est prise en compte en multipliant  $\chi^{(3)}(\omega)$  par un profil  $H(\omega)$ . La Figure 2 illustre l'effet sur le spectre DRASC d'un décalage de la fréquence centrale de  $H(\omega)$  de  $40 \text{ cm}^{-1}$ .

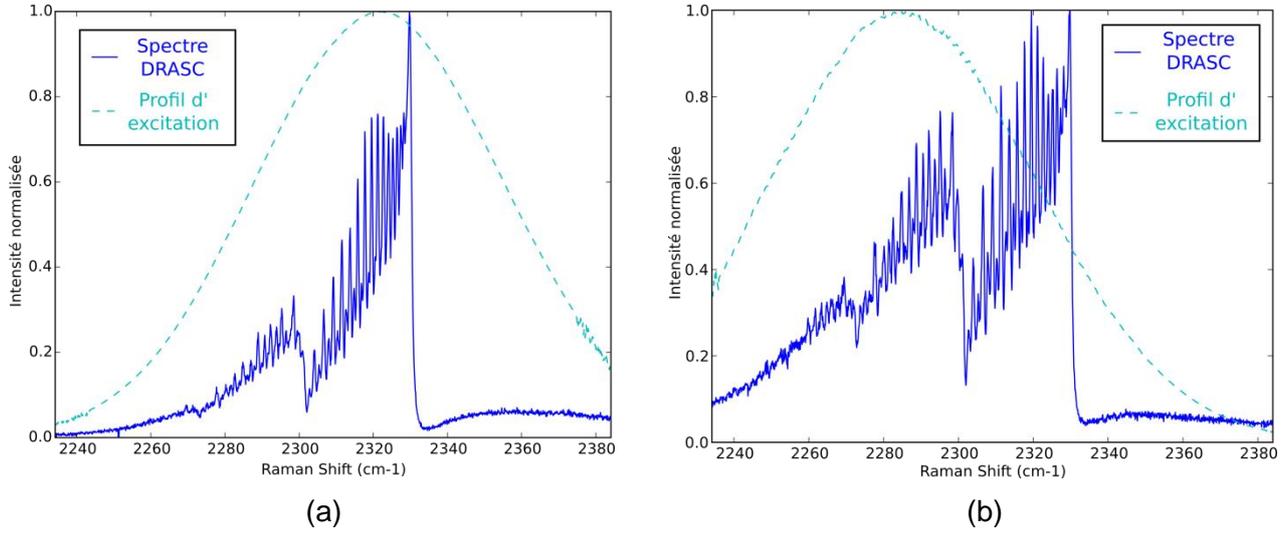


Figure 2. Spectres DRASC expérimentaux (bleu) moyennés sur 5000 tirs dans une flamme de prémélange  $\text{CH}_4/\text{air}$ . Les profils d'excitation  $|H(\omega)|^2$  sont représentés en pointillés cyan, et centrés sur (a)  $2320 \text{ cm}^{-1}$  ; (b)  $2280 \text{ cm}^{-1}$ .

Enfin, avant d'être lues par l'impulsion de sonde, les cohérences excitées oscillent à leurs fréquences propres  $\omega_{\alpha\beta}$ . Cette évolution temporelle est prise en compte sous la forme d'un déphasage complexe  $\phi(\omega, \tau)$  qui s'exprime comme :

$$\phi(\omega, \tau) = e^{i\omega\tau}. \quad (4)$$

L'excitation moléculaire  $A_{excitation}(\omega, \tau)$  prenant en compte toutes ces contributions est donc décrite par l'équation :

$$A_{excitation}(\omega, \tau) = H(\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega) \cdot \phi(\omega, \tau) \quad (5)$$

$$= H(\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega) \cdot e^{i\omega\tau} \quad (6)$$

## 2.2 Lecture des cohérences à l'aide d'une sonde picoseconde, fine spectralement

La résolution du spectre anti-Stokes est déterminée par la largeur spectrale de la Sonde [7][4]. Le régime hybride fs/ps permet de réaliser une spectroscopie bien résolue en utilisant les finesses spectrales des impulsions picosecondes. Dans le domaine temporel, l'amplitude DRASC est obtenue en multipliant le profil d'impulsion de sonde à la réponse moléculaire [6]. Dans le domaine fréquentiel cela revient à réaliser la convolution de l'excitation moléculaire  $A_{excitation}(\omega, \tau)$  par le spectre de la sonde  $A_{sonde}(\omega)$  pour calculer l'amplitude DRASC  $A_{DRASC}(\omega, \tau)$ :

$$A_{DRASC}(\omega, \tau) = A_{excitation}(\omega, \tau) \otimes A_{sonde}(\omega) \quad (7)$$

L'intensité DRASC est donc décrite par l'équation :

$$I_{DRASC}(\omega, \tau) = |H(\omega) \cdot \chi^{(3)}(\omega) \cdot e^{i\omega\tau} \otimes A_{sonde}(\omega)|^2 \quad (8)$$

Les opérations de convolution et de déphasage de l'équation (8) agissent sur l'amplitude complexe de la susceptibilité, et peuvent modifier fortement l'intensité anti-Stokes résultante par rapport à un calcul stationnaire[8], [9], [10].

### 3 Résultats de spectroscopie DRASC

#### 3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental, illustré sur la Figure 3 (a), comporte une source laser unique femtoseconde à 1030 nm, délivrant une énergie par impulsion de 1 mJ, de durée 150 fs, à une cadence de 1 kHz. A partir de cette source, un amplificateur paramétrique optique commercial (OPA) permet de générer une impulsion Stokes de longueur d'onde accordable. A 583 nm, son énergie est égale à 21  $\mu\text{J}$ , sa durée, 150 fs, et sa largeur spectrale,  $114 \text{ cm}^{-1}$ . Le faisceau résiduel de pompage de l'OPA à 515 nm est utilisé pour générer les faisceaux de pompe et de sonde. La pompe a une énergie par impulsion de 60  $\mu\text{J}$ , et sa largeur est égale à  $130 \text{ cm}^{-1}$ . Le faisceau de sonde est obtenu par filtrage à l'aide d'un réseau de Bragg en volume (VBG), qui permet de générer une impulsion d'énergie 0.9  $\mu\text{J}$ , de largeur spectrale de  $0.7 \text{ cm}^{-1}$ , et de durée de 30 ps[10].

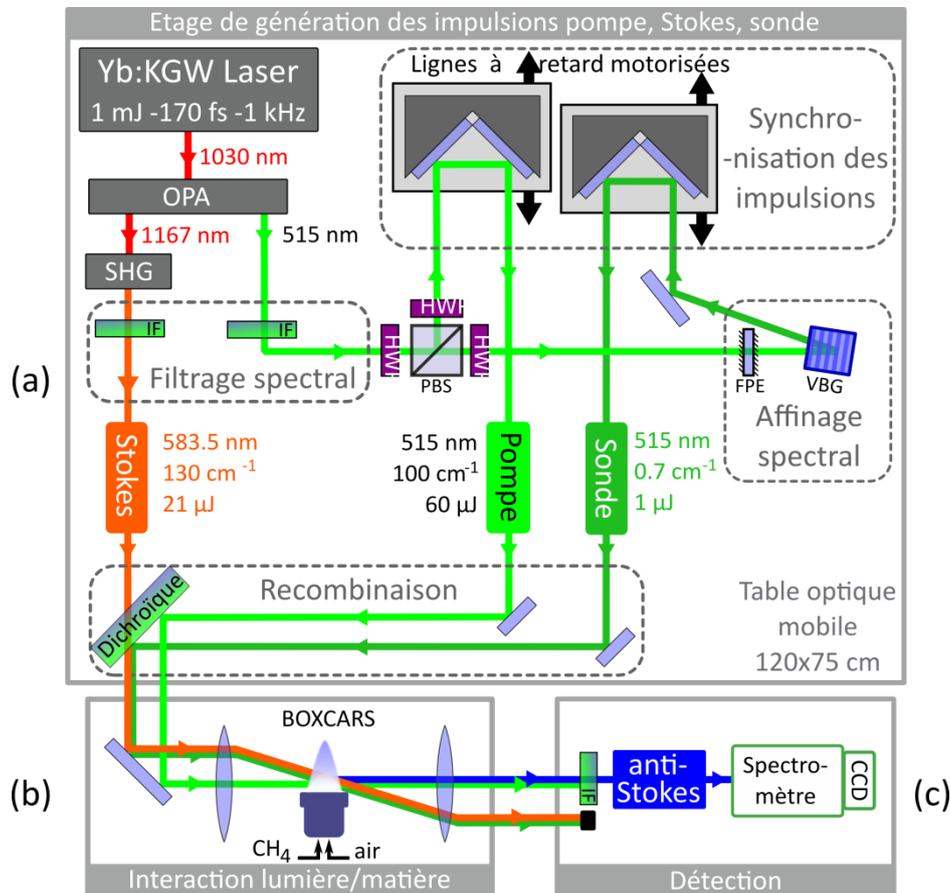


Figure 3. Dispositif expérimental comportant les étages : (a) génération des impulsions pompe, Stokes et sonde ; (b) interaction des impulsions en configuration BOXCARS au sein d'une flamme  $\text{CH}_4/\text{air}$  ; (c) détection du signal anti-Stokes. OPA: Amplificateur paramétrique optique, SHG: génération de second harmonique, IF: filtre interférentiel, PBS: polariseur séparateur de faisceau, HWP: lame demi-onde, FPE : étalon Fabry-Perot, VBG : réseau de Bragg en volume.

Les signaux sont recombinaisonnés selon une géométrie BOXCARS plan, comme indiqué sur la Figure 3 (b). Au niveau du volume de mesure, un brûleur Mc Kenna permet de produire une flamme de prémélange  $\text{CH}_4/\text{air}$ . Le faisceau anti-Stokes est collimaté, filtré, et collecté dans un spectromètre de focale 700 mm (Sopra), utilisant un réseau holographique concave 1800 traits/mm qui diffracte le signal anti-Stokes sur une caméra em-CCD (Roper) (Figure 3 (c)).

### 3.2 Thermométrie DRASC

La température est obtenue par comparaison du calcul avec l'expérience. Une banque de spectres est calculée tous les 10 K comme indiqué sur la Figure 4, en utilisant les paramètres fixes de fond non résonant et de retard pompe/sonde. Notre algorithme de simulation DRASC consiste à d'abord charger les différents termes de l'équation (3), puis à calculer la susceptibilité non-linéaire  $\chi^{(3)}(\omega)$ . Celle-ci est ensuite déphasée comme dans l'équation (6), et convoluée par le profil de sonde. Le spectre d'intensité DRASC ainsi obtenu est convolué par la fonction d'appareil de notre spectromètre. Enfin, le spectre est normalisé par le profil d'excitation en intensité  $|H(\omega)|^2$ , et le spectre résultant est retourné par l'algorithme.

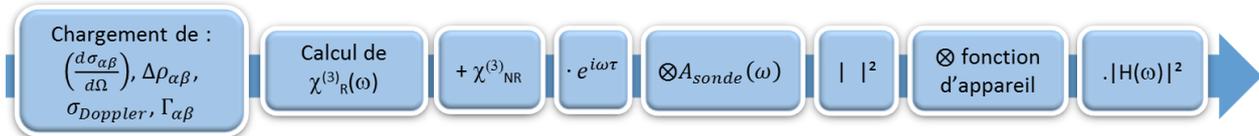


Figure 4. Schéma séquentiel de l'algorithme de simulation de spectre DRASC hybride fs/ps

La température est estimée en minimisant l'écart entre le spectre expérimental et les spectres simulés. Le retard  $\tau$  est fixé à 4 ps, avec une fenêtre d'optimisation de  $\pm 1.5$  ps. Le domaine fréquentiel de comparaison aux moindres-carrés est compris entre  $2250 \text{ cm}^{-1}$  (extrémité de la troisième bande de vibration) et  $2350 \text{ cm}^{-1}$  ; il prend en compte les contributions résonantes et non-résonantes du signal.

Deux ensembles de spectres ont été enregistrés à retard pompe/sonde nul. Le premier ensemble correspond à 1000 spectres DRASC, acquis en tir unique à une cadence de 1 kHz, à température ambiante. Le second correspond à 100 acquisitions réalisées dans une flamme de prémélange stœchiométrique  $\text{CH}_4/\text{air}$ , à une cadence de 2 Hz. En effet l'intensité DRASC chute d'un facteur 1500 entre l'air ambiant et la flamme. En intégrant le signal sur 500 tirs lasers, la cadence de 2 Hz nous permet d'avoir un rapport signal sur bruit (RSB) de 120[11]. La précision est quantifiée par le ratio  $\frac{\sigma_T}{\langle T \rangle}$  où  $\sigma_T$  est l'écart type, et  $\langle T \rangle$  est la moyenne de l'ensemble des mesures de température. Les comparaisons simulation/expérience pour ces deux ensembles sont présentées sur les Figure 5 et Figure 6. Pour chaque ensemble, la superposition d'un spectre expérimental (bleu) avec le spectre simulé à  $\langle T \rangle$  est présenté en (a), et l'histogramme des températures obtenues par l'algorithme aux moindres carrés est présenté en (b). Ainsi, la mesure de température est donnée par la valeur moyenne  $\langle T \rangle$  de l'histogramme, accompagnée de son écart-type  $\sigma_T$ .

A température ambiante, la température moyenne estimée est de 295 K, avec une précision de 5.2 % en tir unique. Dans la flamme  $\text{CH}_4/\text{air}$ , la température moyenne estimée est de 1960 K, avec une précision de 1.7 % pour des spectres accumulés sur 500 tirs. Ces précisions sont comparables à celles obtenues en régime hybride fs/ps[11], en régime femtoseconde avec une sonde chirpée (fs-CPP-CARS)[12], et en régime nanoseconde[13].

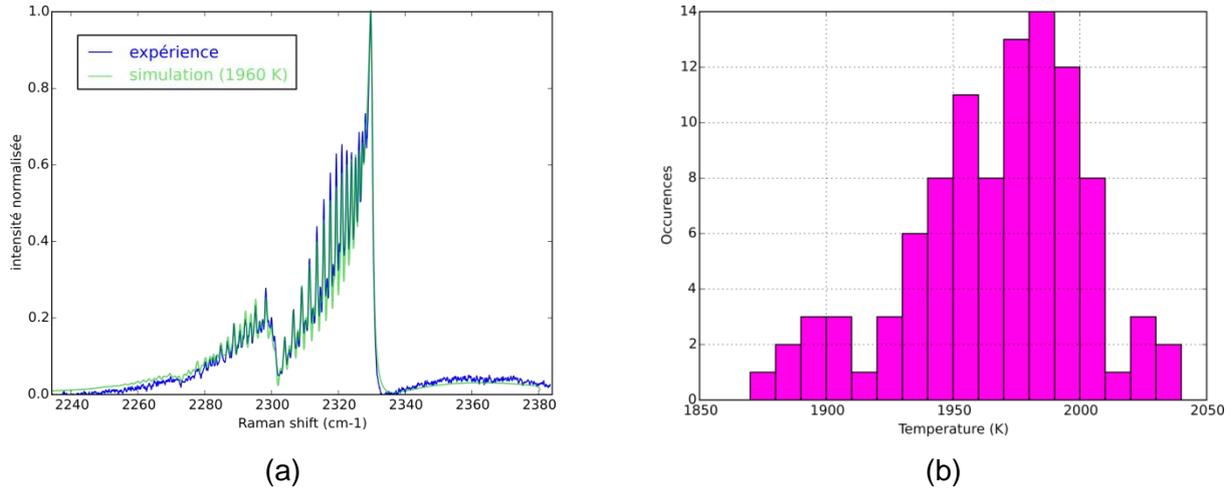


Figure 5. Thermométrie DRASC en flamme  $\text{CH}_4/\text{air}$  : (a) superposition d'un spectre expérimental (bleu) avec la simulation à température moyenne (vert); (b) Histogramme des températures :  $\langle T \rangle = 1960 \text{ K}$ ,  $\sigma_T = 35 \text{ K}$

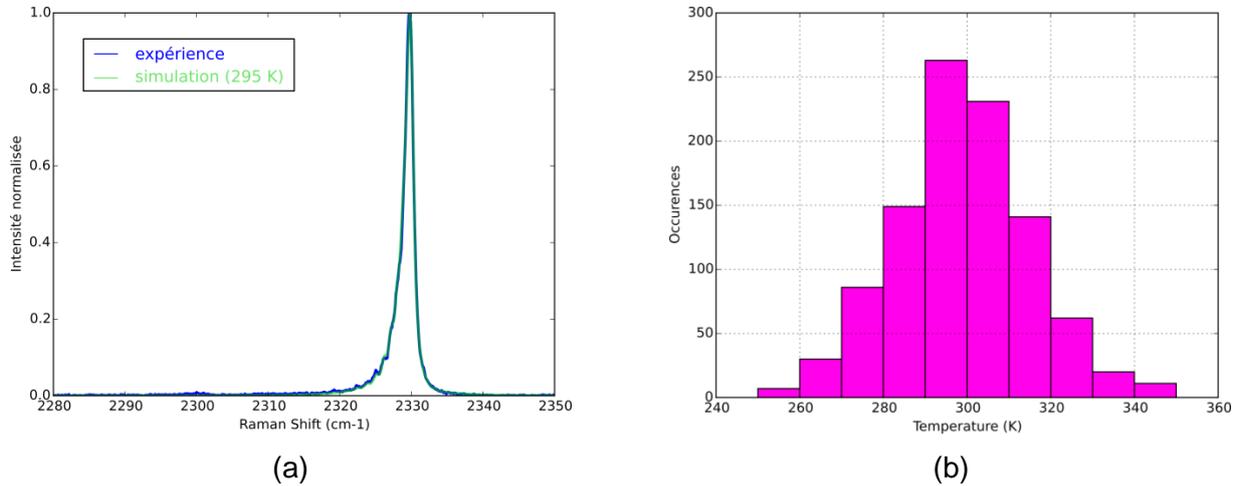


Figure 6. Thermométrie DRASC dans l'air ambiant : (a) superposition d'un spectre expérimental (bleu) avec la simulation à température moyenne (vert); (b) Histogramme des températures estimées :  $\langle T \rangle = 295 \text{ K}$ ,  $\sigma_T = 15 \text{ K}$

## 4 Discussion et conclusion

Le fond non-résonant est un des paramètres qui a dû être estimés et fixés en amont des mesures de thermométrie ; il constitue donc un biais de mesure, influençant la précision obtenue. Pour y remédier, nous avons identifié deux techniques de rejetion du fond non-résonant en régime hybride fs/ps : le contrôle des états de polarisation des impulsions pompe, Stokes et sonde [5][14]; ainsi l'utilisation d'un retard  $\tau > 0$  [5][8]. Ces deux techniques sont détaillées dans l'article[5].

Les mesures de température en flamme  $\text{CH}_4/\text{air}$  et dans l'air ambiant ont permis de démontrer le potentiel de ce montage hybride pour la mesure de température. Des études sont actuellement menées afin d'augmenter l'énergie de sonde, dans le but d'accroître la cadence de mesure. L'exploitation de la résolution rotationnelle et vibrationnelle de notre montage devrait permettre de développer un algorithme sensible aux températures rotationnelles et vibrationnelles. L'étude de milieux en déséquilibre thermodynamique présentant des températures rotationnelles et vibrationnelles différentes[15], fait également partie de nos perspectives.

## 5 Références

- [1] P. D. Maker and R. W. Terhune, "Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength," *Phys. Rev.*, vol. 137, no. 3A, p. 801, 1965.
- [2] F. Moya, S. Druet, and J. P. E. Taran, "Gas Spectroscopy and temperature measurement by coherent Raman anti-Stokes scattering," *Opt. Commun.*, vol. 13, no. 2, p. 169, 1975.
- [3] J. D. Miller, M. N. Slipchenko, T. R. Meyer, H. U. Stauffer, and J. R. Gord, "Hybrid femtosecond/picosecond coherent anti-Stokes Raman scattering for high-speed gas-phase thermometry," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 14, pp. 2430–2432, 2010.
- [4] B. D. Prince, A. Chakraborty, B. M. Prince, and H. U. Stauffer, "Development of simultaneous frequency- and time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering for ultrafast detection of molecular Raman spectra," *J. Chem. Phys.*, vol. 125, no. 4, p. 44502, 2006.
- [5] M. Nafa, M. Scherman, A. Bresson, H. Danvy, A. Godard, B. Attal-Trétout, and P. Joubert, "Ro-vibrational spectroscopy in hybrid ps/fs-CARS for N<sub>2</sub> thermometry," *Aerosp. Lab J.*, no. à paraître, 2016.
- [6] H. U. Stauffer, J. D. Miller, M. N. Slipchenko, T. R. Meyer, B. D. Prince, S. Roy, and J. R. Gord, "Time- and frequency-dependent model of time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) with a picosecond-duration probe pulse," *J. Chem. Phys.*, vol. 140, Jan. 2014.
- [7] Y. Zhou, S. Constantine, S. Harrel, and L. D. Ziegler, "The probe frequency dependence of nonresonant femtosecond pump-probe nuclear responses: Undercutting vibrational inhomogeneities," *J. Chem. Phys.*, vol. 110, no. 12, pp. 5893–5905, 1999.
- [8] J. D. Miller, C. E. Dedic, and T. R. Meyer, "Vibrational femtosecond/picosecond coherent anti-Stokes Raman scattering with enhanced temperature sensitivity for flame thermometry from 300 to 2400 K: Femtosecond/picosecond coherent anti-Stokes Raman scattering," *J. Raman Spectrosc.*, vol. 46, no. 8, pp. 702–707, Aug. 2015.
- [9] H. U. Stauffer, J. D. Miller, S. Roy, J. R. Gord, and T. R. Meyer, "Communication: Hybrid femtosecond/picosecond rotational coherent anti-Stokes Raman scattering thermometry using a narrowband time-asymmetric probe pulse," *J. Chem. Phys.*, vol. 136, no. 11, p. 111101, Mar. 2012.
- [10] M. Scherman, M. Nafa, T. Schmid, A. Godard, A. Bresson, B. Attal-Trétout, and P. Joubert, "Rovibrational hybrid fs/ps CARS using a volume Bragg grating for N<sub>2</sub> thermometry," *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 3, p. 488, Feb. 2016.
- [11] S. P. Kearney, "Hybrid fs/ps rotational CARS temperature and oxygen measurements in the product gases of canonical flat flames," *Combust. Flame*, vol. 162, no. 5, pp. 1748–1758, May 2015.
- [12] D. R. Richardson, R. P. Lucht, S. Roy, W. D. Kulatilaka, and J. R. Gord, "Single-laser-shot femtosecond coherent anti-Stokes Raman scattering thermometry at 1000 Hz in unsteady flames," *Proc. Combust. Inst.*, vol. 33, no. 1, pp. 839–845, 2011.
- [13] T. Seeger and A. Leipertz, "Experimental comparison of single-shot broadband vibrational and dual-broadband pure rotational coherent anti-Stokes Raman scattering in hot air," *Appl. Opt.*, vol. 35, no. 15, p. 2665, 1996.
- [14] R. J. Hall and A. C. Eckbreth, "Combustion diagnosis by coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS)," *Opt. Eng.*, vol. 20, no. 4, pp. 204494–204494, 1981.
- [15] D. Messina, B. Attal-Trétout, and F. Grisch, "Study of a non-equilibrium pulsed nanosecond discharge at atmospheric pressure using coherent anti-Stokes Raman scattering," *Proc. Combust. Inst.*, vol. 31, no. 1, pp. 825–832, Jan. 2007.