

THERMOMÉTRIE RAMAN COHÉRENTE pour l'étude de la combustion

Michael SCHERMAN¹

Joanna BARROS²

Rosa SANTAGATA¹

Alexandre BRESSON¹

Brigitte ATTAL-TRETOUT¹

¹ ONERA/DPHY, Palaiseau, France

² CERN, Meyrin, Suisse

michael.scherman@onera.fr

La combustion est un sujet d'intérêt pour une large variété de domaines d'applications civils ou militaires. Comprendre les phénomènes physico-chimiques à l'œuvre dans ces milieux complexes, et les décrire à l'aide de modèles éprouvés, sont des enjeux majeurs qui requièrent des mesures fiables et quantitatives. La spectroscopie par diffusion Raman anti-Stokes cohérente (DRASC ou CARS en anglais) a démontré des performances inégalées pour la mesure de température. Cette technique a été implémentée avec de nombreuses architectures laser, et appliquée avec succès à un large éventail de milieux.

Spectroscopie pour le diagnostic non invasif des écoulements réactifs

L'étude de la combustion, et des écoulements réactifs en général (flammes, plasma...), est un sujet d'intérêt pour une large variété de domaines d'applications civils ou militaires, et s'étend de la propulsion et l'énergie (moteurs d'avions et fusées), aux analyses (chimie) et au traitement médical (décontamination plasma). Ces milieux sont souvent complexes, turbulents, multi-espèces et multi-phasiques. Il y règne de hautes températures et pressions, et d'éventuels déséquilibres thermodynamiques. Comprendre les phénomènes physico-chimiques à l'œuvre, et les décrire à l'aide de modèles éprouvés, sont des enjeux

majeurs qui permettent d'affiner les simulations numériques, et sont la clé vers la réduction des coûts de conception et d'optimisation des dispositifs industriels. Cette confrontation des modèles avec l'expérience requiert notamment de disposer de mesures expérimentales fiables et quantitatives.

En particulier, la température et la composition chimique sont des éléments essentiels à la description des cinétiques réactionnelles des milieux étudiés. Les diagnostics lasers ont d'ores et déjà prouvé leur capacité à fournir des mesures locales précises, non invasives, et instantanées dans ces environnements. Parmi les plus connus, la spectroscopie par diffusion Raman anti-Stokes cohérente (DRASC ou CARS en anglais), version non-linéaire de la spectroscopie Raman,

permet d'atteindre des performances inégalées pour la mesure de température. Cette technique robuste a été utilisée dans de nombreuses configurations expérimentales et appliquée à un très large éventail de milieux (gazeux, liquides, multiphasiques, plasma...) dont nous proposons un aperçu dans cet article.

L'effet Raman

Découvert en 1928 simultanément par C.V. Raman (Prix Nobel 1930) et G.S. Landsberg, l'effet Raman [1] est le résultat de l'interaction inélastique entre une onde électromagnétique et un milieu matériel. Un faisceau lumineux incident, appelé pompe, se propageant au sein d'une population d'atomes ou molécules, loin de toute résonance électronique, peut en effet subir de la diffusion selon plusieurs processus :

- la diffusion de Mie sur des particules d'une taille proche de la longueur d'onde incidente, ou la diffusion Rayleigh sur les molécules beaucoup plus petites, se font sans modification d'énergie des photons ;
- la diffusion Raman implique un échange d'énergie avec les molécules du milieu via un processus à deux photons : le processus Stokes décrit le cas où le photon diffusé est moins énergétique que l'incident (longueur

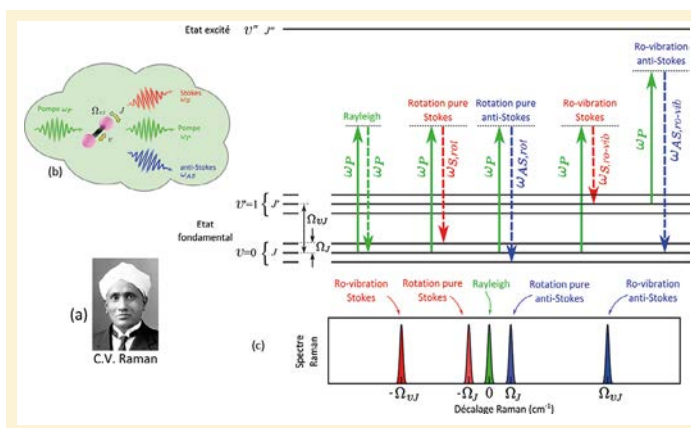
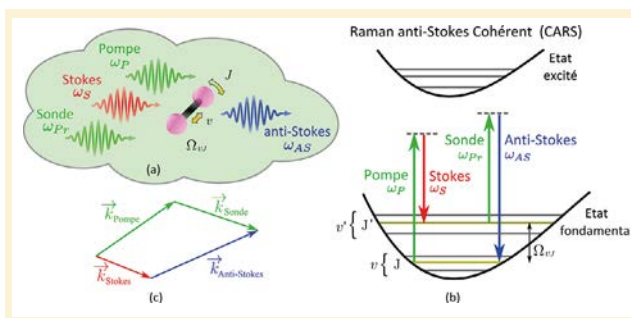


Figure 1. (a) C.V. Raman, (b) schéma de principe de la diffusion Raman, (c) illustration des différents mécanismes à l'origine du spectre de la lumière diffusée.

**Figure 2.**

(a) Principe de la diffusion Raman anti-Stokes cohérente. (b) Transitions énergétiques impliquées dans l'interaction CARS. (c) Accord de phase respecté par les faisceaux pompe, Stokes, sonde et anti-Stokes.

d'onde décalée vers le rouge), tandis que le processus anti-Stokes concerne des photons ayant gagné de l'énergie (décalés vers le bleu) comme illustré sur la *Figure 1*.

Ces échanges d'énergie sont quantifiés et les décalages spectraux observés par rapport à la longueur d'onde incidente renseignent sur la structure ro-vibrationnelle des molécules qui répondent. Les transitions concernées par cette réponse obéissent à des règles de sélection qui classent les motifs spectraux observés au sein de différentes bandes et branches, par exemple Q ($\Delta v = 1$, $\Delta J = 0$), S ($\Delta J = +2$), ou O ($\Delta J = -2$), où Δv et ΔJ désignent les modifications des nombres quantiques de vibration v et de rotation J . Lorsque les niveaux impliqués appartiennent au même niveau de vibration ($\Delta v = 0$), la transition Raman est dite de « rotation pure », et correspond généralement à de faibles décalages énergétiques ($0-500 \text{ cm}^{-1}$). Lorsque des bandes de vibration $\Delta v = 1$ sont impliquées, la transition ro-vibrationnelle engendre un décalage plus important ($1000-4000 \text{ cm}^{-1}$) des photons diffusés par rapport à l'excitation ; on parle alors de bandes froide (pour $v = 0$) ou bien chaude (impliquant $v = 1$ et plus). Par ailleurs, les transitions Raman possèdent des sections efficaces de diffusion calculées à partir du tenseur de polarisabilité de la molécule, et l'amplitude des raies Raman dépend directement de la population des niveaux de départ. Ainsi, le profil du spectre Raman dépendra de la nature de la molécule qui répond, de l'état du milieu et donc des conditions thermodynamiques qui régissent sa population et de la composition moléculaire par les largeurs de raies.

Spectroscopie par diffusion Raman anti-Stokes cohérente (CARS)

En 1965 une déclinaison de l'effet Raman, la CARS [2-4] a été observée pour la première fois par Maker et Terhune. Il s'agit d'un processus d'interaction lumière-matière non-linéaire, dit de mélange à 4 ondes, au cours duquel trois faisceaux, pompe (ω_p), Stokes (ω_{st}) et sonde (ω_s), sont envoyés dans le milieu. Les deux premiers faisceaux, pompe et Stokes, excitent de manière cohérente le milieu. Lorsque leur différence énergétique entre en résonance avec une transition ro-vibrationnelle $\Omega_{v,J}$ (résonance à 2 photons), qui est active en Raman pour la molécule sondée, une cohérence macroscopique est induite dans le milieu qui oscille à la fréquence $\omega_p - \omega_{st} = \Omega_{v,J}$. Un troisième faisceau, la sonde, permet d'interroger cette cohérence et de créer le faisceau anti-Stokes à la fréquence $\omega_{AS} = \omega_s + (\omega_p - \omega_{st}) = \Omega_{v,J}$ vérifiant la loi de conservation de l'énergie.

Par rapport à la spectroscopie Raman spontanée, la CARS possède plusieurs avantages. Un premier avantage est que le signal anti-Stokes est décalé dans le bleu, ce qui assure l'absence d'interférence de fluorescence ; on dit que le signal est créé sur fond noir. De plus, la grande efficacité de diffusion du processus non linéaire permet de créer un signal intense qui autorise une acquisition rapide. En effet, le processus CARS permet d'amplifier le signal Raman anti-Stokes sur une bande spectrale réduite, fixée par l'excitation pompe/Stokes. Par ailleurs, le processus étant non-linéaire, le signal est généré dans un petit angle solide où

la diffusion cohérente est intense. Il est amplifié dans une direction privilégiée imposée par la relation d'accord de phase. On obtient alors une bonne résolution spatiale sur la gamme spectrale de vibration sélectionnée. Mais, cette amplification présente aussi des inconvénients comme la présence d'interférences avec un fond cohérent non-résonant et une modélisation des spectres plus complexe. Un dernier atout notable est que le signal CARS varie rapidement avec la concentration, puisque son intensité est proportionnelle au carré de la concentration des molécules ($\propto n^2$), alors que le signal Raman spontané ne varie que linéairement avec la concentration ($\propto n$). Le signal CARS pourra donc être mesuré en un seul tir laser sur la plupart des espèces majoritaires (c'est-à-dire avec des concentrations molaires supérieures à 10 % typiquement).

Le principe de la spectroscopie CARS repose donc sur la génération et la collection du faisceau anti-Stokes, qui est analysé à l'aide d'un spectromètre et détecté sur la matrice d'un imageur (CCD, ou CMOS par exemple). Le signal dépend de la transition Raman sondée, et on obtient en conséquence, pour chaque molécule, un spectre caractéristique de la nature de la molécule qui est active et situé dans une fenêtre spectrale ro-vibrationnelle particulière. Il dépend également de paramètres thermodynamiques qui influencent les formes de raies et leurs amplitudes, comme la concentration, la pression et la température.

Forte de ces atouts, la spectroscopie CARS trouve de nombreuses applications [4-6] pour le diagnostic en phase gazeuse permettant d'étudier des milieux réactifs complexes tels que la combustion, les plasmas et les écoulements supersoniques, mais aussi la microscopie des milieux condensés, et les sciences de la vie (analyse de tissus, cellules et bactéries, spectroscopie in vivo, endoscopie...).

Thermométrie CARS

L'analyse du contenu spectral du spectre CARS, proportionnel au module carré de la susceptibilité non linéaire complexe, permet de mesurer

la température. En effet, les intensités de raies sont fonction des populations des deux niveaux vibrationnels impliqués dans la transition Raman. Le profil spectral renseigne donc sur la distribution de population sur les multiples états ro-vibrationnels sondés, populations qui obéissent à une loi de Boltzmann dépendant de T , comme illustré sur la *Figure 3a*. En comparant le spectre expérimental à des spectres simulés et en les ajustant, on réalise donc une mesure de température ro-vibrationnelle.

Cette technique est bien adaptée aux mesures de température dans un petit volume focal (ponctuel), car le signal est fort, même dans les environnements hostiles, et la mesure est réalisable en un tir laser unique avec une bonne résolution. En CARS, la mesure dépend du profil spectral et non de l'intensité absolue, ce qui permet d'obtenir une mesure précise. Les températures de rotation T_{rot} et de vibration T_{vib} sont accessibles séparément et les écarts par rapport à la distribution à l'équilibre de Boltzmann peuvent être mesurés, ce qui est extrêmement intéressant dans le cas de milieux hors-équilibre comme les plasmas. La *Figure 3b* montre un exemple de spectres de N_2 enregistrés dans l'air ambiant et dans une flamme de pré-mélange méthane-air. Dans l'air (trait bleu), le spectre est étroit et essentiellement constitué de la première bande froide. Il indique que la distribution de population se concentre sur un petit nombre de niveaux rotationnels à cette

température (~ 300 K). À l'inverse, dans la flamme (trait rouge), trois bandes de vibration sont visibles (une froide et deux chaudes) et de nombreuses raies de rotation ($J \sim 0-40$) apparaissent résolues dans chaque bande. L'influence de la température sur les amplitudes des raies suit la distribution de Boltzmann. Par ailleurs, l'intensité du signal CARS diminue rapidement lorsque T augmente car le nombre de molécules n par unité de volume diminue.

Régimes spectraux et temporels

La spectroscopie CARS utilisée comme une mesure de température a été mise en œuvre dans de multiples régimes spectraux et temporels, qui permettent de générer des signaux aux contenus très différents et qui pilotent directement la performance finale de la mesure. La CARS étant un effet non-linéaire, l'efficacité du processus est proportionnelle à la puissance instantanée de chacun des lasers impliqués. L'utilisation de lasers impulsions (ns - fs), qui fournissent d'importantes puissances crêtes, est donc bien adaptée à cette technique. Trois principaux régimes temporels (*Figure 4*) ont été étudiés : l'utilisation d'impulsions nanosecondes, relativement longues par rapport à la durée de vie des cohérences Raman (quelques centaines de ps à $P = 1$ bar), les impulsions ultra-courtes femtosecondes, et un régime hybride impliquant un mélange d'impulsions courtes et longues.

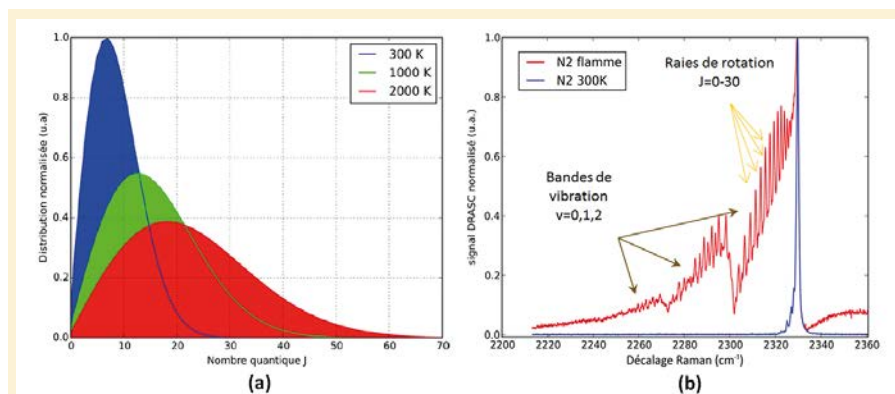


Figure 3. (a) Distribution de population sur les niveaux de rotation indexés par leur nombre quantique J en fonction de la température, tiré de la thèse de M. Nafa (2018). (b) Exemple de spectre CARS ro-vibrationnels mesurés sur N_2 dans l'air ambiant (300 K) et dans une flamme CH_4 /air (~ 2000 K) (extrait de Scherman et al., Opt. Lett. (2016)). (a), (b) : Figures soumises au droit d'auteur et non couvertes par la licence Creative Commons.



small components
MASSIVE IMPACT

We Manufacture
 IR Detectors

- (x)InGaAs Photodiodes
- PbS & PbSe Detectors
- Pyroelectric Detectors

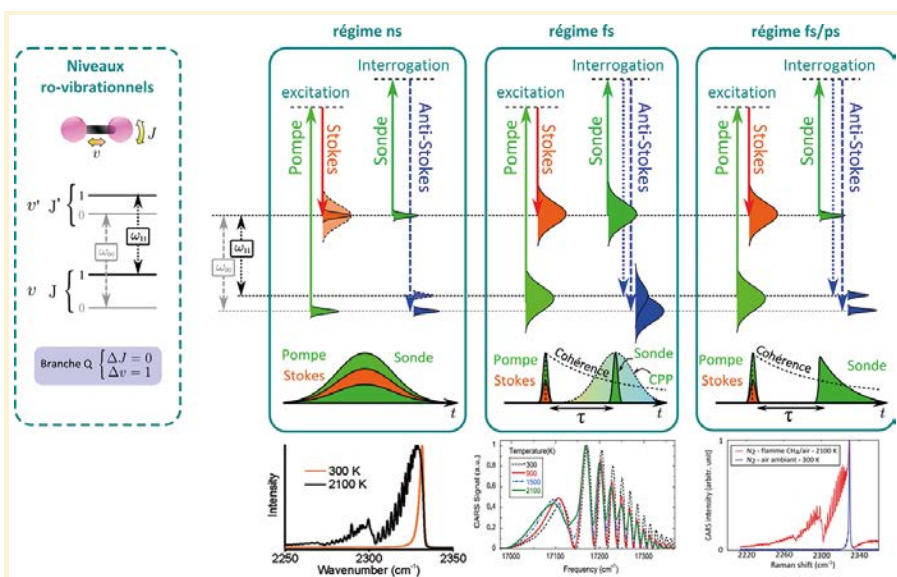


Figure 4. (a) Principaux régimes temporels mis en œuvre en thermométrie CARS et exemples de spectres obtenus sur la branche Q de N_2 : nanoseconde, femtoseconde (CPP), et hybride femto/picoseconde (spectres tirés de Ehn et al., *Applied Spectroscopy* (2017) et D. Richardson et al., *Appl. Phys. B* (2011)). Figure soumise au droit d'auteur et non couverte par la licence Creative Commons.

Régime nanoseconde

La spectroscopie CARS a été développée historiquement en régime nanoseconde. Elle utilise généralement des lasers accordables à colorants qui permettent de balayer la fréquence d'un des lasers (généralement le Stokes) sur de larges plages. Les principaux développements de cette technologie ont concerné la possibilité de mesurer plusieurs espèces en même temps dans des environnements difficiles. Pour cela, des lasers de pompe ou Stokes à spectres larges sont utilisés afin d'exciter de manière instantanée toutes les cohérences Raman correspondant à un large ensemble de niveaux ro-vibrationnels (CARS multiplex). En utilisant plusieurs faisceaux de pompe ou Stokes, il est possible de sonder simultanément plusieurs domaines spectraux (CARS *dual-pump* ou *triple-pump*). L'accès simultané aux températures de plusieurs espèces avec une impulsion unique a ainsi été démontré, notamment sur CO_2 , N_2 ou H_2 .

Le principal atout de la spectroscopie nanoseconde est sa bonne résolution spectrale ($\sim 0,01 \text{ cm}^{-1}$). Cependant, cette dernière est généralement superflue car l'écart entre les raies Raman sondées varie généralement entre 0,1 et quelques cm^{-1} . De plus, pour obtenir

des signaux CARS d'intensité suffisante, il faut employer des impulsions très énergétiques ($\sim 10\text{-}100 \text{ mJ}$) qui ne peuvent être produites qu'à de faibles cadences de répétition (quelques Hz). Ces technologies ne donnaient pas accès aux dynamiques d'évolution rapide des phénomènes turbulents. On a pu cependant, sonder des phénomènes cycliques en synchronisant les lasers ou en datant les instants de mesure par rapport au phénomène observé.

D'autre part, la limitation principale de ce régime est la génération d'un fond non résonant qui interfère avec le spectre ro-vibrationnel et biaise ainsi la mesure de température. Des méthodes jouant sur la configuration des polarisations ont permis de le réduire mais au prix d'une diminution de l'amplitude du signal recueilli. De plus, le spectre mesuré est sensible aux effets collisionnels entre molécules qui décalent et couplent les raies Raman essentiellement à hautes pressions. Enfin, d'un point de vue pratique, ces lasers ont des volumes importants, difficilement déplaçables et leurs fluctuations tir à tir sont importantes ($\sim 10\text{-}30 \%$). L'emploi de lasers picosecondes a permis de démontrer des performances et limitations similaires. Néanmoins, très récemment, l'apparition de systèmes

de type *burst-pulse*, qui fournissent des trains d'impulsions très énergétiques ($\sim 50 \text{ mJ}$) à très haute cadence (100 kHz) durant des temps courts ($\sim 1 \text{ ms}$), a créé un regain d'intérêt pour ce régime qui offre la possibilité de suivre des événements turbulents.

Régime femtoseconde

Une toute autre méthode de spectroscopie a vu le jour avec le développement des lasers femtosecondes fonctionnant à haute cadence (kHz-MHz). La technologie aboutie de ces sources offre aujourd'hui une robustesse et une excellente stabilité tir à tir. Les grandes largeurs spectrales (de quelques centaines à quelques milliers de cm^{-1}) mises en jeu permettent d'exciter une large bande ro-vibrationnelle en un tir laser unique. Avec une sonde de grande largeur spectrale, on génère un signal anti-Stokes où les multiples contributions ro-vibrationnelles se mélangent et interfèrent. Dans ce cas, le contenu spectral est donc perdu. Cependant, l'information ro-vibrationnelle peut être retrouvée dans le signal de battement mesuré en balayant l'impulsion de sonde, qui révèle l'évolution des cohérences dans le temps. Des mesures de température sur une vapeur d'hélium chauffée entre 300 K et 1100 K ont ainsi pu être démontrées par l'équipe de M. Motzkus en 1999, mais elles nécessitent de sonder le milieu à de multiples délais, ce qui limite fortement la cadence d'acquisition en compliquant la mesure.

L'avantage principal de ce régime est la très faible largeur temporelle des impulsions qui permet de conjuguer de fortes puissances crêtes à de grandes largeurs spectrales pour exciter, en un tir unique, les cohérences sur une bande large. De plus, les faibles durées des impulsions rendent l'interaction peu sensible aux collisions, donc à la pression et à la composition du mélange. Enfin, il est possible de s'affranchir du fond non résonant, qui n'est produit que lorsqu'il y a recouvrement temporel des trois impulsions lasers, en décalant temporellement la sonde après l'excitation.

Pour permettre des mesures en un tir laser unique, T. Lang et M. Motzkus

ont proposé en 2002 de disperser temporellement l'impulsion de sonde sur quelques picosecondes, de sorte à imprimer le signal d'évolution temporel de la cohérence le long du spectre anti-Stokes, que l'on analyse avec un spectromètre. Cette méthode, appelée CPP-CARS (*chirped probe pulse*), a permis d'effectuer des mesures de température dans les flammes, en impulsion unique, à haute cadence (1-5 kHz) d'abord par l'équipe de J. Gord de l'Air Force Research Laboratory en 2009 puis dans plusieurs autres laboratoires comme celui de R. Lucht à l'université de Purdue (USA), ou de F. Grisch et B. Barviau au Coria à Rouen. Cependant, le signal CPP mesuré n'est pas aussi simple à exploiter qu'un spectre classique, et il nécessite une modélisation complexe et coûteuse en temps de calcul. Cette dernière exige notamment une très bonne connaissance du profil temporel de l'impulsion de sonde, ce qui complique son utilisation en présence de hublots épais, de fortes pressions, ou de gradients thermiques importants. Enfin, la technique ne permet pas de s'affranchir de la contribution non-résonante, car à l'inverse, elle l'exploite pour amplifier le signal utile. Elle a cependant été appliquée avec succès à plusieurs cas pratiques (flammes, sprays), et continue aujourd'hui à être exploitée et fournit des mesures robustes et précises.

Régime fs/ps

Un régime mixte, dit hybride femto-picoseconde (fs/ps-CARS), proposé par Stauffer en 2006, exploite astucieusement les propriétés des deux régimes décrits précédemment. Il consiste (i) à utiliser des impulsions femtosecondes pour l'excitation pompe-Stokes afin de bénéficier des hautes puissances crêtes et des spectres larges permettant d'exciter efficacement les cohérences sur une large bande ; (ii) puis à sonder les cohérences avec une impulsion plus longue (1-100 ps), fine spectralement de sorte à obtenir un spectre anti-Stokes bien résolu. On conserve ainsi un spectre de raies, similaire à celui qui était obtenu en nanoseconde, tout en ouvrant la mesure à la haute cadence et à la

suppression du fond non-résonant en décalant temporellement, très légèrement la sonde de l'excitation. Ce régime temporel s'est révélé très performant et a largement diffusé dans de nombreux laboratoires, dont les travaux pionniers en thermométrie menés par l'équipe de J. Gord et S. Roy (Spectral Energies). Par la suite, C.J. Kliewer et A. Bohlin ont pu effectuer en 2014 des mesures très innovantes comme la CARS ultra-large bande ($>4200 \text{ cm}^{-1}$) utilisant un Stokes supercontinuum, ou l'imagerie hyperspectrale en tir unique (CARS 2D). Ce régime représente aujourd'hui l'état de l'art international et définit un nouveau standard pour la thermométrie laser ponctuelle, sur lequel nous sommes également investis à l'ONERA depuis 2014 [6]. D'un point de vue expérimental, l'enjeu consiste à générer et combiner des impulsions lasers très différentes. Par exemple, des techniques de façonnage spectral (*4f-pulse shapers*, étalons Fabry Perot, filtres de Bragg en volume, etc.) sont utilisées pour générer, à partir d'une impulsion femtoseconde, une impulsion picoseconde ayant un profil temporel asymétrique qui optimise l'interaction CARS et minimise la génération de fond non résonnant. Dans les cas où des énergies plus importantes sont nécessaires (mesures 1D ou 2D), on peut utiliser un second laser picoseconde asservi sur l'oscillateur femtoseconde, ou un amplificateur laser placé sur un des faisceaux.

Géométries d'excitation et dimension de la mesure

Plusieurs géométries d'excitation (*Figure 5*) ont été étudiées pour obtenir une interaction CARS efficace de façon simple. Ces dernières sont également conditionnées au type de mesure souhaité.

CARS ponctuelle

La configuration historique pour l'interaction CARS utilise des faisceaux parallèles focalisés à l'aide d'une lentille, afin qu'ils ne se croisent et n'interagissent qu'au point focal de la mesure. Dans cette configuration, le

imagine  optic™

WAVEFRONT SENSORS
&
ADAPTIVE OPTICS



HIGH-POWER LASERS

ACHIEVE THE PERFECT FOCUSING



BIO IMAGING

CORRECT ABERRATIONS - IMPROVE IMAGING



EUV/X-RAYS SENSING

ACTIVE WAVEFRONT CONTROL

18 rue Charles de Gaulle
91400 Orsay, France
+33 (0) 1 64 86 15 60
contact@imagine-optic.com

signal CARS est généré dans un petit volume, de forme allongée dans la direction de propagation des lasers (volume typique $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 1\ \text{mm}$). Pour sonder une zone plus large, il faut balayer le point de mesure sur l'objet à analyser (flamme ou écoulement stationnaire ou périodique). La géométrie BOXCARS, qui permet de vérifier avec une bonne approximation l'accord de phase, consiste à superposer la sonde et le Stokes sur un même axe, de sorte à générer l'anti-Stokes quasiment confondu avec le trajet de la pompe, ce qui simplifie les alignements (après filtrage spectral). La configuration BOXCARS repliée (*folded BOXCARS*) consiste à placer la sonde sur un des sommets du carré dont pompe et Stokes forment une diagonale, et à détecter l'anti-Stokes sur le dernier sommet du carré. Cette dernière est essentiellement utilisée pour acquérir des spectres de rotation pure pour lesquels le signal à détecter se trouve très proche spectralement des fréquences pompe et sonde et doit donc être isolé plus efficacement géométriquement.

CARS 1D

Pour augmenter la dimension de la mesure, une méthode simple peut être immédiatement dérivée de la géométrie BOXCARS. Elle consiste à utiliser des lentilles cylindriques pour focaliser les faisceaux le long d'une ligne, que l'on image ensuite le long de la fente d'entrée du spectromètre. On retrouve alors sur la matrice CCD qui recueille le spectre, une image formée dans la direction horizontale du spectre, et dans la direction verticale de la coordonnée spatiale de la ligne. Un exemple de ce type de mesure obtenue par C.J. Kliewer et A. Bohlin est présenté sur la *Figure 5b* dans le cas d'une spectroscopie de rotation pure de la branche S de N_2 . Cette méthode permet donc de mesurer instantanément la température le long d'une ligne. Cependant, l'étalement de la puissance laser le long d'un spot allongé oblige à utiliser des impulsions de forte puissance pour obtenir des spectres exploitables en

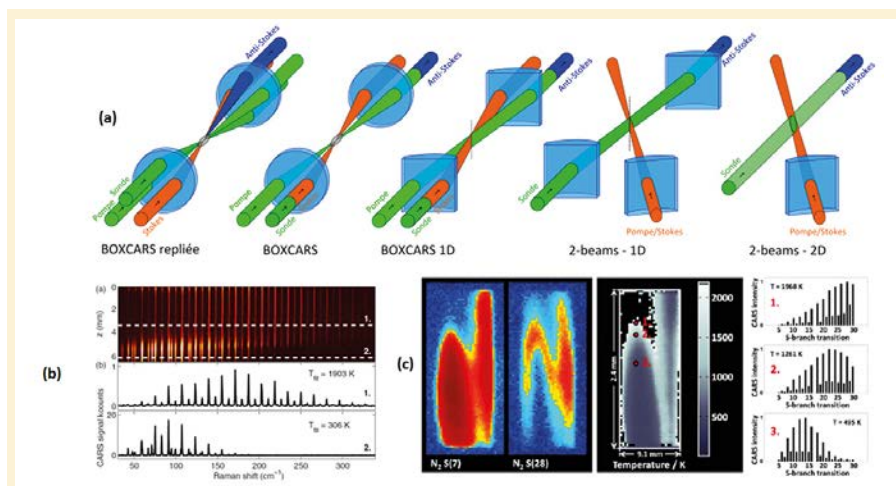


Figure 5. (a) Géométries d'interaction des faisceaux avec le milieu ; (b) CARS 1D rotationnelle en tir unique pour la mesure de température (d'après A. Bohlin et al., Proc. Combust. Inst. (2015)) ; (c) imagerie hyper spectrale en tir unique obtenue par CARS 2D sur N_2 (d'après A. Bohlin et C.J. Kliewer, J. Phys. Chem. (2014)). (b), (c) : Figures soumises au droit d'auteur et non couvertes par la licence Creative Commons.

tir unique. Par ailleurs, pour simplifier sa mise en oeuvre, les auteurs ont proposé une géométrie, appelée 2-beams CARS, qui place les faisceaux légèrement hors accord de phase en recombinaison pompe et Stokes le long d'un même trajet optique. Ils peuvent ainsi obtenir des signaux suffisamment intenses si les déplacements Raman sondés ne sont pas trop grands.

CARS 2D

Avoir accès au champ de température instantané en deux dimensions est un défi qui a été très récemment relevé. L'obtention d'images CARS hyper-spectrales en tir unique a ainsi été réalisée en exploitant astucieusement deux concepts :

- la géométrie 2-beams CARS est utilisée pour croiser un faisceau de sonde collimaté et une nappe laser pompe/Stokes afin de générer un signal anti-Stokes sur une région 2D située à l'intersection des deux ;
- la régularité de l'espacement entre les raies de rotation pure (branche S), et la finesse des raies Raman par rapport à l'écart inter-raies, laisse de nombreux pixels inutilisés dans l'intervalle entre deux raies pour imaginer une portion d'espace.

La mesure en tir unique de plusieurs composantes de la branche S

en chaque point de la région décrite précédemment, donne accès au champ de température instantané sur une région 2D de l'espace, et a été démontré en 2013 sur une région de $9 \times 24\ \text{mm}^2$ par A. Bohlin et C.J. Kliewer en régime hybride fs/ps. Cependant cette implémentation nécessite des impulsions lasers de très haute énergie et la mesure n'a pu être démontrée qu'à basse cadence (20 Hz). Une mesure du même type a par la suite été démontrée par l'équipe de S. Roy en utilisant la technologie laser *burst-pulse* pour sonder un plan à haute cadence (100 kHz) pendant un temps très court (1 ms).

Applications et perspectives

Forte de toutes les déclinaisons proposées précédemment, la CARS a été utilisée pour sonder des milieux en combustion de natures très variées, des flammes de laboratoire aux chambres de combustions simulant des moteurs aéronautiques réels : chambres haute pression (10-60 bar), à injection multi-phasique (moteur fusée cryogénique), écoulements supersoniques, etc. Le diagnostic CARS fournit également des mesures précieuses pour les études amont comme l'interaction flamme/plasma développée à des fins d'allumage ou de stabilisation. Les espèces analysées sont celles que l'on retrouve dans les réactifs ou

produits majoritaires comme N_2 , H_2 , CO_2 , H_2O , CH_4 , HCl , O_2 ...

Parmi eux, l'azote représente un bon traceur moléculaire car il est présent en abondance dans l'air utilisé comme comburant, et est le plus souvent inerte. Pour sonder des espèces minoritaires, le signal est amplifié en rapprochant les fréquences excitatrices d'une résonance à un photon. Cet effet (ERE-CARS) a été démontré par B. Trétout dans les années 80, puis récemment en régime fs/ps (FREE-CARS) par H. Stauffer, pour la mesure de température et concentration sur CH , OH , NO et C_2 .

La thermométrie laser CARS est aujourd'hui une technique avantageuse pour sonder les écoulements réactifs d'une manière non-intrusive. Ses excellentes performances ont été démontrées dans des milieux complexes où règnent des conditions sévères comme des hautes pressions et températures, des régimes hors équilibre

thermodynamique, des vitesses supersoniques et des turbulences importantes. Pour ces raisons, la technique CARS représente aujourd'hui le moyen le plus précis pour mesurer de manière non invasive la température mais l'instrumentation reste très sophistiquée. Les capacités technologiques disruptives apportées récemment par les sources lasers ultra-courtes et ultra-haute cadence ont permis d'élargir très sensiblement son potentiel à des performances nouvelles :

l'augmentation de la dimensionnalité (1D, 2D) de la mesure et l'augmentation de la cadence de plus de 3 ordres de grandeur sont aujourd'hui atteintes. On peut donc imaginer suivre des écoulements inédits ou jusqu'alors inaccessibles (propergols aluminisés) qui promettent d'ouvrir des pans de compréhension très nouveaux sur des phénomènes physiques complexes, pour lesquels les données expérimentales manquent cruellement pour permettre de valider les modèles.

POUR EN SAVOIR PLUS

- [1] D.A. Long, *Raman spectroscopy* (McGraw-Hill International Book Company, 1977)
- [2] A.C. Eckbreth, *Laser diagnostics for combustion temperature and species* (Gordon and Breach, 1996)
- [3] S.A. Druet, J.-P. Taran, CARS spectroscopy, *Progress in Quantum Electronics* (1981)
- [4] A.K. Patnaik et al., Recent advances in ultrafast-laser-based spectroscopy and imaging for reacting plasmas and flames, *Plasma Sources Science and Technology* (2017)
- [5] A. Ehn et al., Advanced laser-based techniques for gas-phase diagnostics in combustion and aerospace engineering, *Applied Spectroscopy* (2017)
- [6] M. Scherman et al., Rovibrational hybrid fs/ps CARS using a volume Bragg grating for N_2 thermometry, *Optics Letters* (2016)

La recherche prend du temps.

Pas les commandes de matériel.



Des milliers de produits en stock et une livraison en 2 jours GRATUITE*

Equiper votre labo ou vos installations de recherche doit être rapide et efficace. Chez MKS, nous avons compris cela. C'est pourquoi nous augmentons considérablement nos stocks, nous vous proposons une nouvelle expérience d'achat en ligne simplifiée et la livraison en 2 jours GRATUITE*.

L'achat de produits Newport pour votre labo vient de gagner beaucoup en facilité et en rapidité.

— **Un CHOIX plus rapide** — Trouvez plus vite avec la recherche améliorée et des filtres

— **Une LIVRAISON plus rapide** — Livraison en 2 jours GRATUITE* sur tous vos produits Newport préférés

— **Des RÉSULTATS plus rapide** — L'excellente qualité des produits et de notre support technique vous ouvre la voie du succès

Soyez réactifs avec Newport. Il n'y a pas de temps à perdre. Visitez www.newport.com dès aujourd'hui.

* Pour plus de détails et les conditions, consultez www.newport.com/free2day. S'applique uniquement aux commandes passées et livrées en Amérique du Nord et en Europe.



Pour plus d'informations sur notre marque Newport, visitez www.newport.com.



Un choix, une livraison et des résultats plus rapides.