

Nouvelles spectroscopie laser: Techniques d'absorption

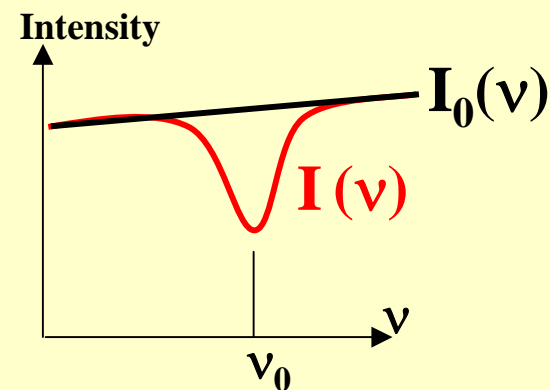
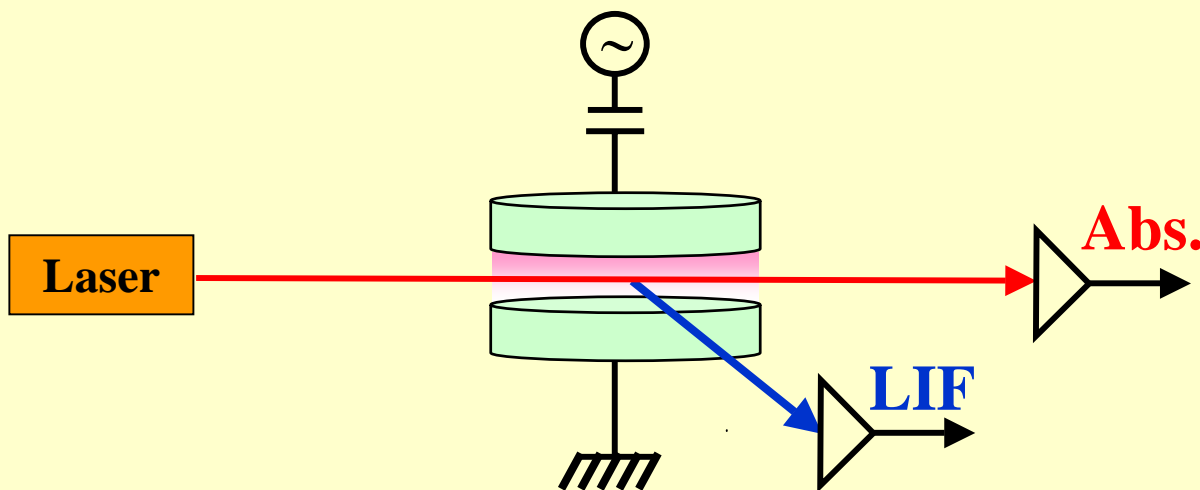
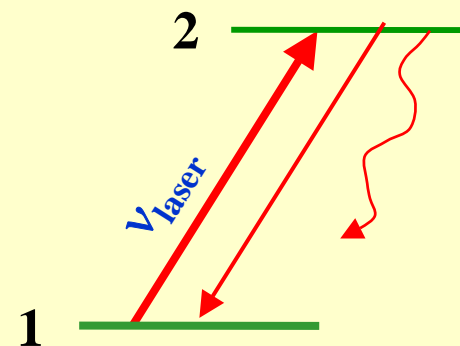
Stéphane Mazouffre et Nader Sadeghi

*ICARE, CNRS, Orléans, stephane.mazouffre@cnrs-orleans.fr
LSP, UJF Grenoble & CNRS, Nader.Sadeghi@ujf-grenoble.fr*



Spectroscopie d'Absorption Laser

La fréquence du laser est accordée sur une transition spécifique de l'atome

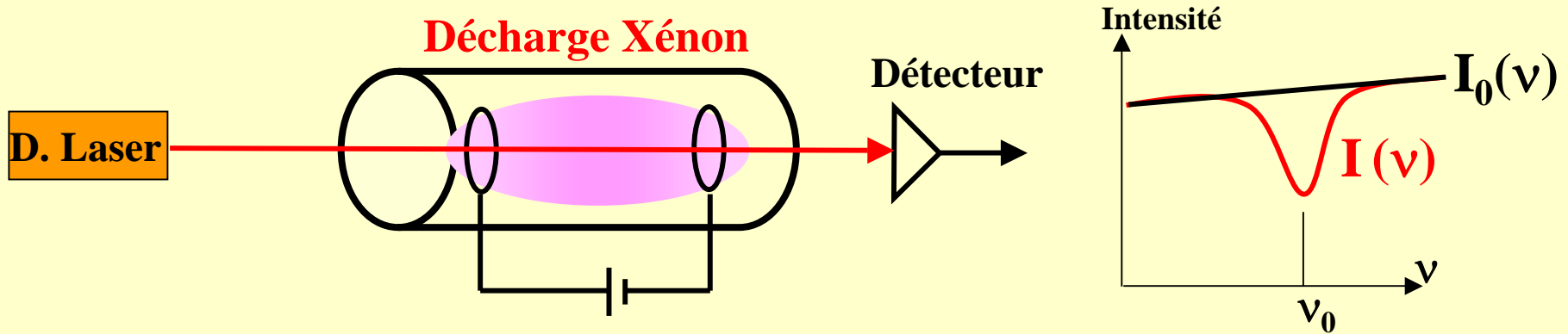


$$\ln\left(\frac{I_0(\nu)}{I(\nu)}\right) = l \cdot \alpha(\nu)$$

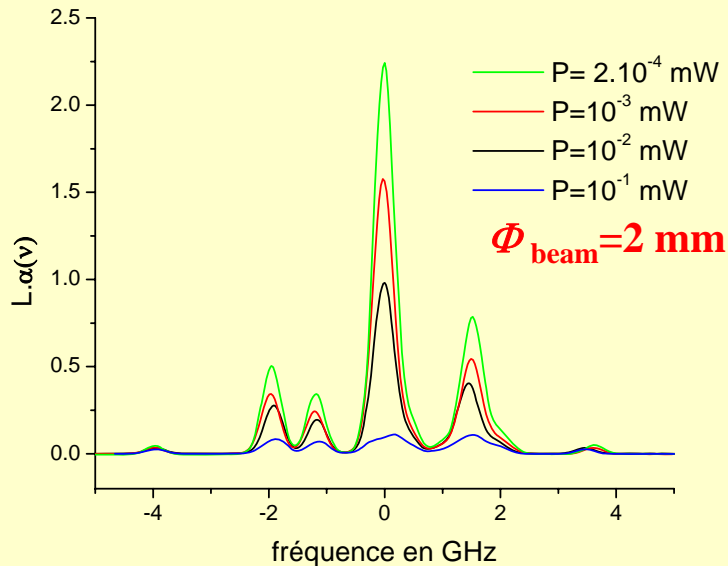
$$\alpha(\nu) = \frac{4hB_{12}}{\lambda\gamma} \left(n_1(\nu) - \frac{g_1}{g_2} n_2(\nu) \right)$$

Phénomène de Saturation Optique:

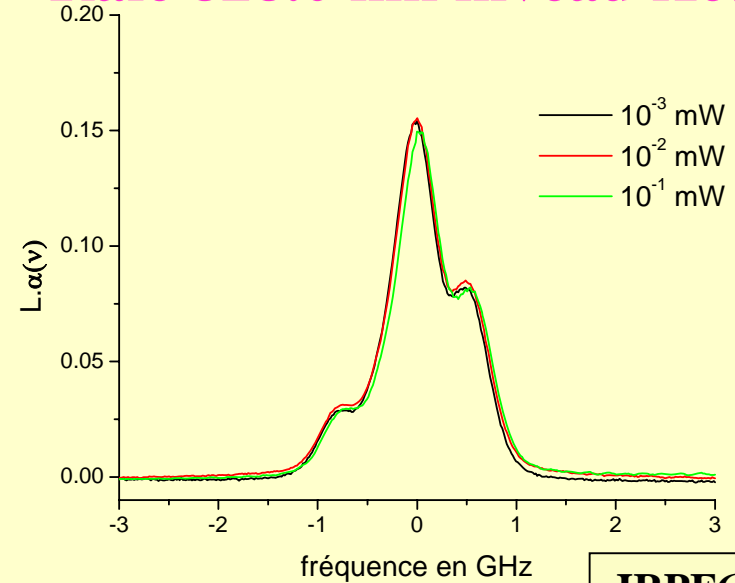
Influence de la puissance laser sur le profil de la raie et le taux d'absorption mesuré



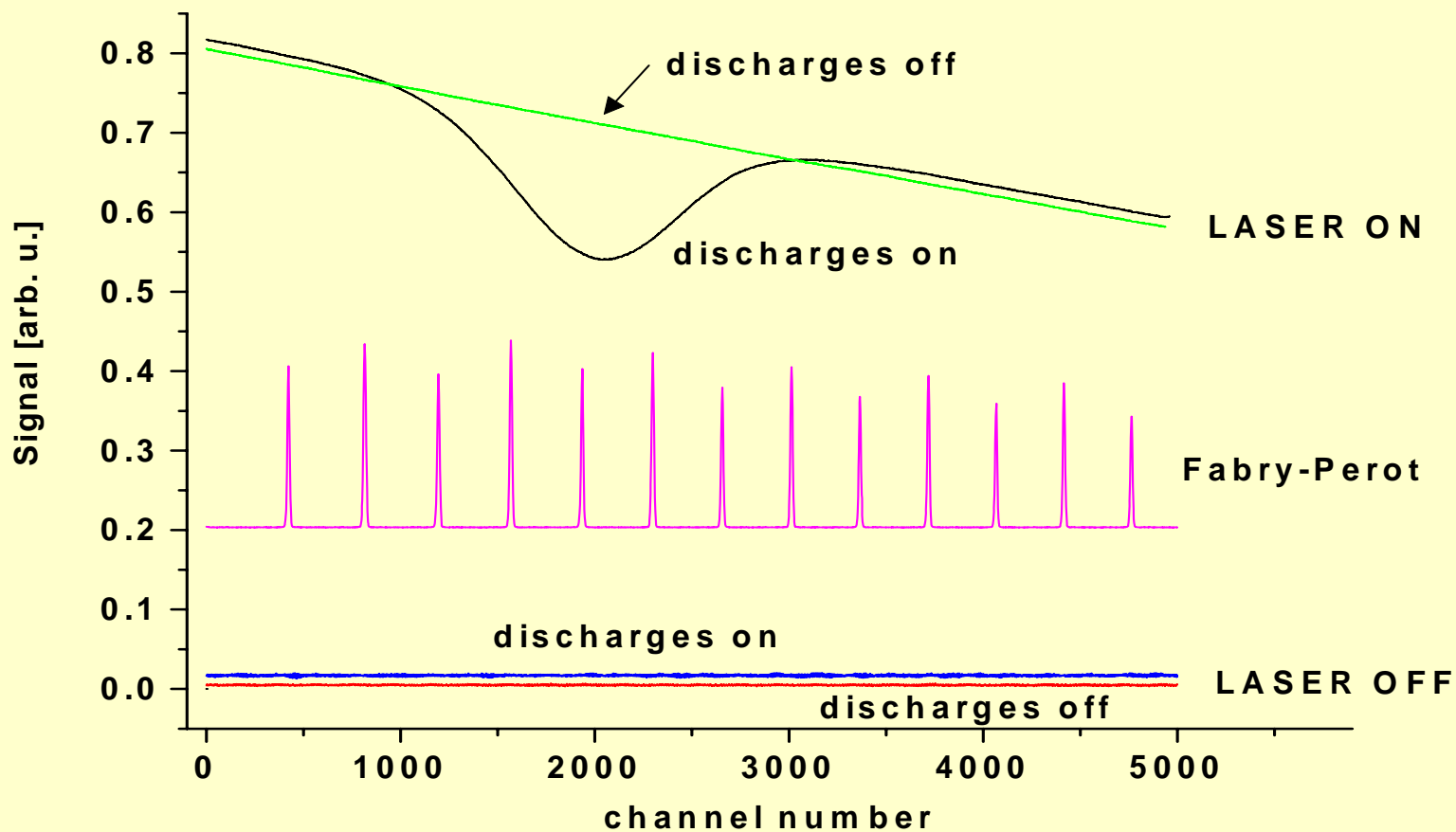
Raie 823.1 nm niveau Xe(3P_2)



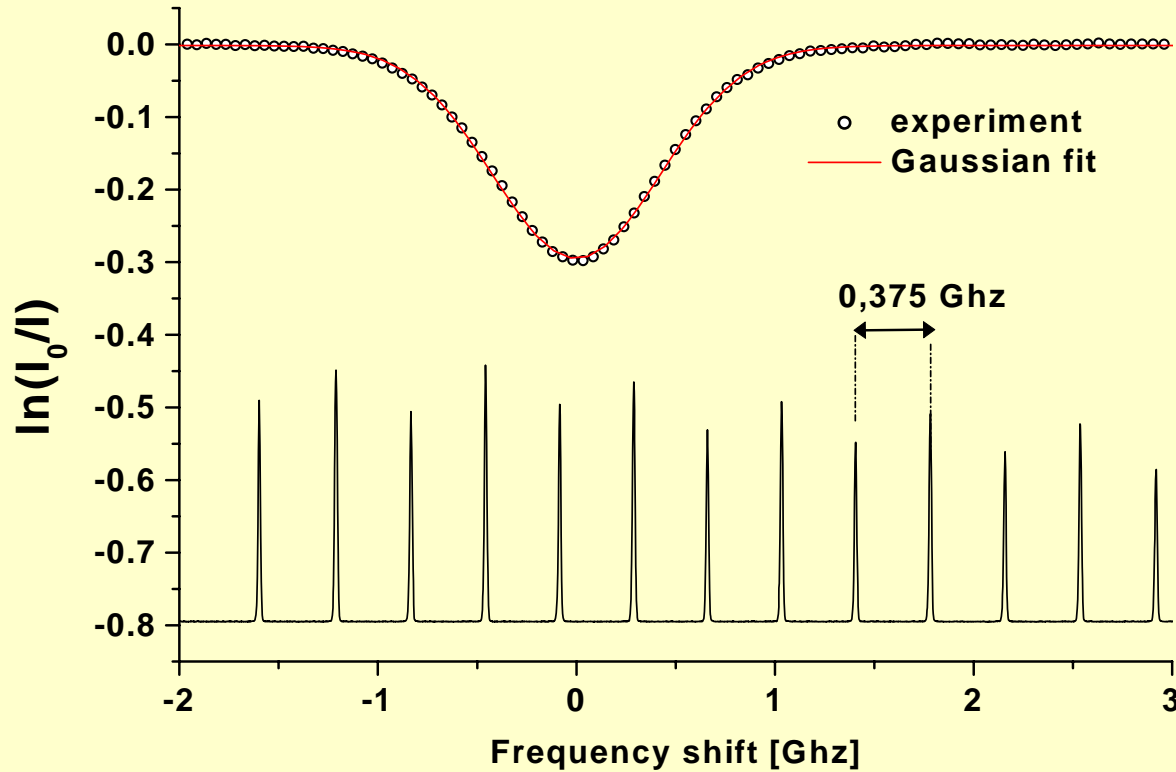
Raie 828.0 nm niveau Xe(3P_1)



Signaux enregistrés



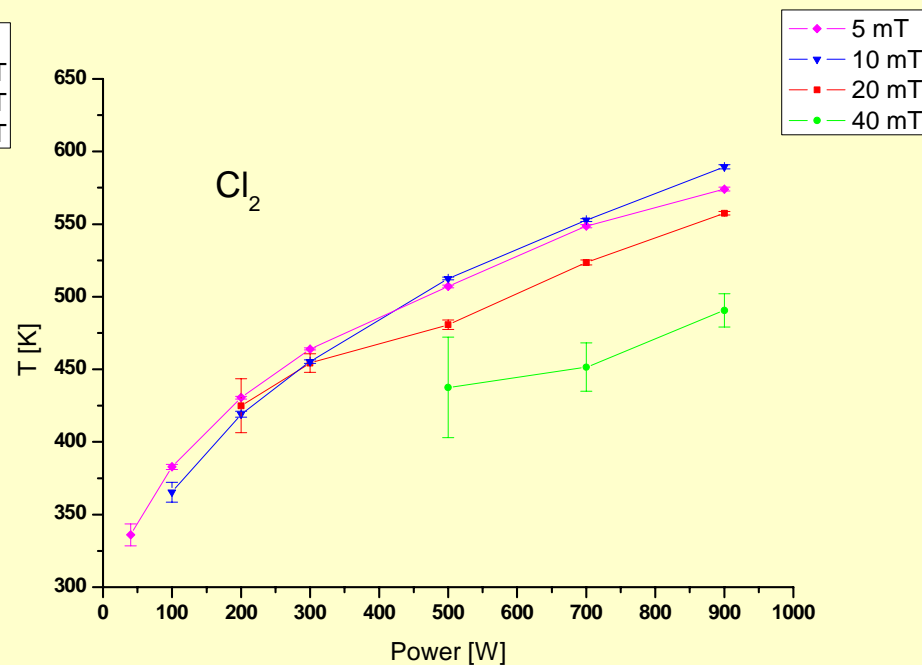
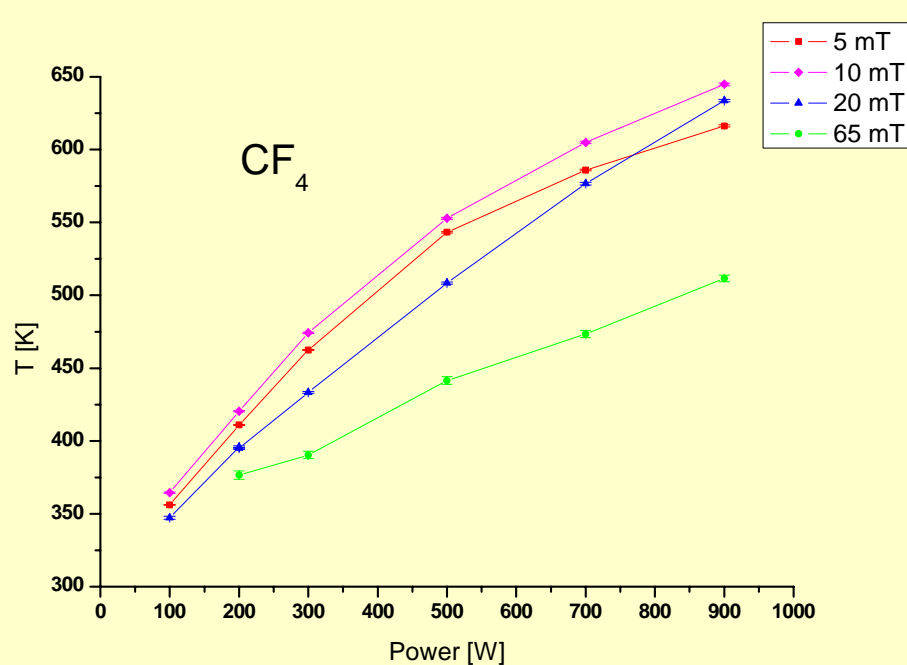
Détermination de la largeur Doppler



Largeur Doppler :
$$\delta\nu_D (\text{GHz}) = (2\nu_0 / c) \sqrt{2 \ln 2 (RT / M)} = 7.16 \cdot 10^{-16} \nu_0 \sqrt{T / M}$$

Température du gaz en fonction de la puissance RF

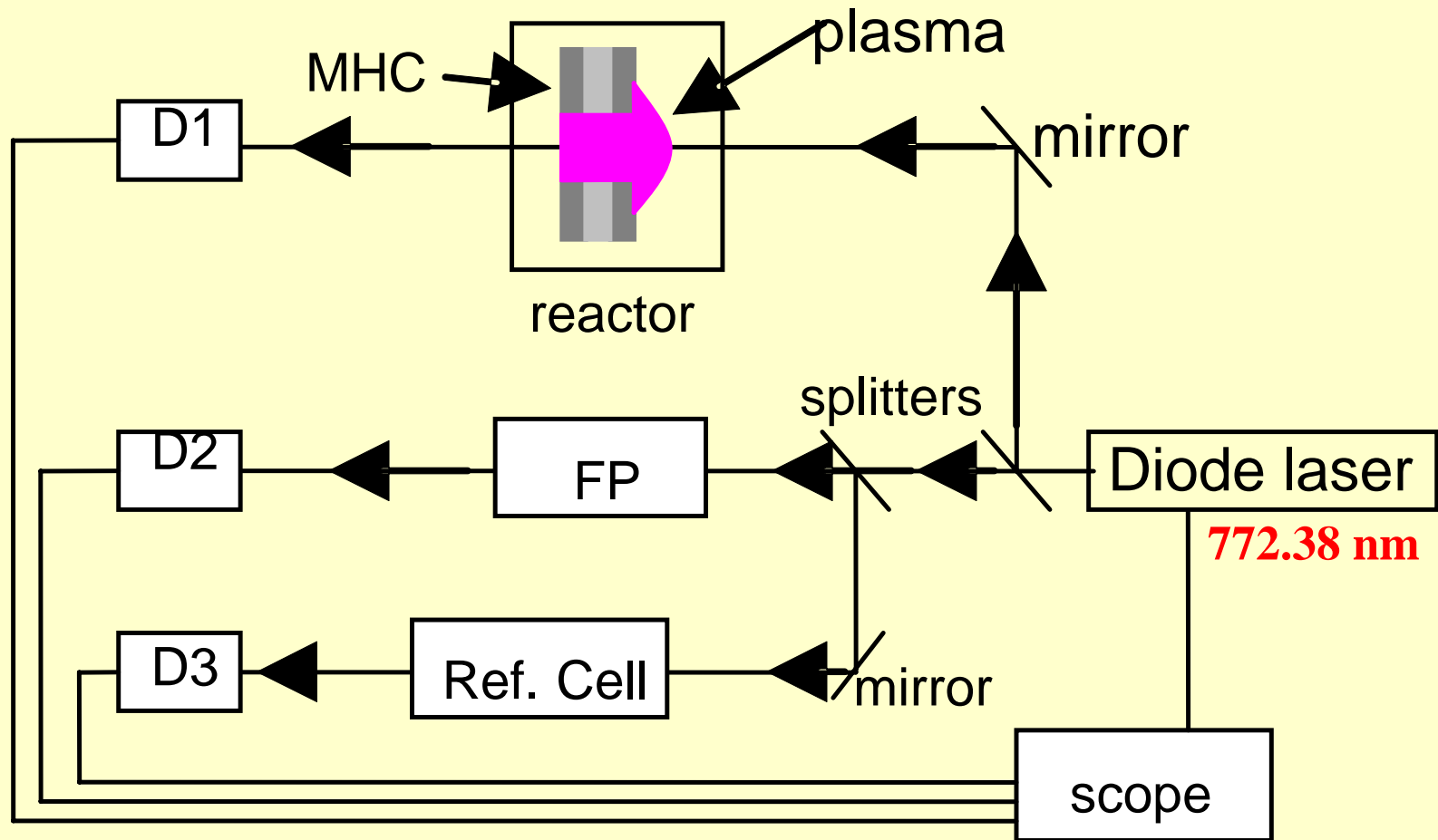
5% d'argon est ajouté au gaz pour obtenir T à partir de δv_D



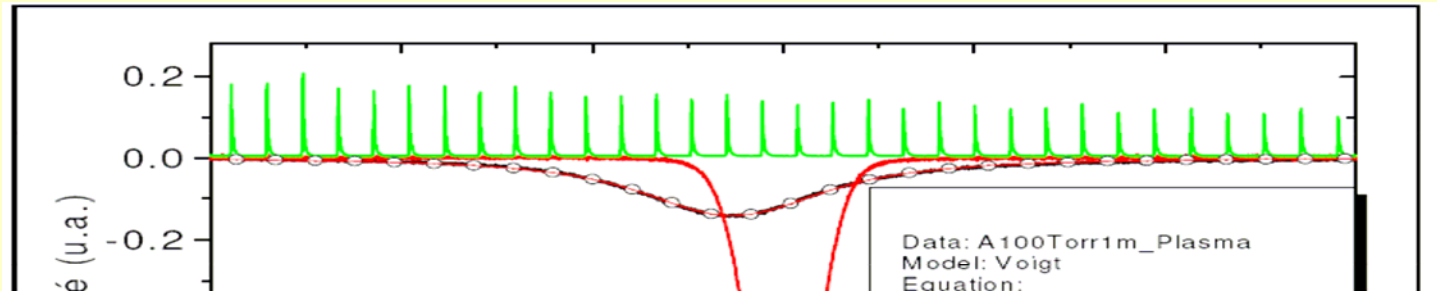
T augmente avec P_{RF} , mais dépend peu de la nature du gaz

Exemple de mesures résolues en temps

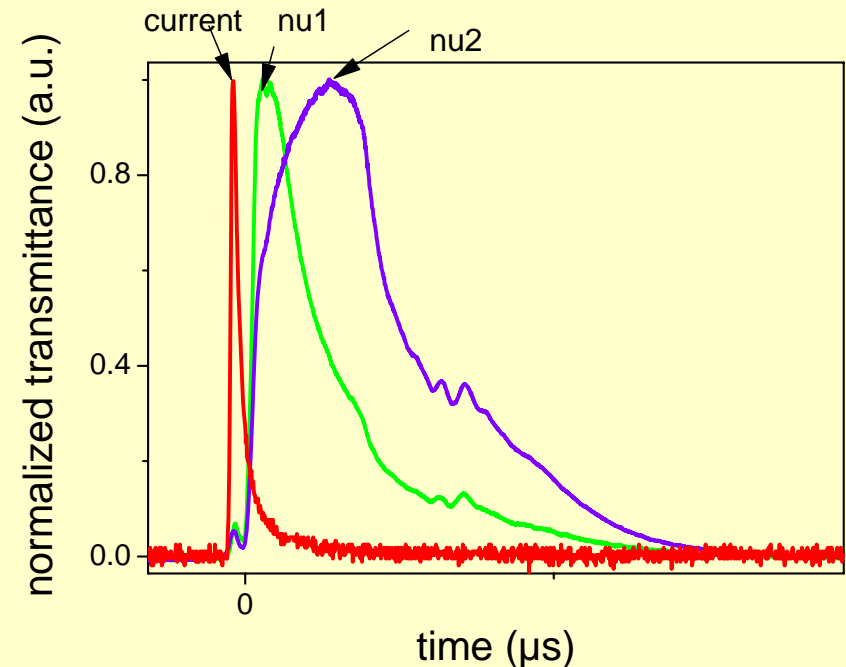
étude d'un plasma de microdécharge auto_pulsée
dans l'argon: $\phi_{\text{trou}} = 100 \mu\text{m}$; $p = 50$ à 600 Torr,



Méthode de diagnostic

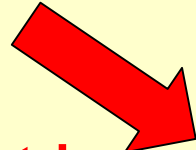
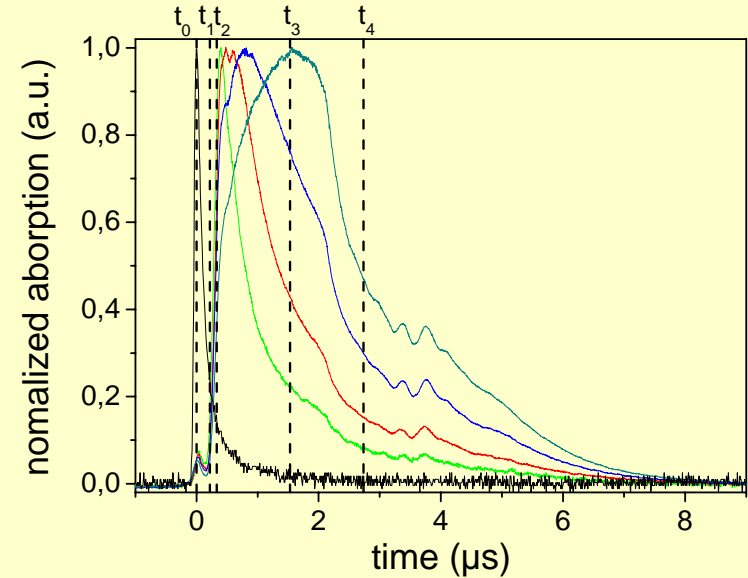


- ⇒ λ laser est fixé
- ⇒ enregistrement du signal d'absorption au cours du temps
- ⇒ λ laser est déplacée pour une nouvelle acquisition
- ⇒ spectres résolus en temps sont reconstitués (résolution en temps de 10-20 ns)



Méthode de diagnostic

| t | v1 | v2 | v3 | v4 |
|----|------|------|------|------|
| t1 | 0.45 | 0.7 | 0.9 | 1 |
| t2 | 0.5 | 0.75 | 0.95 | 1.05 |
| t3 | 0.55 | 0.8 | 1 | 1.1 |
| t4 | 0.6 | 0.85 | 1.05 | 1.15 |

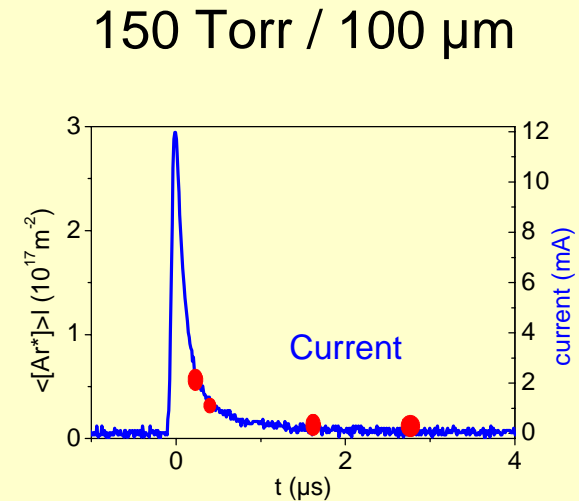
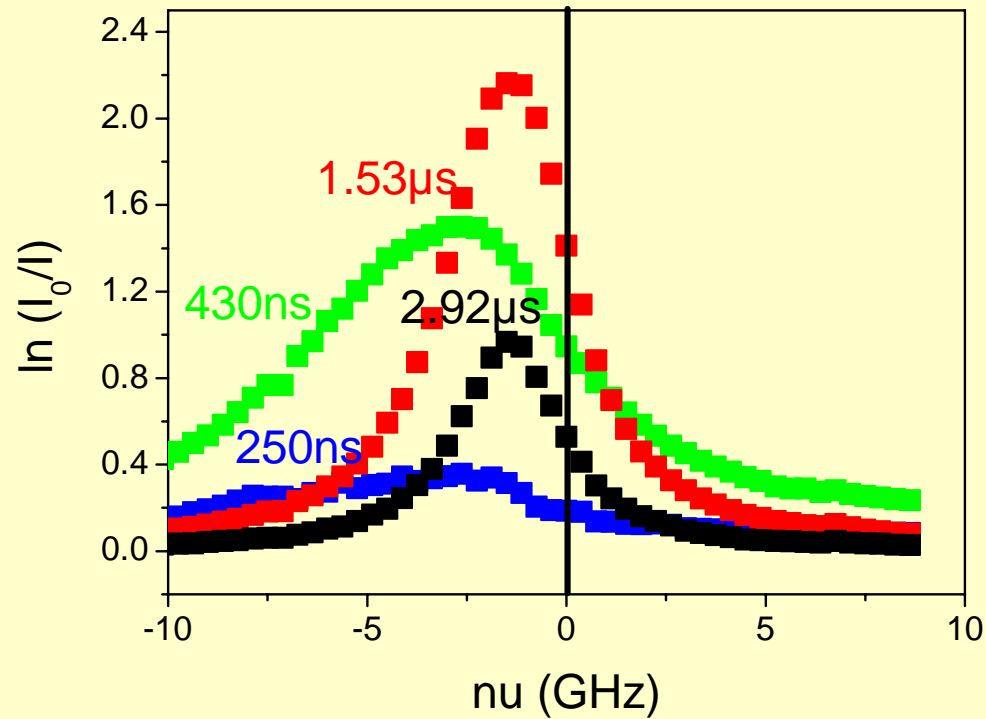


On transpose la matrice

Chaque colonne donne le spectre d'absorption à un temps donné

| t | t1 | t2 | t3 | t4 |
|----|------|------|------|------|
| v1 | 0.45 | 0.5 | 0.55 | 0.6 |
| v2 | 0.7 | 0.75 | 0.95 | 1.05 |
| v3 | 0.9 | 0.8 | 1 | 1.1 |
| v4 | 1 | 0.85 | 1.05 | 1.15 |

évolution en temps des spectres d'absorption



Loi de Beer Lambert

$$S = \int_0^{\infty} \ln \left(\frac{I(0, \nu)}{I(l, \nu)} \right) d\nu = h\nu_0 B_{lu} l \langle Ar_{metastable} \rangle$$

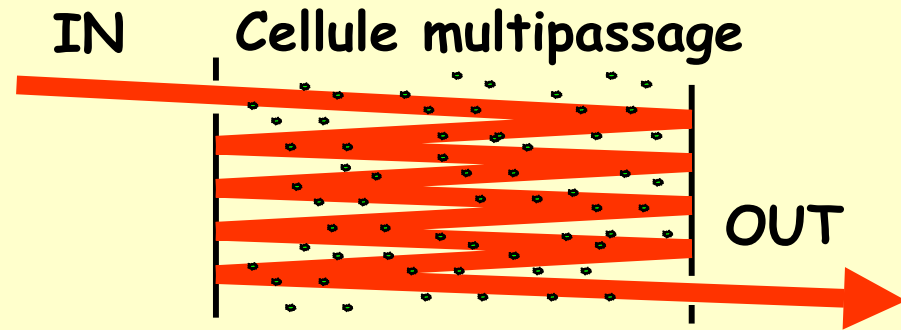
Comment peut-on augmenter la sensibilité

* en améliorant la détectivité ($\Delta I/I$):

Limité par le temps d'acquisition et la qualité de détecteur

* par passages multiple:

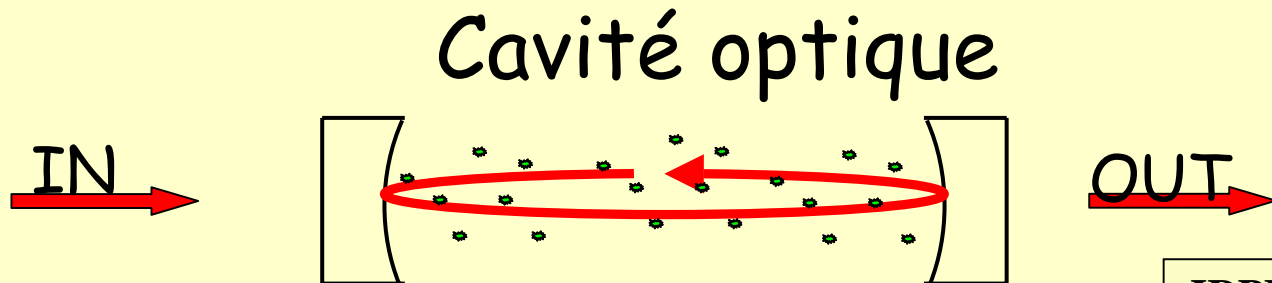
On dépasse difficilement ~ 100



* avec une cavité optique:

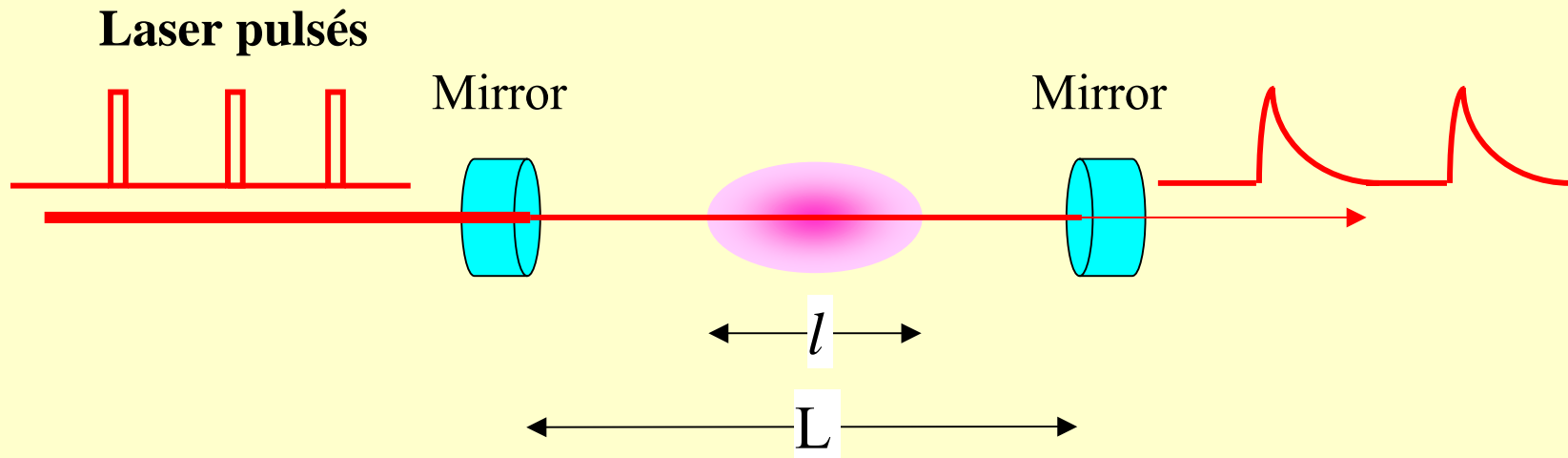
N'est efficace que si la source est un laser.

Alors on peut avoir ~ 10000 Passages



Cavity RingDown Spectroscopy (CRDS) pour mesure de densité dans les gaz et plasmas

Comment ça marche ?



La constante de décroissance de l'intensité lumineuse quittant la cavité est donnée par :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} + c \frac{l}{L} \alpha$$

Perte des miroirs Perte par absorption

Cas I – La largeur spectrale du laser est plus grande que la largeur Doppler (pas de sélection de vitesse)

Attention au problème de saturation optique:

Mais dans CRDS la puissance laser dans la cavité décroît au cours du temps

Les équations de la densité de population et de l'intensité de radiation dans la cavité s'écrivent:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\rho(t)B_{12}N(t) - RN(t) + C \quad \leftarrow \text{Source de peuplement}$$

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = -\left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{l}{L}c\alpha(N(t))\right)\rho(t)$$

Quand les mesures par CRDS pulsé sont-elles validées ?

Le taux de pompage optique $\ll 1/\tau_0$ de RingDown

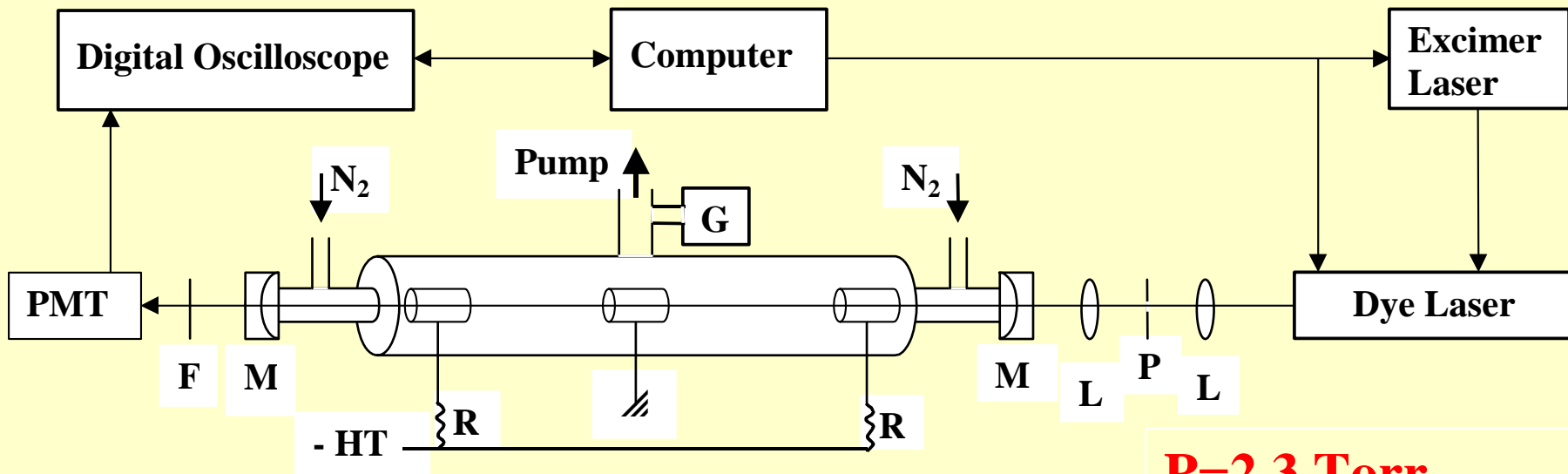
$$\rho(\nu) B_{12} \ll 1/\tau$$

OU

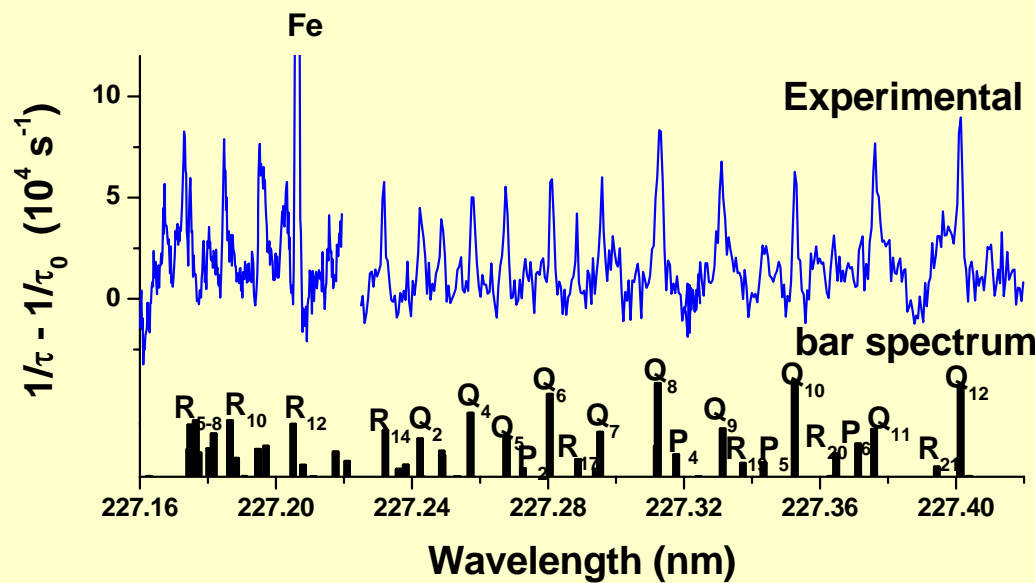
Le taux de pompage optique \ll le taux de renouvellement de population

$$\rho(\nu) B_{12} \ll R_1 \text{ and } R_2$$

Example: Detection of N_2 ($X, v''=18$) par CRDS à 227 nm: N_2 ($a^1\Pi_g; v'=8 \leftarrow X^1\Sigma_g; v''=18$)



P=2.3 Torr,
 $I_{\text{discharge}}=100 \text{ mA}$



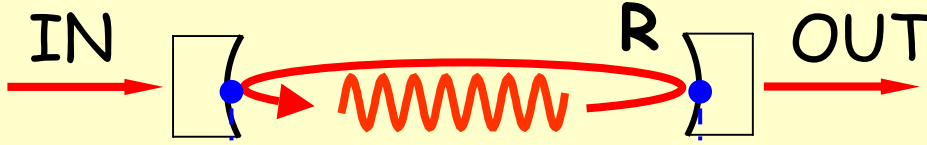
N_2 ($X, v''=18$) \cong 1% de N_2

**Cas II – Laser monomode
spectralement plus fin que la largeur
Doppler (sélection d'une classe de vitesse)**

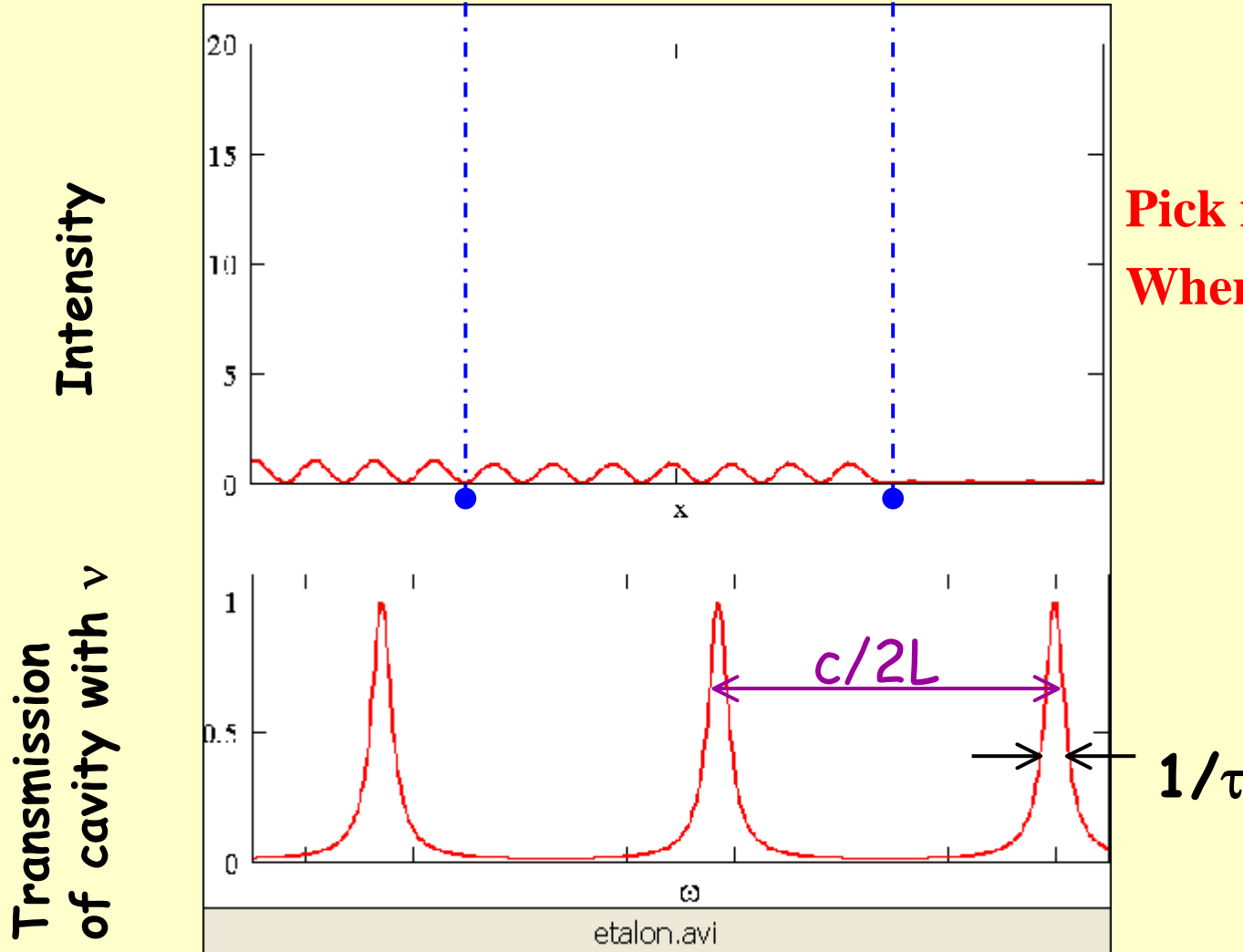
Problème:

**Comment faire entrer le faisceau laser dans la
cavité**

Comment agit une cavité optique (Fabry-Perot)

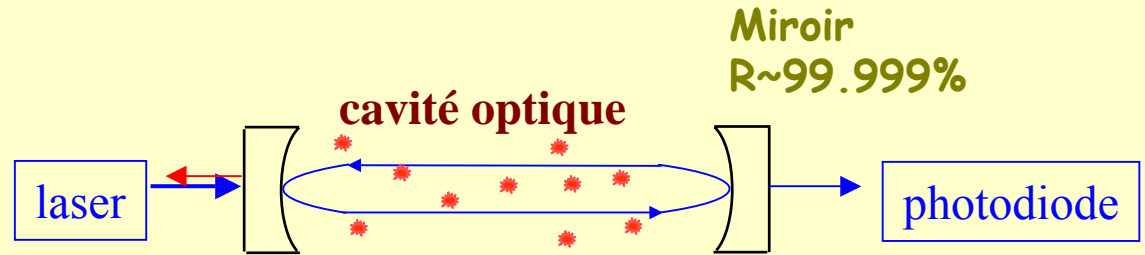


**Pick in Transmission
When $L = n \lambda/2$**

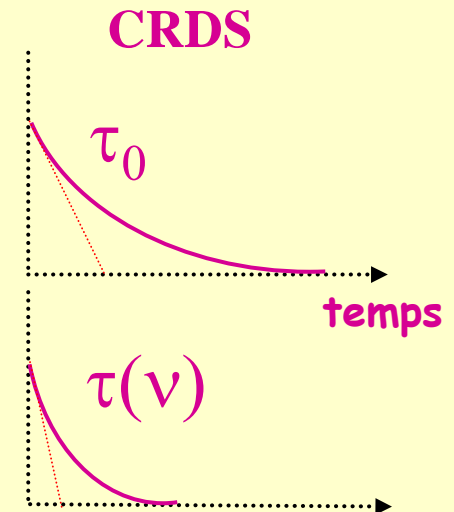
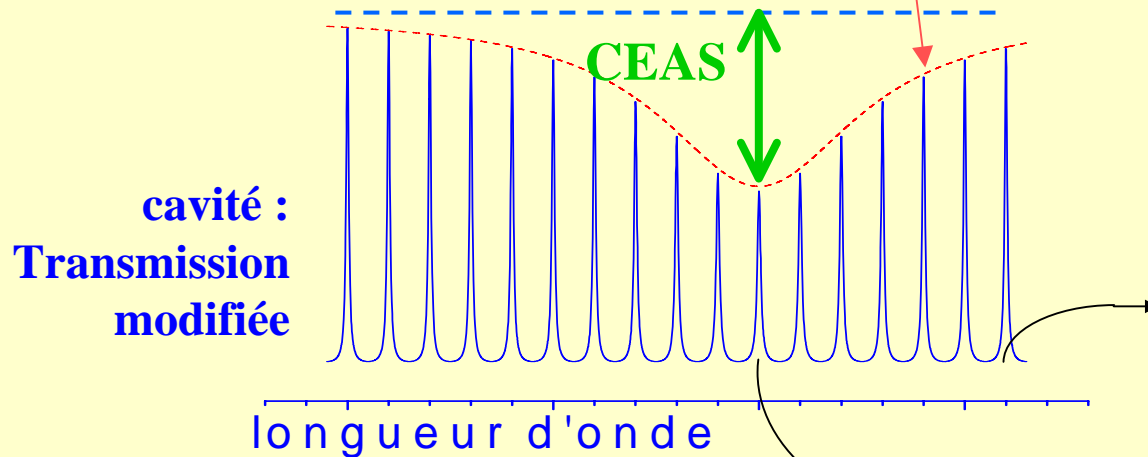


Les cavités et la Spectroscopie...

CRDS & Cavity Enhanced

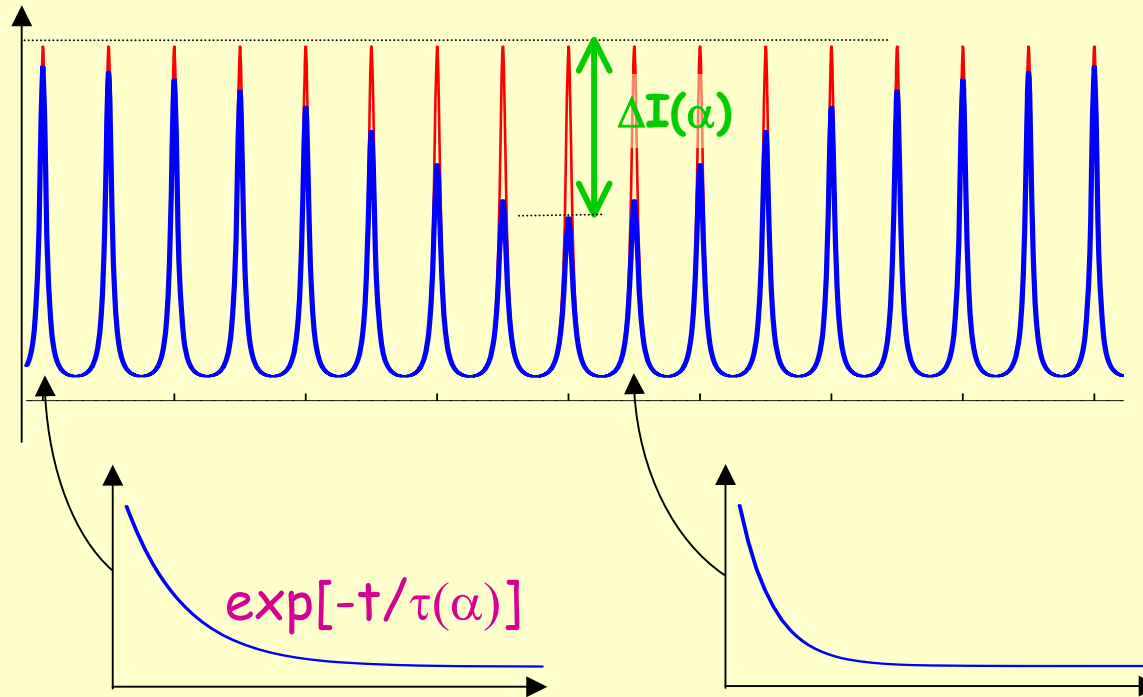


Cavity Enhanced Absorption Sp.



Cavity Ring-Down Spectroscopy

CRDS & Cavity Enhanced



Transmission
de la cavité
AVEC
et
SANS
échantillon

CRDS : $1/\tau = (A+T) c/L + \alpha(\nu) c$

(mesure « absolue » !!)

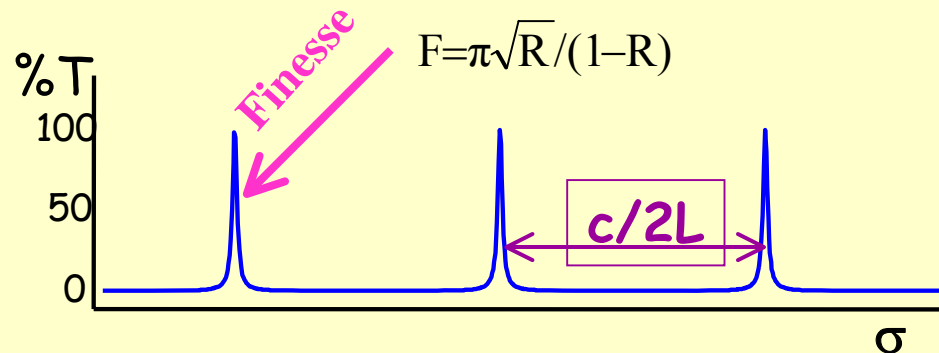
CES : $\Delta I/I = [1 - R \cdot e^{-\alpha(\nu) L}]^{-2}$
 $\sim F \times \alpha(\nu) L$

(mesure de $\tau \Rightarrow$ finesse F)
NOTE : $F > 10\,000$!

Est-il possible de faire de l'absorption large-bande et avoir un grand nombre de passages ?

Si une source étendue est utilisée

- 1 - Avec une cellule de White: seulement 10-20 passages
- 2- Avec une cavité optique: seulement une faible partie de la lumière sera utilisée:

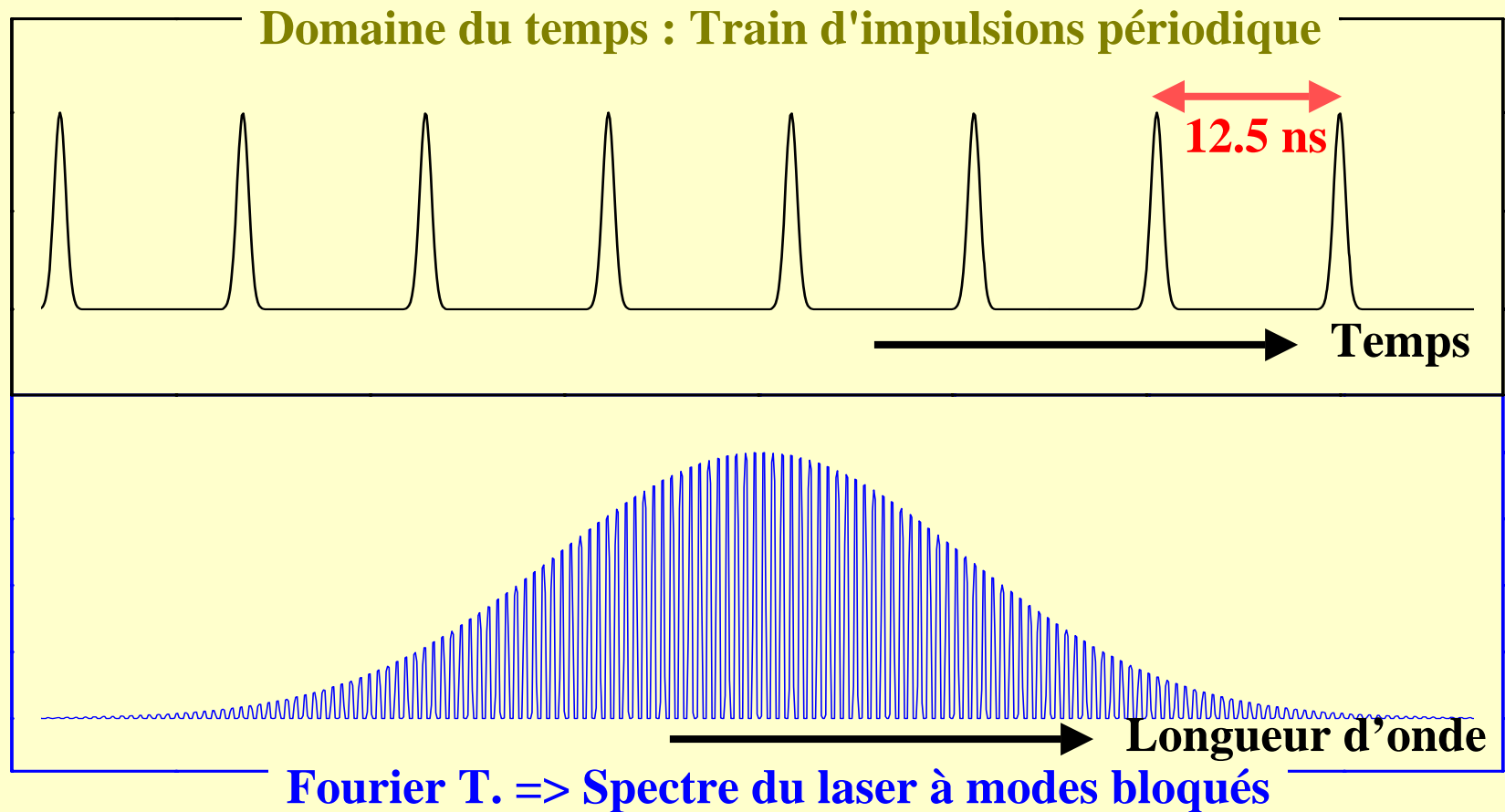


$$I_{transmise} = I_0 / F_{inesse}$$

La solution miracle ?

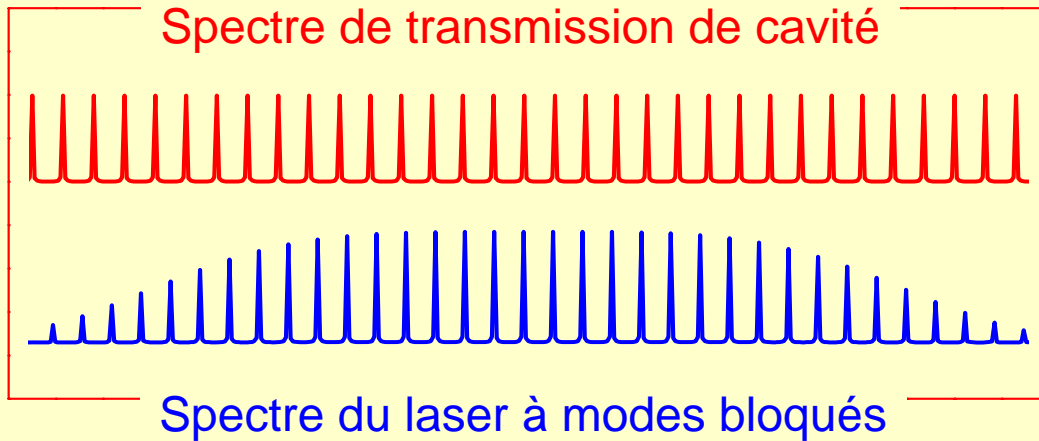
Utiliser un laser femtoseconde à blocage de modes comme source de lumière

Spectre d'émission d'un laser à blocage de modes



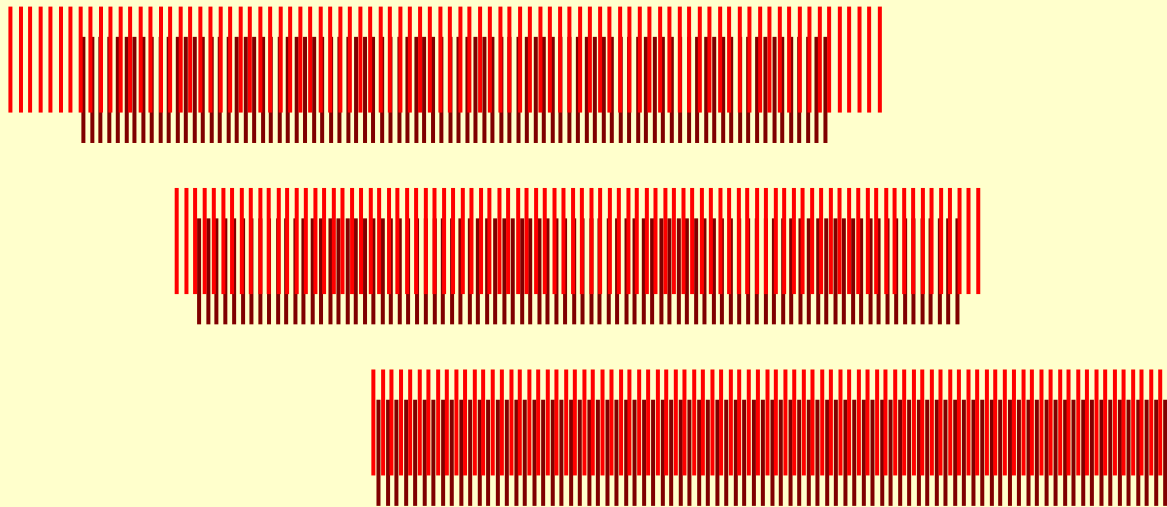
Dans un laser Sa-Ti, le spectre émis est formé par $\sim 10^5$ modes, séparés par 80 MHz (~ 0.1 pm)

CEAS avec laser à blocage de modes: principe



Le spectre transmis par la cavité dépend de l'accord de ces deux peignes de modes :

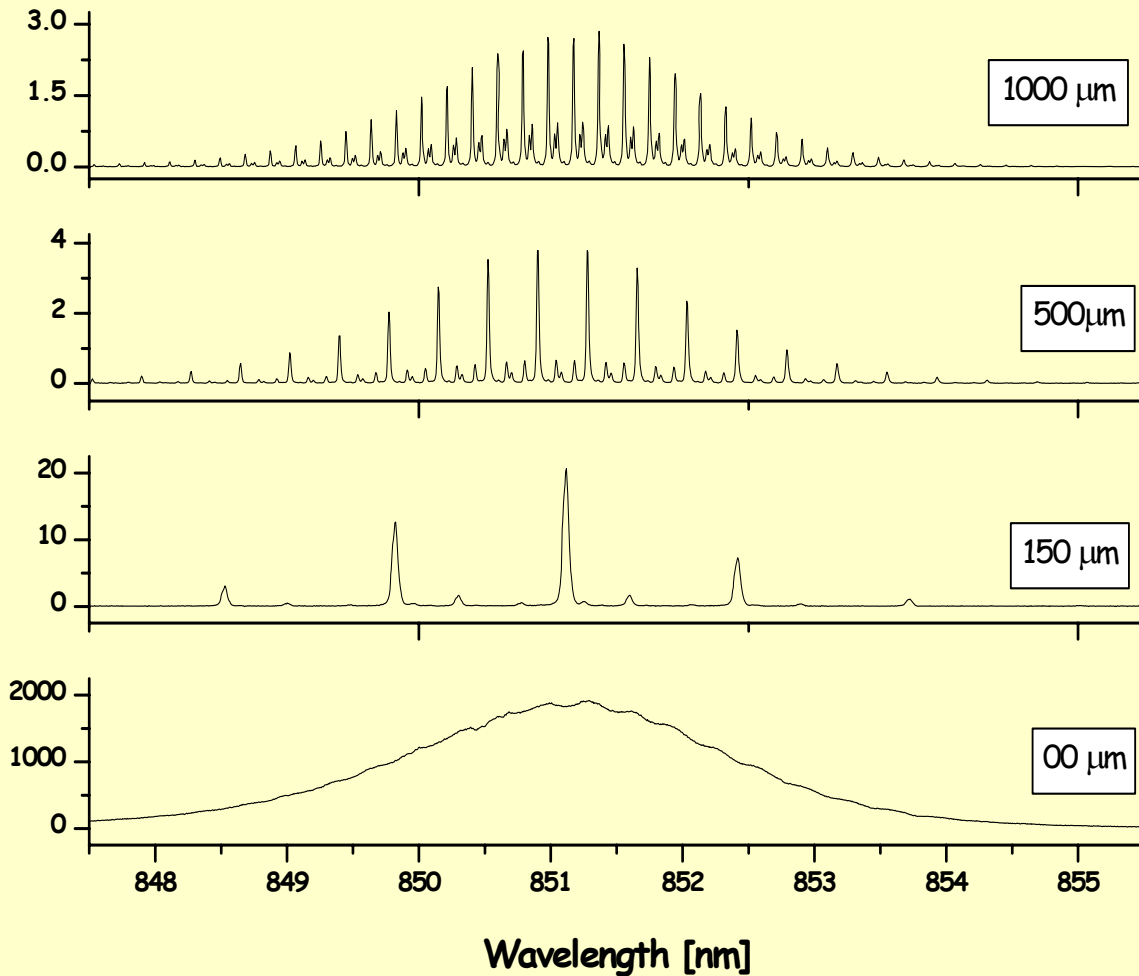
en modifiant la longueur de la cavité, nous avons observé des battements de différents périodes...



Quand les peignes sont accordés le spectre laser est transmis sans battements !

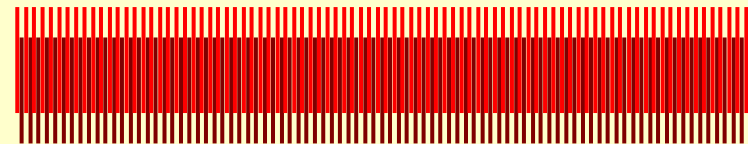
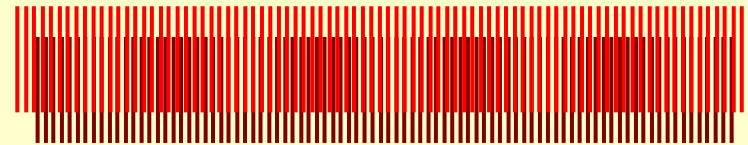
$$\text{Spectre Transmis} = T_{\text{cav}} * \text{spectre laser}$$

Battements entre les peignes...

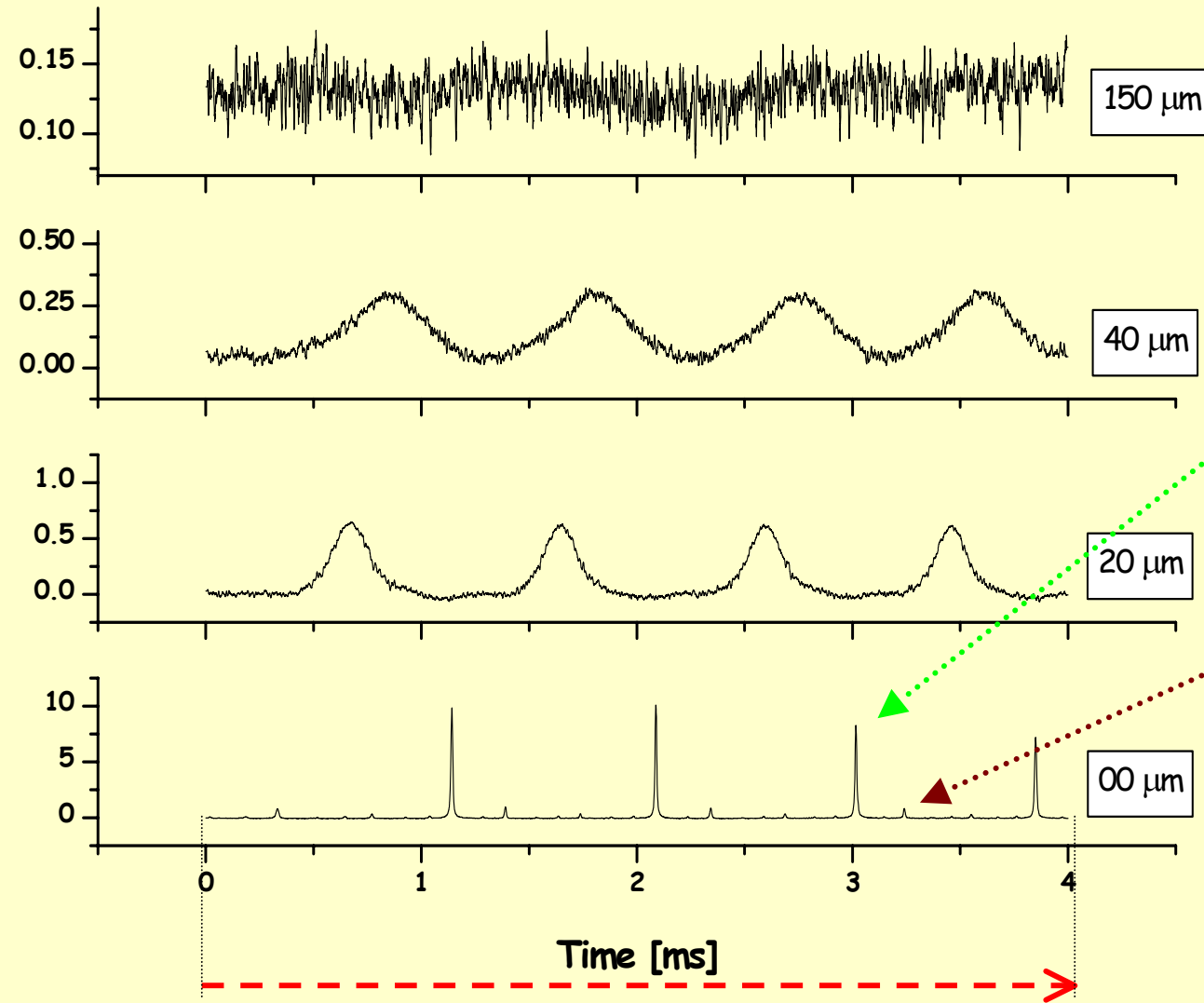


Spectres transmis pour différents déplacements de la cavité du “point magique”.

(Les pics mineurs viennent de l’excitation de modes transverses...)



Et quand on module la cavité...



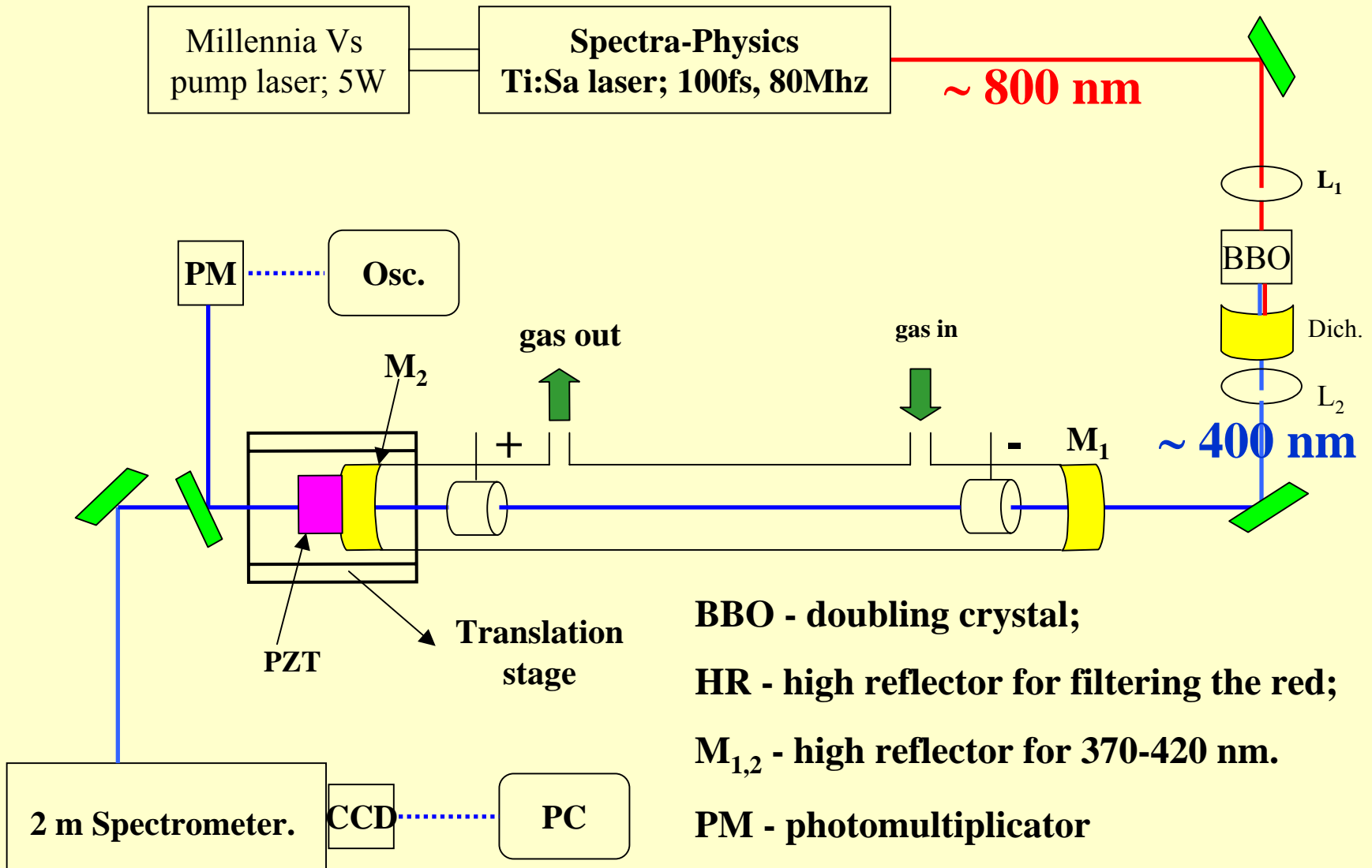
Intensité totale transmise
(photodiode+oscillo.)
pendant que la longueur
de la cavité est balayé
(PZT)

Seulement près du point
magique les modes
résonnent tous
ensemble et donnent des
pics étroits

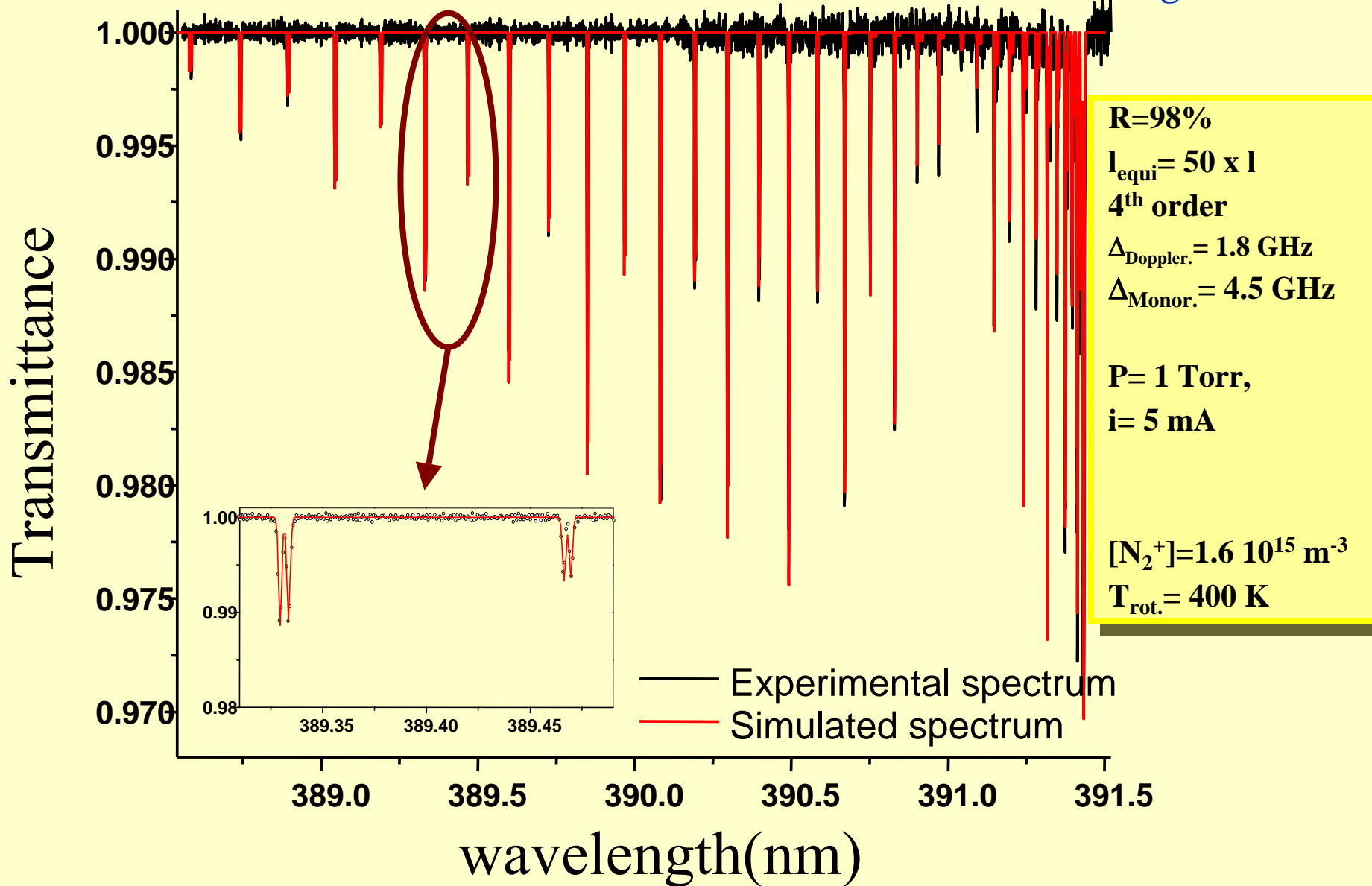
(Les pics mineurs
viennent de l'excitation de
modes transverses...)

Balayage PZT sur 4 periodes de la cavité

Montage Expérimental



Absorption par des ions d'azote $N_2^+(B\ ^2\Sigma_u^+ - X\ ^2\Sigma_g^+ ; 0-0)$



Conclusion :

- ↳ Spectroscopie d'absorption avec un laser monomode balayable
Permet de déduire le profil de la raie (T_g , p , n_e) et la densité.
- ↳ Avec CRDS ou CEAS, et des miroirs de très haute réflectivité, la longueur d'absorption peut être multipliée par 10000.
- ↳ Spectroscopie d'absorption avec un laser Femtosecond comme source est une technique robuste ayant une haute sensibilité.
- ↳ Le domaine d'application du laser Ti:Sa laser (0.7 - 1 μm) peut facilement être étendu pour couvrir la gamme 0.2 to 0.5 nm par le doublage, triplement ou quadruplement de la fréquence
- ↳ Il est également envisageable d'utiliser la source femtoseconde avec une cellule de White, sans introduire le milieu absorbant dans une cavité optique.

Équipement commun du Réseau Plasmas Froids

"Système Laser à Diode"

acquis sur les crédits MRCT – CORTECH

Responsables : Nader Sadeghi (LSP, Grenoble), dépositaire

Stéphane Mazouffre (Aérothermique, Orléans)

Matériel: lasers avec cavité externe du type Littrow
fournissant qqs 10 mW continus dans une largeur spectrale
d'environ 10 MHz ($\cong 10^{-5}$ nm)

Fournisseur: TOPTICA, représenté par OLI

DL déjà acquis par RPF

- 2 Électroniques de commande (Sys DL 100/19)
- 6 Têtes laser:
 - 396 – 399 nm; 10 mW; 20 GHz (ssm) Ti
 - 652 – 662 nm; 30 mW; 20 GHz (ssm) H*
 - 770 – 780 nm; 30 mW; 30 GHz (ssm) Ar*, O*
 - DFB 772 nm; 30 mW; 30 GHz (ssm)
 - 1059 – 1090 nm; 30 mW; 15 GHz (ssm) He*, N₂*
 - DFB 1083 nm; 30 mW; 15 GHz (ssm)

Matériels d'accompagnement:

- 1 Barreau en verre de 10 cm avec faces parallèles polies pour servir d'étalon Fabry-Perot ayant un intervalle spectral libre de l'ordre de 1 GHz
- 1 Lambdamètre devant permettre la mesure de longueur d'onde avec une précision de 3 pm. L'injection par une fibre optique monomode pose actuellement quelques problème.
- 2 photodiodes; $\cong 1\text{V}/\mu\text{W}$; 10 kHz
- Système d'injection dans la fibre
- Isolateur Optique
- Déplacements μ _controlé