

PROPOSITION DE SUJET DE THESE

Intitulé : Etude de stratégies de mesures par LIF femtoseconde d'espèces gazeuses atomiques et moléculaires.

Référence : **PHY-DPHY-2023-20**
(à rappeler dans toute correspondance)

Début de la thèse : 01/10/2023

Date limite de candidature : 31/05/ 2023

Mots clés

Laser femtoseconde, excitation multiphotonique, fluorescence, spectroscopie atomique et moléculaire

Profil et compétences recherchées

Master Recherche 2 et/ou Ecole d'Ingénieur.

Interaction laser-matière, optique, spectroscopie atomique et moléculaire

Présentation du projet doctoral, contexte et objectif

Depuis une dizaine d'années, les sources laser impulsives femtosecondes ont été introduites dans les laboratoires de recherche pour des diagnostics par fluorescence induite par laser (LIF) en milieux gazeux de combustion ou de plasmas. Elles permettent de bénéficier de puissances crêtes élevées alors que les énergies sont réduites, de larges bandes spectrales et de fréquences de répétition élevées. Ces principales propriétés sont attractives pour une excitation multiphotonique ou une excitation multiplexe (plusieurs espèces sont excitées simultanément). La fréquence de répétition élevée permet d'acquérir un grand nombre de mesures résolues temporellement sur un temps très court. Plusieurs équipes ont publié leurs travaux sur la technique LIF-fs par absorption à 2 photons appliquée aux atomes H [1], O [2], N [3], à la molécule CO [4,5] dont les raies d'absorption sont situées dans le domaine de l'UV lointain.

Actuellement, encore peu d'espèces gazeuses ont été sondées par LIF-fs. Il nous semble intéressant d'élargir la mesure LIF-fs sur des espèces chimiques qui sont conventionnellement sondées en LIF à 1 photon en régime nanoseconde mais en choisissant astucieusement les transitions d'excitation. Il s'agit de tirer le meilleur profit des avantages apportés par des impulsions ultrabrèves et large bande spectrale ainsi que des caractéristiques propres aux sources laser femtoseconde (laser très robuste, fréquence de répétition élevée, stable en énergie tir à tir, large plage d'accord en longueurs d'onde).

L'unité Source Laser et Métrologie du département de Physique de l'ONERA va prochainement s'équiper d'une nouvelle source laser femtoseconde accordable en longueur d'onde. Ce projet d'investissement s'inscrit dans la contribution active de l'ONERA au développement de l'avion « zéro émission » à hydrogène soutenu par les industriels du secteur de l'aéronautique et le gouvernement français. Ce laser sera dédié à la mise en œuvre de la technique LIF-fs pour déterminer ses atouts et ses défauts par rapport à la LIF en régime nanoseconde que nous utilisons habituellement pour réaliser des diagnostics optiques en écoulements gazeux réactifs. On peut en effet s'attendre à une meilleure sensibilité de la mesure par rapport à la LIF-ns classique en raison de la puissance crête élevée des pulses fs et de la plus faible perturbation du milieu avec des énergies plus faibles (domaine des microjoules).

Le projet de thèse portera sur le développement de la technique LIF-fs et à haute cadence (domaine des kHz) en cohérence avec la stratégie scientifique de développement de techniques de spectroscopie laser ultrabrèves et rapides de notre laboratoire pour répondre aux besoins de caractérisations des écoulements multiphysiques instationnaires.

La démarche expérimentale et théorique qui est proposée dans cette thèse est de commencer par étudier la fluorescence laser dans le régime temporel femtoseconde en l'appliquant à des atomes en continuité de nos études menées depuis une dizaine d'années sur la spectroscopie atomique. Plus particulièrement, on s'intéresse aux atomes métalliques comme Al et Na pour la caractérisation de la combustion de propergols solides. Il s'agira de définir des stratégies d'excitation laser à 2 photons et de détection de la fluorescence en se basant sur les données spectroscopiques de ces atomes. L'atome Na est un bon candidat pour démarrer l'étude LIF-fs à deux photons car ses propriétés spectroscopiques sont relativement bien connues et disponibles dans la littérature. Or, la description théorique du processus LIF en régime femtoseconde impose un formalisme plus complexe que le modèle classique qui est basé sur les équations décrivant la variation dans le temps des populations des états

électroniques ne prenant pas en compte les effets de cohérence induits par des pulses fs. Ce travail sur la formulation théorique de la LIF à 2 photons en régime fs en l'appliquant en premier lieu au cas de l'atome Na a déjà été initié au cours d'un stage de fin d'études 2022 et sera poursuivi dans le cadre de la thèse.

Il faudra également considérer les conditions environnementales (de combustion, plasmas) auxquelles ces espèces seraient soumises dans les applications futures de la métrologie LIF en régime femtoseconde. Les espèces gazeuses qui pourront être ciblées dans ce projet de thèse sont les atomes déjà cités (Na, Al), et la molécule NO dont la détection in situ par LIF est recherchée pour diagnostiquer la formation des émissions polluantes NOx dans les combustions hydrogène – air.

Le travail de recherche du (de la) doctorant(e) comportera un volet théorique avec l'élaboration d'un modèle semi-classique de l'interaction atome-photon mise en jeu dans le processus de fluorescence laser destiné à prédire la variation des populations des niveaux d'énergie au cours du temps, et un volet expérimental avec des expériences en laboratoire sur des cas tests expérimentaux qui seront à concevoir afin de réaliser des mesures de fluorescence par excitation fs.

[1] W.D. Kulatilaka, J.R. Gord, V.R. Katta, and S. Roy, *Photolytic free-femtosecond two-photon fluorescence imaging of atomic hydrogen*, Opt. Lett. **37** (15) 3051-3053 (2012).

[2] K. Arafat Rahman, V. Athmanathan, M. N. Slipchenko, S. Roy, J.R. Gord, Z. Zhang, and T.R. Meyer, *Quantitative femtosecond, two-photon laser-induced fluorescence of atomic oxygen in high-pressure flames*, Appl. Opt. **58** (8), 1984-1990 (2019)

[3] C. Dumitrache, A. Galland, G.-D Stancu, C. Laux, Femtosecond two-photon absorption laser induced fluorescence (fs-TALIF) imaging of atomic nitrogen in nanosecond repetitive discharges, AIAA Scitech 2019 forum, 7-11 January, San Diego, California.

[4] D. Richardson, S. Roy, and J. R. Gord, *Femtosecond, two-photon of carbon monoxide in flames*, Opt. Lett. **42** (4), 875-878 (2017).

[5] B. Li, X. Li, D. Zhang, Q. Gao, and Z. Li, *Comprehensive CO detection in flames using femtosecond two-photon laser-induced fluorescence*, Opt. Express **25** (21), 25809-25818 (2017).

Collaborations envisagées INSA Rouen, PC2A Université de Lille, EM2C Centrale Supelec

Laboratoire d'accueil à l'ONERA

Département : Physique, Instrumentation, Environnement, Espace

Lieu (centre ONERA) : Palaiseau

Contact : Gautier Vilmart, Nelly Dorval (DPHY/SLM)

Email : gautier.vilmart@onera.fr, nelly.dorval@onera.fr

Directeur de thèse

Nom : Christophe Laux

Laboratoire : EM2C, CentraleSupelec

Email : christophe.laux@centralesupelec.fr

Pour plus d'informations : <https://www.onera.fr/rejoindre-onera/la-formation-par-la-recherche>