

This document was produced  
by scanning the original publication.

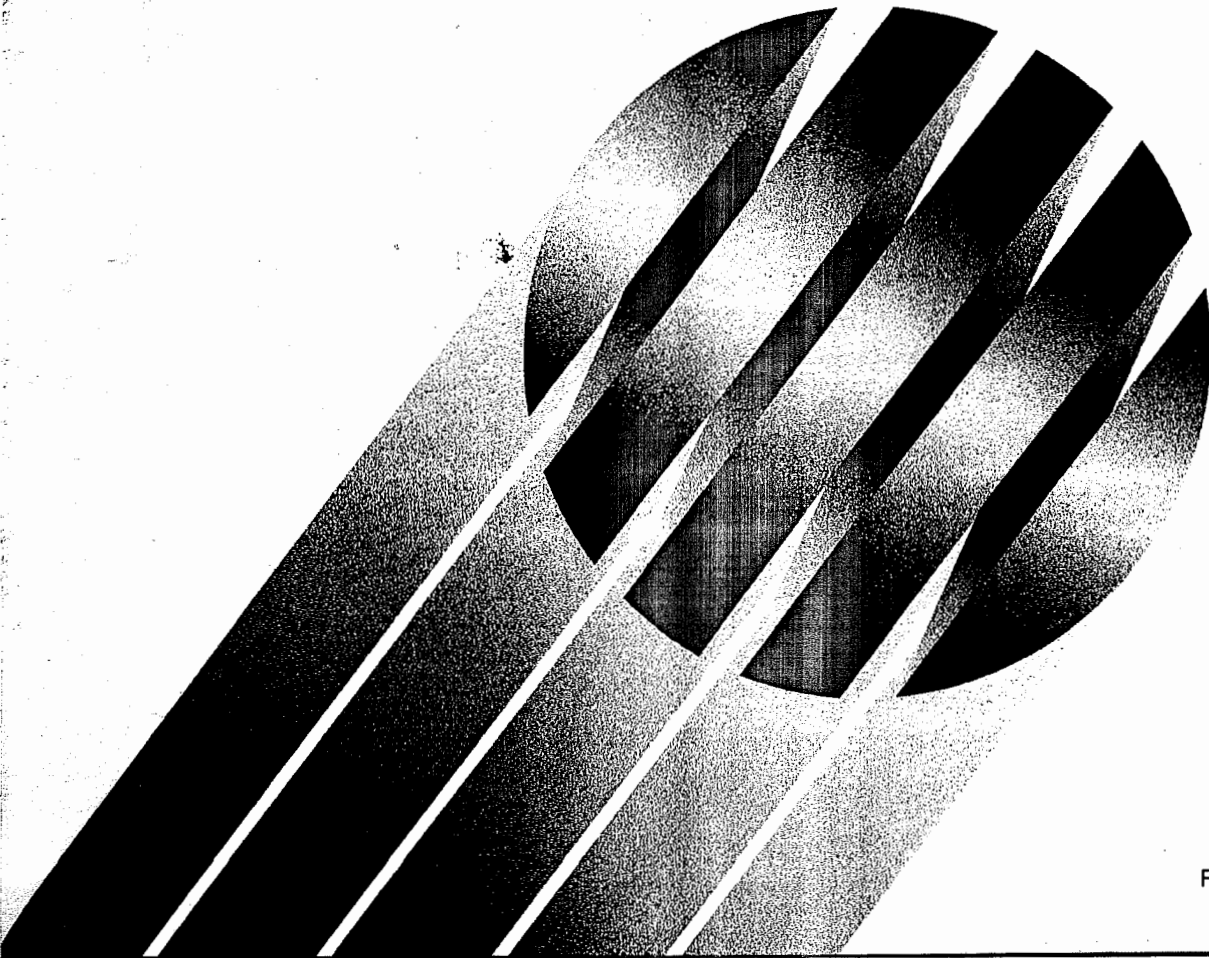
Ce document est le produit d'une  
numérisation par balayage  
de la publication originale.

# CANMET

---

## **Système de diagnostic optique pour la mesure des températures et des concentrations des espèces dans les gaz**

P.M. Hughes et T. Parameswaran



RAPPORT CANMET 87-5F



Énergie, Mines et  
Ressources Canada

Energy, Mines and  
Resources Canada

Canada

**L'ÉNERGIE DE NOS RESSOURCES - NOTRE FORCE CRÉATRICE**

**THE ENERGY OF OUR RESOURCES - THE POWER OF OUR IDEAS**

27

**SYSTÈME DE DIAGNOSTIC OPTIQUE POUR LA  
MESURE DES TEMPÉRATURES ET DES  
CONCENTRATIONS DES ESPÈCES DANS LES GAZ**

P.M. HUGHES ET T. PARAMESWARAN

*Programme de recherche énergétique*

*LABORATOIRES DE RECHERCHE ÉNERGÉTIQUE  
RAPPORT CANMET 87-5F*

*Mars 1986*

© Ministre des Approvisionnements et Services Canada 1990

En vente au Canada par l'entremise des  
Librairies associées  
et autres libraires

ou par la poste auprès du

Centre d'édition du gouvernement du Canada  
Approvisionnement et Services Canada  
Ottawa (Canada) K1A 0S9

N° de catalogue M38-13/87-5F  
ISBN 0-660-93095-1

# SYSTÈME DE DIAGNOSTIC OPTIQUE POUR LA MESURE DES TEMPÉRATURES ET DES CONCENTRATION DES ESPÈCES DANS LES GAS

P.M. Hugues\* et T. Parameswaran\*\*

## Résumé

Une technique qui porte le nom de "Coherent Anti-stokes Raman Spectroscopy" (CARS) (Spectroscopie Raman cohérente anti-stokes) a été mise au point au Laboratoire de recherche sur la combustion et la carbonisation des Laboratoires de recherche sur l'énergie du CANMET, pour mesurer la température et la concentration spécifique. L'un des avantages que possède cette technique par rapport aux méthodes classiques d'échantillonnage est une résolution spatiale et temporelle améliorée; la technique est aussi non intrusif et les paramètres de la turbulence peuvent être déterminés. La théorie sur laquelle est basée une telle technique et quelques-unes des considérations pratiques du dispositif optique sont examinées dans le présent rapport. Afin d'appliquer cette technique avec succès, il a fallu développer des logiciels et des arrangements optiques et électroniques. Leur incorporation et celle des appareils optiques dans le système CARS est également étudiée dans le rapport ainsi que la théorie permettant d'appliquer cette technique.

---

\*Chercheur scientifique, Laboratoire de recherche sur la combustion et la carbonisation, Laboratoires de recherche sur l'énergie, CANMET, Énergie, Mines et Ressources Canada, Ottawa, K1A 0G1.

\*\*Adjudicataire du contrat de recherche, Roy Ball Associates, Ottawa, Ontario.

## TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ .....	iii
INTRODUCTION .....	1
OPTIQUES DE SOURCE .....	3
OPTIQUES DE DÉTECTION .....	4
MÉTHODE DE MESURE .....	5
TRANSMISSION DES DONNÉES .....	7
SYSTÈME DE GESTION DE FICHIERS .....	7
Fichiers de données en série .....	8
Fichiers de données en parallèle .....	8
RÉDUCTION DES DONNÉES .....	9
ANALYSE DES DONNÉES .....	13
ALGORITHMES D'ANALYSE RAPIDE .....	14
AFFICHAGE DES DONNÉES .....	15
CONCLUSIONS .....	16
AMÉLIORATIONS PRÉVUES DU SYSTÈME .....	16
BIBLIOGRAPHIE .....	17

## TABLEAUX

1. Caractéristiques du réseau holographique .....	19
---	----

## FIGURES

1. Schéma de production d'un signal Raman anti-Stokes cohérent .....	19
2. Montage optique d'une expérience de spectroscopie CARS .....	20
3. Positions relatives des faisceaux CARS, de pompage et Stokes .....	21
4. Schéma du spectromètre à réseau holographique .....	22
5. Effet de la température sur le profil spectral du signal CARS pour les transitions vibrationnelles pures (Q-branch) de l'azote .....	23
6. Variation du spectre CARS du CO en fonction de la concentration .....	24
7. Paramètres des algorithmes d'ajustement rapide .....	25
8. Variation des paramètres d'ajustement rapide en fonction de la température .....	26
9. Exemple de figure produite par le logiciel d'affichage .....	27

## INTRODUCTION

Avec l'invention de sources de lumière cohérente à haute énergie, comme le laser, un nouvel outil a pu être mis à la disposition des chercheurs qui travaillent sur les champs d'écoulement gazeux. À l'aide du laser, il est possible d'effectuer des mesures spectrographiques de diffusion et d'absorption dans un gaz avec une résolution spatiale et temporelle élevée. De nombreuses techniques de détermination des températures ou des concentrations des espèces dans des mélanges gazeux, basées sur l'utilisation du laser, ont été décrites à l'aide d'une multitude de diagrammes de niveaux d'énergie. Une description plus détaillée de ces techniques est présentée dans d'autres ouvrages (1, 2, 3, 4).

Le présent rapport traite d'une technique particulière appelée "spectroscopie Raman anti-Stokes cohérente" ou spectroscopie CARS. La spectroscopie CARS a donné une meilleure résolution spatiale et temporelle que les autres techniques non perturbatrices (5, 6, 7). Elle est basée sur la focalisation conjointe de deux faisceaux laser en un point de la section d'essai (Fig. 1). Au point d'intersection, une interaction à trois photons, dont deux sont à la fréquence de pompage et l'autre à la fréquence Stokes, produit un faisceau cohérent à la fréquence anti-Stokes. Cette dernière dépend à la fois de la fréquence Stokes et de la fréquence de pompage. Les champs laser réagissent par le biais de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre des espèces à l'étude pour induire une polarisation qui donne un rayonnement à la fréquence CARS. Ce rayonnement émerge de la section d'essai sous forme d'un faisceau de type laser étroit, de sorte qu'il est possible de capter en entier le signal émis. Comme il appartient à la branche anti-Stokes de la fréquence de pompage, le signal capté est exempt d'interférences dues à la fluorescence. Par conséquent, le rapport signal/bruit dans les expériences de spectroscopie CARS est beaucoup plus élevé que celui des autres techniques de diffusion existantes.

Dans les méthodes classiques de mesure des températures et des concentrations des espèces, il faut qu'une sonde soit insérée au point d'essai dans le champ de mesure. C'est pourquoi ces méthodes sont qualifiées de perturbatrices. Soit qu'on extrait un échantillon du mélange en réaction au point d'essai pour fins d'analyse, soit qu'on étudie l'effet des gaz sur l'extrémité de la sonde. La présence même de la sonde dans le champ de mesure provoque une perturbation du champ d'écoulement qui influe sur les processus de mélange. Dans un écoulement en réaction, cette perturbation peut se traduire par des changements de la composition chimique et de la température au voisinage de la sonde. Dans les méthodes perturbatrices, il faut protéger la sonde au moyen d'une chemise de refroidissement. Il en résulte qu'une certaine quantité de chaleur est extraite de la flamme, ce qui perturbe davantage le champ de température. Ces perturbations des champs de température et de vitesse ainsi que des processus de mélange peuvent entraîner des erreurs importantes dans les mesures. Ces erreurs, combinées aux erreurs inhérentes à la technique de mesure peuvent se traduire par des différences importantes entre la valeur mesurée et la valeur réelle (8, 9). De plus, en raison des limites de la technique de mesure perturbatrice, les valeurs mesurées sont habituellement limitées aux grandeurs dont la moyenne est établie en fonction du temps.

Il y a lieu de mentionner quelques-unes des techniques optiques classiques de mesure des températures et des concentrations des espèces. La technique d'inversion de raie a d'abord été utilisée pour mesurer la température d'une flamme par Kurlbaum en 1902 (10). Des modifications

mineures ont été apportées à cette technique afin d'y incorporer du matériel de pointe, mais la méthode de base reste la même. Les méthodes d'inversion de raie sont basées sur l'optique de la ligne de visée, de sorte que seule la température moyenne suivant la ligne passant par la flamme est mesurée. De plus, étant donnée la façon dont la mesure est effectuée, ces techniques ont une faible résolution temporelle et elles ne peuvent pas être appliquées aux flammes turbulentes. Les différentes techniques de diffusion Raman sont susceptibles de présenter le même problème (1, 3, 11). Un laser pulsé est utilisé pour effectuer les mesures, de sorte qu'une haute résolution temporelle est possible. Toutefois, le signal mesuré est incohérent et il est produit sur la pleine longueur du faisceau laser dans la section d'essai. Avec cette technique, l'amélioration de la résolution spatiale ne peut être obtenue qu'aux dépens du rapport signal/bruit.

La technique CARS est supérieure aux méthodes perturbatrices et aux méthodes optiques classiques. Les expériences de spectroscopie CARS dans lesquelles la densité de puissance des lasers est maintenue au-dessous du niveau correspondant à la décomposition des gaz sont non perturbatrices. Étant donnée la nature cohérente des lasers, une résolution spatiale de l'ordre de 1,0 mm par 100,0  $\mu\text{m}$  est facilement réalisable. De plus, comme le faisceau mesuré émerge sous forme d'un faisceau de type laser collimé, tout le signal produit peut être capté, ce qui accroît le rapport signal/bruit. En choisissant judicieusement les longueurs d'ondes des deux faisceaux laser, on peut renforcer par résonance le signal mesuré. Ce facteur combiné à d'autres améliorations du montage utilisé en spectroscopie CARS permettent d'obtenir une efficacité de production de signal un million de fois supérieure à celle des expériences de diffusion Raman. Dans les mesures par spectroscopie CARS, on utilise des lasers pulsés et déclenchés, de sorte qu'une résolution temporelle de l'ordre de 10,0 ns est très courante.

La mesure instantanée répétée de la température ou de la composition en un point de la flamme permet l'accumulation de données en vue de la détermination des paramètres statistiques des mesures en ce point. Ce type de données serait utile pour la validation des modèles informatiques de la section d'essai à l'étude. Ces modèles permettent de calculer la distribution de n'importe quelle variable dans la section d'essai. Il est maintenant reconnu de façon générale que les outils de calcul des paramètres dans la section d'essai sont supérieurs aux outils servant à les mesurer. Il y a malheureusement eu lacune de données fiables pour la validation des modèles informatiques. De plus, les sondes perturbatrices existantes n'ont pas fourni de données sur certaines grandeurs, comme les cisaillements et les contraintes de Reynolds dans un écoulement turbulent. Grâce à la méthode de diagnostic optique, la situation a changé et on dispose maintenant, pour la validation des modèles informatiques, de données fiables et de résultats statistiques sur les milieux turbulents.

Le présent rapport traite des aspects pratiques d'un montage de spectroscopie CARS servant à la mesure des températures et des concentrations des espèces dans les gaz. La technique de spectroscopie CARS et la théorie sur laquelle elle repose sont décrites en détails dans d'autres documents (1-6). Nous décrivons ci-dessous le système de mesure par spectroscopie CARS qui a été conçu et mis au point au Laboratoire de recherche sur la combustion et la carbonisation (LRCC). Le système comprend deux lasers, du matériel optique et du matériel de détection de pointe, ainsi que du logiciel complexe destiné à un gros ordinateur spécialisé.

## OPTIQUES DE SOURCE

La figure 2 montre la configuration optique du système de spectroscopie CARS. Le coeur du système est le laser au grenat d'yttrium et d'aluminium dopé au néodyme (Nd-YAG). Ce laser produit l'excitation pour l'oscillateur et l'amplificateur du laser à colorant et fournit les photons de pompage pour l'interaction CARS. Le pompage du laser Nd-YAG est réalisé au moyen de flashes ultraviolets oscillant à un taux de 10 éclairs par seconde. La cavité optique est un résonateur instable et, par conséquent, le faisceau du laser Nd-YAG a un profil spatial en forme de beigne. Comme la cavité est vidée en mode de fonctionnement déclenché, les impulsions laser ont un profil temporel de 8 à 10 ns de durée. Le laser Nd-YAG produit un faisceau de lumière à une longueur d'onde de 1,06  $\mu\text{m}$ . Le signal de sortie du laser Nd-YAG est doublé en fréquence afin de mettre à profit la dépendance quadratique de l'efficacité de production du signal CARS par rapport à la fréquence de pompage et de l'efficacité optimale du pompage du laser à colorant à la fréquence doublée.

L'énergie du rayonnement laser de 1,06  $\mu\text{m}$  sortant du laser Nd-YAG n'est pas toute doublée. Par conséquent, l'énergie du rayonnement laser de 532,0 nm est séparée de l'énergie du rayonnement résiduel de 1,06  $\mu\text{m}$  par un séparateur de faisceau harmonique (HBS) (voir fig. 2). Le faisceau laser résiduel de 1,06  $\mu\text{m}$ , après avoir été séparé du faisceau laser principal, traverse une lame demi-onde ( $\lambda/2$ ), de sorte qu'il a une polarisation horizontale à l'entrée du deuxième cristal de doublement (HD). La fréquence du faisceau est doublée de nouveau et toute énergie du rayonnement résiduel de 1,06  $\mu\text{m}$  est absorbée par le filtre KG-3. Le faisceau laser qui a été doublé une deuxième fois sert ensuite à pomper l'oscillateur à colorant. Le montage de lentilles sur le faisceau de pompage du laser à colorant (voir fig. 2) réduit le faisceau à la taille appropriée. La cellule à colorant (DC) est maintenue à l'angle de Brewster afin d'assurer la polarisation horizontale du faisceau du laser à colorant. Le filtre interférentiel (TF) dans la cavité oscillante du laser à colorant est un filtre d'accord servant à déplacer le profil spectral du laser à colorant de façon que l'enveloppe spectrale couvre les longueurs d'onde Stokes nécessaires.

Le faisceau du laser Nd-YAG (2 x Nd-YAG) à 532,0 nm, doublé initialement, traverse un filtre KG-3 qui élimine toute énergie du rayonnement de 1,06  $\mu\text{m}$ . Une partie de ce faisceau laser sert à exciter le colorant de l'amplificateur du laser à colorant. Habituellement, environ 30 % sont utilisés pour le pompage du colorant et les autres 70 % sont dirigés vers la section d'essai du système CARS. La cellule à colorant (DC) est à l'angle de Brewster afin de maintenir la polarisation horizontale du faisceau du laser à colorant.

Les faisceaux laser sont ensuite combinés afin de produire le signal CARS. Il existe une variété de configurations possibles pour cette combinaison. Les détails concernant les diverses configurations CARS sont donnés dans un autre document (7). Les différentes configurations découlent des différents essais effectués en vue de satisfaire aux conditions d'accord de phase au point d'essai CARS. Dans les expériences effectuées au LRCC, on utilise une configuration CARS quasi colinéaire. Le faisceau du laser à colorant et le faisceau 2 x Nd-YAG sont combinés après avoir été dimensionnés pour s'adapter l'un à l'autre. Le filtre mélangeur de faisceaux (D) les combine de façon que le faisceau du laser à colorant se propage dans le trou du profil en forme de beigne du faisceau 2 x Nd-YAG. Ces faisceaux sont ensuite concentrés par une lentille (L) avant d'entrer dans



la section d'essai (TS). Dans le voisinage du foyer, les deux faisceaux se coupent et, par une interaction avec la molécule à l'étude, le signal CARS est produit.

Le faisceau CARS, qui émerge avec le faisceau du laser à colorant et le faisceau 2 x Nd-YAG, est un faisceau cohérent situé dans une région annulaire autour du faisceau du laser à colorant (fig. 3). La position du faisceau CARS dépend des caractéristiques physiques et des longueurs d'onde des faisceaux de la sonde (12-14). La longueur d'interaction dépend de la distance focale de la lentille de concentration et du diamètre des faisceaux qui entrent dans la lentille. Pour étudier les faisceaux CARS, il faut éliminer le faisceau du laser à colorant et le faisceau 2 x Nd-YAG, ce qu'on réalise au moyen de filtres interférentiels (F) qui ne laissent passer que les longueurs d'onde CARS. Avant l'entrée dans le spectromètre, une partie du faisceau CARS est isolée et envoyée vers un tube photomultiplicateur (PMT). Il est ainsi plus facile d'ajuster les faisceaux de sonde afin d'assurer un chevauchement optimal dans la section d'essai.

Le signal de sortie du PMT est envoyé vers un moyennneur de "train d'impulsions" qui affiche la moyenne d'un certain nombre d'impulsions CARS. On surveille ainsi l'intensité du signal CARS pendant qu'on effectue des ajustements des miroirs qui dirigent les faisceaux de sonde. L'optimisation du signal CARS est nécessaire en raison de la dépendance quadratique de l'intensité du signal CARS par rapport à l'intensité du faisceau de pompage et au nombre volumique de molécules sondes. Une faible variation de l'un ou l'autre de ces facteurs entraîne une variation importante du signal CARS. Le moyennneur de "train d'impulsions" lisse les variations causées par les sources externes et permet à l'opérateur de suivre les tendances à mesure que des ajustements de la position des deux faisceaux de sonde sont effectués. Une fois que sa configuration géométrique a été optimisée, le signal CARS peut être analysé dans le spectromètre à réseau holographique (HGS).

Le signal CARS est acheminé vers le HGS au moyen d'une fibre optique. Cette fibre a un noyau de 80  $\mu\text{m}$  et une gaine de 125  $\mu\text{m}$ , et elle est constituée de silice fondue. Après la séparation des faisceaux de sonde du faisceau sortant de la section d'essai, une lentille (L) (voir fig. 2) concentre le faisceau CARS sur l'extrémité d'entrée de la fibre optique. La fibre transporte ensuite le signal optique vers le HGS où il est analysé. Cette liaison par fibre optique permet de séparer le matériel optique amont (partie source) du matériel optique aval (partie détection). La détection et l'étude du signal CARS peuvent alors être effectuées dans une zone éloignée du milieu de combustion.

## OPTIQUES DE DÉTECTION

Comme dans le cas du laser à colorant, le HGS a été conçu spécifiquement pour les expériences de spectroscopie CARS. La configuration du spectromètre est montrée à la figure 4. Le spectromètre entier est entouré de façon à être protégé contre les sources de lumière extérieures. Le signal CARS est amené dans le spectromètre par la fibre optique (FO) (voir fig. 4). Le coeur de 80  $\mu\text{m}$  de diamètre joue le rôle de fente d'entrée du spectromètre. La lumière, à la sortie de la fibre, est dirigée vers le réseau holographique (HG) par un prisme (P) de 45°. La fibre a une ouverture numérique d'environ 0,20, de sorte qu'elle déborde du réseau. Les spécifications du réseau sont données au tableau 1. Après avoir été dispersé par le réseau, le faisceau CARS est dirigé vers la tête

du détecteur. La détection du signal CARS dispersé est effectuée au moyen d'un assemblage de diodes renforcées (voir OMD, fig. 4). L'assemblage de diodes mesure 1 x 25 mm. Suivant le grand axe de l'assemblage sont placées 1024 diodes de 1 mm de hauteur. Le plan de dispersion du réseau est orienté parallèlement au grand axe du détecteur afin que le signal dispersé soit décomposé en 1024 éléments. Le réseau est construit de telle façon que l'image de la pointe de 80  $\mu\text{m}$  de la fibre dans le réseau soit une tache oblongue d'environ 1,5 mm de hauteur et 25 mm de longueur. Les faisceaux d'entrée et de sortie du réseau sont placés l'un au-dessus de l'autre pour permettre d'économiser l'espace (voir fig. 4), et le détecteur est placé juste derrière et au-dessus du prisme. Le renforçateur est une partie intégrante du détecteur et il est placé juste devant les diodes. Le signal CARS peut être très faible et, après avoir traversé les divers éléments optiques, il peut être encore plus faible lorsqu'il arrive au détecteur. Le renforçateur peut amplifier le signal optique jusqu'à 4000 fois. Il fonctionne aussi par déclenchement. Par conséquent, on peut améliorer le rapport signal/bruit en réglant le déclenchement du renforçateur pour qu'il fonctionne seulement lorsque le laser émet une impulsion. Ainsi, seuls les photons produits par l'interaction CARS sont amplifiés pour le détecteur.

Le succès de la mesure des profils spectraux CARS dépend de la synchronisation du matériel optique de la partie source avec le matériel optique de la partie détection. La synchronisation est réalisée au moyen d'un régulateur qui détermine la vitesse à laquelle le laser émet des impulsions et le moment auquel le détecteur capte le signal. Le régulateur commande aussi le déclenchement du renforçateur.

## MÉTHODE DE MESURE

Pour déterminer la température en un point de la section d'essai, on enregistre le profil spectral CARS, puis on le compare avec un profil spectral calculé théoriquement. N'importe quelle molécule de la section d'essai peut être utilisée pour la détermination de la température; toutefois, l'azote est couramment utilisé pour diverses raisons. Les paramètres spectrographiques et la largeur de bande de l'azote sont bien connus. De plus, l'intensité du signal CARS varie en fonction du carré du nombre volumique de la molécule sonde. L'azote est utilisé pour la mesure de la température parce qu'il est présent en quantité abondante dans la combustion alimentée à l'air. On a constaté que le profil spectral CARS varie relativement peu en fonction de la concentration de la molécule d'azote au-dessus de 50 % (7). Cependant, il est très sensible aux variations de température. On peut observer cette sensibilité dans les profils spectraux CARS calculés pour l'azote (fig. 5) à des températures comprises entre 1200 et 2400 K. Les courbes obtenues correspondent aux transitions vibrationnelles pures (Q-branch) de la molécule d'azote pour une interaction CARS.

Les mesures d'étalonnage à effectuer avant qu'une température puisse être déterminée à partir du profil spectral CARS peuvent être divisées en deux groupes fondamentaux : mesures variables et mesures à long terme. Les mesures d'étalonnage à long terme comprennent la fonction de fente et la dispersion du spectromètre ainsi que les caractéristiques du profil spectral du laser de pompage. La fonction de fente du spectromètre est sa réponse à l'exposition à un rayonnement monochromatique. Elle peut être imaginée comme l'élargissement du profil spectral en raison de la largeur finie des fentes d'entrée. On a montré que les valeurs d'étalonnage à long terme ne varient pas avec le temps.

On effectue habituellement un réétalonnage lorsque des modifications sont apportées au matériel optique. Les mesures d'étalonnage variables comprennent la mesure du profil spectral du laser à colorant et la détermination de la relation diode-longueur d'onde pour le détecteur. On a observé que ces paramètres varient d'une journée à l'autre. C'est pourquoi ils font partie de la série de mesures effectuées avant chaque expérience.

On mesure la dispersion du spectromètre en éclairant les fentes d'entrée avec des lampes d'étalonnage munies d'électrodes élémentaires. Les raies d'émission de ces éléments sont bien connues et sont publiées dans la documentation (15). En se basant sur les positions des diodes pour ces raies d'émission et sur les longueurs d'onde correspondantes, on peut établir une relation fonctionnelle entre le numéro de la diode et la longueur d'onde.

Pour déterminer la fonction de fente du spectromètre, on produit à la température de la pièce un spectre CARS de l'azote et on l'achemine vers le spectromètre par la fibre optique. La forme fonctionnelle de la fonction de fente est déterminée à l'aide de techniques d'ajustement de courbe. Une gamme de fonctions, notamment des fonctions triangulaires, exponentielles et gaussiennes, peuvent être utilisées pour décrire la fonction de fente du spectromètre. Le laser de pompage est utilisé en mode simple. Par conséquent, la largeur de raie du faisceau du laser de pompage est inférieure à 0,02 cm<sup>1</sup>, ce qui se traduit par un minimum d'erreur lorsqu'on suppose que le laser de pompage est réellement monochromatique. Le traitement mathématique deviendrait très difficile si on faisait une convolution de la susceptibilité avec le laser de pompage et avec le laser à colorant. Il se produit cependant une perte d'intensité du signal CARS lorsque le laser de pompage est utilisé en mode simple.

Dans un système CARS multiplex, un laser à colorant à large bande est utilisé de façon que le spectre CARS entier puisse être produit dans une seule impulsion. On peut surveiller le profil spectral du laser à colorant en isolant une partie de son faisceau qui est ensuite dispersée et étudiée. Il faut à cette fin maintenir un monochromateur distinct pour les longueurs d'onde du laser à colorant. Un moyen plus économique consiste à utiliser dans l'expérience CARS une cellule d'étalonnage remplie d'un gaz, dont la susceptibilité de résonance est éloignée du point de vue spectral de celle de la molécule sonde. Lorsque les faisceaux laser CARS se coupent dans le gaz de référence, un signal non résonnant est produit et la forme du profil spectral du laser à colorant se reflète dans ce signal. Cette technique est généralement acceptée pour la détermination du profil spectral du laser à colorant parce qu'elle donne aussi une indication de la déformation des signaux CARS résultant de tous les éléments optiques du montage complet.

Lorsque l'étalonnage à court terme est terminé, il est possible de mesurer la température de la flamme à l'aide des faisceaux laser. Ces derniers sont dirigés sur le point de mesure à l'intérieur de la section d'essai. Selon le type de mesure effectuée, les faisceaux laser balaient en entier la section d'essai de façon qu'on puisse recueillir un grand nombre de spectres CARS pour différents points, ou bien ils restent dirigés sur un point d'essai de façon à donner un spectre moyen pour plusieurs impulsions. Les spectres recueillis sont envoyés à l'ordinateur pour fins d'analyse. L'analyse comprend la manipulation de gros ensembles vectoriels et les calculs requis ne peuvent pas être effectués pendant l'intervalle de temps séparant les impulsions laser (0,1 s). Par conséquent, les spectres CARS, avec les spectres d'étalonnage à court terme, sont emmagasinés sur disque dur en vue de leur analyse future.

La détermination des concentrations des espèces dans une flamme est réalisée à peu près de la même façon, mais avec un laser à colorant différent qui satisfait à la condition de renforcement de résonance. Un logiciel différent est utilisé pour calculer le profil spectral "d'ajustement optimal" et les concentrations des espèces à l'étude.

## TRANSMISSION DES DONNÉES

L'ordinateur utilisé pour la réduction des données et le stockage des spectres est situé dans une zone éloignée du montage optique, de sorte qu'il faut acheminer de gros blocs de données sur de grandes distances. Les données peuvent être transmises en mode série ou en mode parallèle. La transmission des spectres en série est lente (environ 0,3 spectre par seconde), mais elle permet à l'opérateur de faire un choix entre les bons et les mauvais spectres lorsqu'ils sont recueillis. La transmission en parallèle est rapide (10 spectres par seconde), mais toutes les données, bonnes ou mauvaises, sont transmises à l'ordinateur pour fins d'analyse.

Un logiciel spécialisé a été préparé pour la transmission en série vers le gros ordinateur. Les programmes sont à base de menus et ils permettent à l'opérateur d'exécuter la procédure d'entrée en communication avec le gros ordinateur, d'ouvrir les fichiers de stockage et de transmettre les données du matériel de détection vers l'ordinateur sans qu'il ait à s'éloigner du matériel optique. Ainsi, l'ordinateur traite le matériel de détection comme s'il s'agissait d'un autre terminal. La liaison physique entre l'ordinateur et le matériel de détection comprend un câble à six paires torsadées de 90 m et un modem à courte distance à chaque extrémité.

La transmission parallèle est réalisée de façon un peu différente. Avant la mise en marche, l'opérateur utilise la même liaison série avec l'ordinateur pour faire exécuter le logiciel à base de menus comme étape de préparation de l'expérience. Après la préparation, il y a exécution d'un programme qui indique à l'ordinateur d'entrer en communication avec le matériel de détection et de stocker les spectres à mesure qu'ils sont recueillis. Dans ce cas, le matériel de détection est traité par l'ordinateur comme du matériel périphérique. La liaison physique avec l'ordinateur comprend deux circuits de commande de grande distance de conception spéciale et un câble à 10 paires torsadées de 90 m.

## SYSTÈME DE GESTION DE FICHIERS

Pour recueillir et analyser de grandes quantités de données, il faut un système complet de gestion de fichiers. Le système utilisé dans les expériences de spectroscopie CARS tient compte des différents types d'expériences effectuées et des différents formats de données requis par les programmes d'analyse. Il y a deux types de logiciels de gestion de fichiers : le logiciel pour la méthode de transmission série et le logiciel pour la méthode de transmission parallèle.

## FICHIERS DE DONNÉES TRANSMISES EN SÉRIE

On utilise le logiciel de transmission de données en série lorsque des spectres spéciaux doivent être recueillis (p. ex profils spectraux de laser à colorant) et lorsque les vitesses de cueillette et de transmission des données importent peu.

Lorsque le montage expérimental est prêt, l'opérateur fait exécuter le programme approprié. Le programme est exécuté en mode questions et réponses. En répondant aux questions, l'opérateur crée d'abord un fichier de description de l'expérience à réaliser. Ce fichier décrit le groupe de fichiers de données qui constituera la série de données recueillies pour l'expérience. Le programme crée aussi automatiquement un fichier en-tête qui décrit les enregistrements contenus dans un fichier de données. Lorsque le fichier de description et le fichier en-tête sont prêts, le programme attend un signal pour accepter les données. Des données sont envoyées du contrôleur du gros ordinateur vers le détecteur optique multicanal (OMD) (voir fig. 4). L'opérateur choisit l'adresse de mémoire des données spectrales du fichier de données à envoyer ou bien il réalise l'acquisition manuelle du fichier de données. En appuyant sur le bouton de sortie du contrôleur il commande la transmission à l'ordinateur du spectre affiché. La transmission d'un spectre complet de 1024 points prend environ 30 s. Par conséquent, ce type de transmission de données ne peut se faire en temps réel. À la fin de la transmission des données, le programme s'arrête, et, pour transmettre d'autres spectres, l'opérateur doit lancer de nouveau le logiciel de transmission. Ainsi, l'opérateur précise le fichier de description qui se rapporte au fichier de données à recueillir et il crée un nouveau fichier en-tête qui décrit le fichier de données. Il continue de procéder de cette façon jusqu'à ce que tous les spectres aient été transmis.

## FICHIERS DE DONNÉES TRANSMISES EN PARALLÈLE

Le logiciel de transmission de données en parallèle est utilisé pour l'acquisition rapide et le stockage de grandes quantités de données spectrales. Le système de gestion de fichiers organise automatiquement le fichier de données en spectres d'étalonnage et en spectres de données de façon que la vitesse maximale (10 spectres par seconde) soit utilisée pendant la cueillette des données.

Comme le programme de transmission en série, le programme de transmission en parallèle crée le fichier de description et le fichier en-tête, et il permet à l'opérateur de choisir le type d'expérience à réaliser. Le fichier de données est organisé adéquatement en fonction du type d'expérience. Le premier enregistrement du fichier pour une expérience comprend des informations précisant le type de données qui suivent et l'adresse de spectres de référence spéciaux. Ces spectres spéciaux constituent les spectres d'étalonnage à court terme et ils sont recueillis et stockés comme le deuxième et le troisième enregistrements du fichier de données indiqué dans l'enregistrement de référence. L'enregistrement suivant peut être vierge ou consister en un spectre chaud moyen, selon le type d'expérience. Jusqu'à cinq enregistrements spéciaux peuvent être stockés au début d'un fichier de données. Les enregistrements qui suivent sont habituellement des spectres d'une seule impulsion. Chaque fichier comprend soit des spectres moyens et des spectres d'une seule impulsion pour un seul point de la flamme, soit des résultats de mesures effectuées suivant un axe spécifié traversant la flamme. À chaque fichier sont attribués un nom unique et un en-tête qui décrit les conditions dans lesquelles les données ont été recueillies.

Dans une large mesure, les données qui sont recueillies à l'aide du logiciel de transmission en parallèle sont recueillies en temps réel. Ainsi, l'acquisition, la transmission et le stockage des données sont effectués en moins de 0,1 s. Des fichiers volumineux peuvent être créés à l'aide du logiciel de transmission en parallèle alors que les fichiers créés à l'aide du logiciel de transmission en série sont habituellement plus petits et contiennent des données spéciales. Les données spéciales sont traitées séparément et pas de la même façon que les données recueillies au moyen de la transmission en parallèle. Le logiciel de transmission en parallèle est la "bête de somme" de l'expérience de spectroscopie CARS. Les fichiers de données créés à l'aide de ce logiciel comprennent des mesures représentant une flamme entière et tous les enregistrements sont traités de façon similaire. Par conséquent, on a créé un logiciel de réduction des données recueillies au moyen du logiciel de transmission en parallèle. Les données recueillies au moyen du logiciel de transmission en série sont traitées séparément et constitueront le sujet d'un autre rapport.

### RÉDUCTION DES DONNÉES

La théorie de la spectroscopie Raman anti-Stokes cohérente a été décrite en détails (16-19). En résumé, la spectroscopie CARS repose sur un phénomène optique non linéaire et sur l'interaction de trois ondes. Lorsque deux faisceaux laser de fréquences  $\omega_L$  et  $\omega_S$  entrent en interaction dans un milieu, l'interaction des trois ondes donne un faisceau cohérent résultant de fréquence  $2\omega_L - \omega_S$  qui constitue le faisceau CARS (voir fig. 1). L'interaction se produit pour tous les échantillons, mais l'intensité du faisceau CARS est grandement renforcée lorsque  $\omega_L$  et  $\omega_S$  s'approche d'une fréquence Raman du milieu.

L'interaction du rayonnement laser avec le milieu se fait par le biais de la susceptibilité électrique non linéaire du troisième ordre, représentée par  $\chi^{(3)}$  et elle donne lieu à un champ de polarisation induit qui agit comme un terme source dans l'équation d'onde de Maxwell. La résolution de l'équation d'onde mène à l'expression suivante pour la puissance du signal CARS :

$$P_3 \propto P_L^2 P_S \left| \chi^{(3)} \right|^2 \quad \text{Éq. 1}$$

La puissance  $P_3$  du signal CARS présente une variation linéaire en fonction de la puissance Stokes  $P_S$  et une variation quadratique en fonction de la puissance de pompage  $P_L$  ; elle est aussi proportionnelle au carré de la susceptibilité du troisième ordre.  $\chi^{(3)}$  a une composante résonnante et une composante non résonnante :

$$\chi^{(3)} = \chi^R + \chi^{NR} \quad \text{Éq. 2}$$

La composante non résonante,  $\chi^{NR}$  est indépendante de la fréquence et elle varie de façon linéaire en fonction du nombre volumique.

Lorsque les raies Raman peuvent être considérées comme suffisamment étroites pour qu'il n'y ait pas de chevauchement, la composante résonnante  $\chi^R$  peut être exprimée sous la forme :

$$\chi^R = \frac{hNc^4}{\pi\omega_s^4} \left| \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_j \left( \frac{\Delta_j \omega_j}{\omega_j^2 - (\omega_l - \omega_s)^2 - i\Gamma_j (\omega_l - \omega_s)} \right) \quad \text{Éq. 3}$$

où :  $N$  est le nombre volumique,  $\omega_j$  est la fréquence Raman,  $\Delta_j$  est la différence de population entre les états de vibration-rotation supérieur et inférieur pour la transition,  $\Gamma_j$  est la largeur de la raie Raman et  $d\sigma/d\Omega$  est l'aire de diffusion Raman (20).

Il est évident que  $\chi^R$  augmente lorsque :

$$\omega_j = \omega_l - \omega_s. \quad \text{Éq. 4}$$

Si nous définissons le désaccord de fréquences par

$$\Delta\omega = \omega_j - (\omega_l - \omega_s) \text{ et si } \Delta\omega/\omega_j \ll 1 \quad \text{Éq. 5}$$

$$\frac{1}{\omega_j - \Delta\omega} = \frac{1}{\omega_j} \left( 1 + \frac{\Delta\omega}{\omega_j} \right) \quad \text{Éq. 6}$$

l'équation 3 devient :

$$\chi^R = \frac{hNc^4}{\pi\omega_s^4} \left| \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_j \left( \frac{\Delta_j}{2\Delta\omega_j - i\Gamma_j} \right) \quad \text{Éq. 7}$$

$$\text{Posons : } K_j = \frac{hNc^4}{\pi\omega_s^4} \Delta_j \left| \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_j \Gamma_j^{-1}. \quad \text{Éq. 8}$$

En faisant la sommation pour tous les  $\omega_j$ , où  $j$  fait référence aux nombres quantiques de vibration et de rotation, nous obtenons :

$$\chi^{(3)} = \sum_j \frac{K_j \Gamma_j}{2\Delta\omega_j - i\Gamma_j} + \chi^{NR}. \quad \text{Éq. 9}$$

L'aire de diffusion Raman peut être exprimée, pour la bande de transitions vibrationnelles pures (Q-branch), sous la forme suivante :

$$\left| \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_j = \frac{\omega_s^4}{c^4} \frac{\pi}{hM\omega_0} \left( \alpha^2 + \frac{7}{45} b_j^j \gamma^2 (v+1) \right) \quad \text{Éq. 10}$$

où :  $M$  est la masse réduite,  $\omega_0$  est la fréquence angulaire de l'oscillateur moléculaire, les  $b_j^j$  sont les coefficients de Placzek-Teller,  $\alpha$  est la dérivée de la polarisabilité moléculaire moyenne par rapport à la coordonnée inter-nucléaire,  $\gamma$  est la dérivée similaire de l'anisotropie, et  $v$  est le nombre quantique de vibration du niveau initial.

$\chi^{(3)}$  peut ainsi être calculé à partir de l'éq. 9

Dans l'analyse qui précède, on a considéré la condition idéale dans laquelle la fréquence de pompage ( $\omega_p$ ) et la fréquence de Stokes ( $\omega_s$ ) sont monochromatiques, ce qui est effectivement le cas dans certaines expériences. Dans ce cas, la fréquence de Stokes est balayée avec chaque impulsion laser et le profil spectral CARS complet est produit point par point. Cette technique de balayage se traduit par une configuration optique de la partie détection assez simplifiée puisque les seuls éléments requis sont un tube photomultiplicateur et un détecteur. De plus, l'intensité du signal capté a tendance à être beaucoup plus élevée. Ce type de production de signal CARS a cependant un inconvénient qui restreint son utilisation. Cet inconvénient est le temps requis pour produire le profil spectral CARS complet. Le balayage du profil spectral CARS peut prendre jusqu'à 15 à 20 minutes. L'utilisation d'une technique de balayage du spectre CARS est par conséquent limitée à une situation dans laquelle le champ de concentration ou de température ne varie pas pendant la période de balayage. En combustion turbulente, cette condition ne peut être réalisée, de sorte qu'on a recours à une technique dite de spectroscopie CARS "à large bande".

L'expression spectroscopie CARS à large bande tire son nom du profil spectral du laser Stokes. Le laser Stokes a un profil spectral assez large pour donner les fréquences CARS en une impulsion. L'avantage offert par la technique CARS à large bande est que le profil anti-Stokes complet est produit à chaque impulsion des lasers. Ainsi, la mesure des températures ou des concentrations est figée dans le temps. À chaque impulsion des lasers, un historique de la variation de la mesure peut être stocké. Avec les informations obtenues, une fonction de distribution de probabilité (FDP) de la mesure peut être créée. C'est pourquoi la technique à large bande est utilisée pour la mesure des températures et des concentrations des espèces en combustion turbulente.

En pratique, le laser de pompage a aussi une largeur spectrale finie. Dans ce cas, la puissance CARS  $P_3(\omega)$  peut être obtenue par convolution sur les largeurs de bande laser, conformément à la méthode décrite par Yuratich (21). Alors :

$$P_3(\omega) \approx \int P_L(\omega_L) d\omega_L \int P_L(\omega - \delta) P_S(\omega_L - \delta) |\chi(\delta)|^2 d\delta. \quad \text{Éq. 12}$$



En général,  $\Delta\omega \ll \Delta\omega_s$ , et  $\Delta\omega$  est très petit. Par conséquent,  $P_s \{\omega_l - \delta\}$  peut être remplacé par  $P_s(\omega_l^{(0)} - \delta)$  et l'intégrale peut être réduite à :

$$P_3(\omega) \approx \int P_s(\omega_l^{(0)} - \delta) P_l\{\omega - \delta\} |\chi(\delta)|^2 d\delta \quad \text{Éq. 13}$$

où :  $\omega_l^{(0)}$  est la fréquence médiane du laser de pompage.

On peut supposer une distribution gaussienne pour les densités spectrales  $P_l(\omega_l)$ ,  $P_s(\omega_s)$

$$\text{c.-à-d. } P_l(\omega_l) = \exp -\left(\frac{\Delta\omega_l}{\text{largeur}}\right)^2 \quad \text{Éq. 14}$$

$$P_s(\omega_s) = \exp -\left(\frac{\Delta\omega_s}{\text{largeur}}\right)^2 \quad \text{Éq. 15}$$

où :  $\Delta\omega_l = \omega - \omega_l$ ,  $\Delta\omega_s = \omega - \omega_s$

la largeur est la pleine largeur de raie à la moitié de l'intensité maximale.

L'équation 13 donne le profil spectral CARS tel qu'il est produit dans la section d'essai. Pendant l'acheminement du signal CARS vers le spectromètre, le profil spectral peut être modifié en raison des caractéristiques de bande passante des éléments optiques se trouvant sur le trajet du faisceau. De plus, une convolution est requise pour inclure la réponse du détecteur et la fonction de fente du spectromètre. Une fois que ces facteurs ont été pris en considération dans le profil spectral, les températures ou les concentrations des espèces dans les gaz peuvent être déterminées.

L'équation 7 montre que l'intensité CARS de résonance varie en fonction de la température en raison de sa dépendance par rapport au nombre volumique  $N$ , au facteur de population  $\Gamma_j$  et à la largeur de raie Raman  $\Delta_j$ , qui dépendent tous de la température. L'intensité CARS totale dépend aussi de la composante non résonnante, qui à son tour varie en fonction des concentrations des espèces et de la température. Ainsi, ces éléments constituent la base de la mesure des températures et des concentrations des espèces en spectroscopie CARS.

Un programme informatique basé sur l'équation 13 a été fourni au LRCC par R.J. Hall et A.C. Eckbreth de l'United Technologies Research Centre des É.-U. Par la suite, on a modifié le programme, on a augmenté sa vitesse et on l'a utilisé pour produire des spectres CARS théoriques.

N'importe quelle molécule de la section d'essai peut être utilisée pour mesurer la température; cependant, en raison de la dépendance quadratique de l'intensité du signal CARS par rapport au

nombre volumique de la molécule génératrice, l'azote est utilisé en combustion alimentée à l'air. Dans la variation du spectre CARS théorique en fonction de la température (voir fig. 5), il convient de remarquer deux structures principales dans les profils spectraux. La plus haute pointe, à environ  $21\,125\text{ cm}^{-1}$  est appelée la crête "fondamentale" et elle correspond aux transitions vibrationnelles pures (Q-branch)  $v = 0$  à  $v = 1$ . La deuxième pointe est appelée la "bande chaude" et elle est due aux transitions vibrationnelles pures  $v = 1$  à  $v = 2$ . La structure fine du profil spectral est due à des transitions vibrationnelles pures individuelles. À mesure que la température de la molécule ou la résolution du spectromètre est réduite, cette structure se stabilise.

L'effet d'une variation de la concentration des espèces à l'étude sur le profil spectral CARS est représenté à la figure 6 (22). Cette figure montre le spectre CARS du monoxyde de carbone (CO) pour différentes concentrations.

Récemment, Teets (23) a fait remarquer que l'approximation de Yuratich dans l'équation 13 pour la convolution de la largeur de raie laser, lorsque des lasers multi-modes sont utilisés, peut se traduire par des erreurs des estimations des températures et des concentrations lorsque la largeur de raie laser est comparable à la largeur de raie Raman. Par conséquent, il faut utiliser des lasers monomodes pour produire le faisceau de pompage, ce qui donne la largeur de raie de  $0,02\text{ cm}^{-1}$  pour le laser de pompage, tel que mentionné précédemment.

## ANALYSE DES DONNÉES

Le calcul des concentrations des gaz, à partir des profils spectraux CARS, s'effectue grossièrement de la même façon que le calcul des températures des gaz. La similarité est particulièrement évidente dans le cas des techniques analytiques d'ajustement de courbes. Par conséquent la discussion sur l'analyse des données porte sur la détermination des températures des gaz.

Les spectres CARS expérimentaux sont enregistrés sous forme de tableaux de valeurs de puissance CARS en fonction des numéros de diodes dans le détecteur à assemblage de diodes. Après soustraction du fond spectral, il est nécessaire d'étalonner le détecteur pour convertir l'échelle des diodes en échelle des nombres d'ondes. On effectue cette conversion en étudiant la réponse du détecteur à des raies précises connues produites par une lampe puissante et en étalonnant le résultat par un ajustement de courbe adéquat. Cet étalonnage permet de déterminer la relation de dispersion du détecteur à une constante près. On obtient cette constante en enregistrant un spectre CARS de  $N_2$  à la température de la pièce et en attribuant à sa crête la fréquence obtenue par méthode théorique. Les spectres obtenus à partir du milieu chaud peuvent ensuite être convertis à l'échelle exprimée en  $\text{cm}^{-1}$  avec l'équation de dispersion.

Dans l'équation 13, le laser Stokes à large bande a une grande gamme de fréquences, comme son nom l'indique. Par conséquent, l'effet de la convolution de son profil est de modifier la forme globale du spectre. On peut éliminer l'effet du laser à colorant et les autres effets inconnus de réponse de système sur le spectre CARS de résonance en divisant ce spectre par un spectre CARS non résonnant, après quoi une convolution du laser à colorant n'est plus requise pour le spectre théorique.

Ainsi, le programme de réduction des données effectue les opérations suivantes :

- lecture d'un spectre CARS du  $N_2$  à la température de la pièce;
- lecture d'un spectre CARS non résonnant avec de l'argon ou du dioxyde de carbone;
- détermination de la crête du spectre du  $N_2$  en fonction du numéro de diode et attribution d'une fréquence théorique à cette crête;
- utilisation de l'équation de dispersion pour établir l'échelle de fréquence;
- lecture du spectre CARS chaud;
- division du spectre chaud par un spectre non résonnant;
- comparaison du spectre chaud avec le spectre théorique; et
- prévision d'une température.

Tel que déjà mentionné, le spectre CARS de transitions vibrationnelles pures (Q-branch) du  $N_2$  est utilisé pour estimer les températures. À cette fin, l'approche la plus simple consisterait à ajuster le spectre avec des spectres théoriques au moyen d'une méthode des moindres carrés moyens.

Cependant, la production de spectres théoriques pour chaque itération prendrait du temps et serait coûteuse. Une méthode plus efficace d'utilisation d'une table de spectres CARS théoriques du  $N_2$  produits à intervalles de 50 K est utilisée pour l'analyse. Il existe aussi une méthode pour l'interpolation entre les points espacés de 50 K. De cette façon, la température est utilisée comme un paramètre pour ajuster le profil spectral CARS théorique en fonction du profil expérimental.

Afin d'apporter une correction pour tout déplacement de fréquence entre les spectres CARS théorique et expérimental, on utilise aussi le déplacement comme paramètre d'ajustement dans l'analyse. L'ajustement est effectué à l'aide d'une méthode des moindres carrés moyens non linéaire (24).

### ALGORITHMES D'ANALYSE RAPIDE

Une méthode de rechange pour la détermination des températures à partir des spectres CARS consiste à utiliser des caractéristiques des profils spectraux mêmes. On a constaté que certains paramètres, comme le rapport des hauteurs de crête de la bande fondamentale à celles la bande chaude, sont des fonctions uniques de la température et, pour cette raison, peuvent être utilisés dans une méthode d'ajustement rapide (25). On prévoit que cette méthode sera plus rapide et plus efficace que la méthode des moindres carrés décrite précédemment. L'accroissement de la vitesse est dû au fait qu'il n'est pas nécessaire de surveiller l'ajustement entre les spectres expérimental et théorique. De plus, avec les méthodes d'ajustement rapide, il n'est pas nécessaire de maintenir de gros fichiers de données relatives aux spectres théoriques.

Les paramètres utilisés dans la méthode d'ajustement rapide sont les suivants (fig. 7) :

- aire de la bande fondamentale/hauteur de la bande fondamentale (AF/HF, fig. 8);
- hauteur de crête de la bande chaude/hauteur de crête de la bande fondamentale (HH/HF, fig. 8);
- aire de la section moyennement chaude/aire de la section froide de la bande fondamentale (AW/AC, fig. 8);

- aire de la bande chaude/aire de la section froide de la bande fondamentale (AH/AC, fig. 8); et
- pente de la courbe logarithmique à moins de 12-75 % de la hauteur de crête de la bande fondamentale (pente log 12-75 %, fig. 8).

À l'aide des spectres CARS théoriques, on a déterminé la variation de ces paramètres en fonction de la température (voir fig. 8). Les informations de la figure 8 sont disposées sous forme d'une table à partir de laquelle on peut effectuer une interpolation linéaire pour obtenir la température correspondant à un spectre expérimental donné.

On a effectué des essais de comparaison de la méthode de réduction des données basée sur les moindres carrés moyens avec la méthode basée sur l'ajustement rapide. Ces essais ont porté sur des spectres expérimentaux synthétiques déduits à partir d'une combinaison d'un ensemble connu de spectres théoriques et de spectres de bruit. Ces essais montrent que les méthodes d'ajustement rapide sont en réalité plus rapides par un facteur de 2.

Cependant, la mise en application des techniques d'ajustement rapide ne peut se faire avant qu'on ait effectué une étude plus approfondie des caractéristiques des paramètres d'ajustement. On étudie présentement deux méthodes d'utilisation des paramètres d'ajustement rapide. La première donne une moyenne pondérée des températures résultant des cinq paramètres. La pondération dépend de la plage de température et de la sensibilité du paramètre au bruit. La deuxième comprend une technique d'évaluation dans laquelle les températures résultant de chaque paramètre sont comparées avec la moyenne des autres températures. Ainsi, les températures qui diffèrent de façon appréciable de la moyenne des autres peuvent être éliminées.

## AFFICHAGE DES DONNÉES

On a préparé un programme à base de menus qui permet d'observer les données expérimentales à n'importe quel moment pendant le traitement. Il est aussi possible de modifier les spectres d'étalonnage à long et à court termes utilisés dans la réduction des données. De cette façon, l'effet du fond non résonnant peut être étudié.

Ce programme d'affichage a été écrit en vue de la comparaison des spectres. Les spectres à comparer sont tracés l'un au-dessus de l'autre, ce qui permet d'observer la différence entre les deux. Les deux spectres peuvent être soit un spectre CARS pour une seule impulsion et un spectre CARS moyen pour plusieurs impulsions, soit un spectre CARS expérimental et un spectre CARS théorique. Pour faciliter la comparaison des spectres, des manipulations mathématiques simples des deux spectres, par exemple  $B - A$ ,  $A - B$ ,  $B \div A$  et  $A \div B$ , peuvent être représentées sur le même graphique. De cette façon, on peut étudier des zones particulières du spectre qui présentent des problèmes du point de vue de l'ajustement ou du bruit.

La figure 9 montre un exemple d'affichage dans lequel on compare un spectre d'une impulsion unique et un spectre moyen. La courbe du bas ( $A - B$ ) montre la différence entre ces deux spectres.

## CONCLUSIONS

On a mis au point un système complet pour la mesure non perturbatrice des températures et des concentrations des espèces dans un milieu en combustion. Dans cette méthode, appelée "spectroscopie Raman anti-Stokes cohérente", le signal à mesurer est produit par deux lasers pulsés de grande puissance. Le signal ainsi produit sort de la section d'essai sous forme d'un faisceau de type laser et, pour cette raison, le signal produit en entier est capté pour fins d'analyse. La technique est supérieure aux techniques de mesure actuelles pour les raisons suivantes : la mesure ne perturbe pas la flamme et elle est figée dans le temps, le volume de l'échantillon est petit, et la qualité et le type de mesure réalisée est plus utile pour la modélisation de la combustion. La technique CARS mise au point au LRCC est basée sur du logiciel et du matériel perfectionnés, de sorte qu'on a produit un système de mesure de pointe.

## AMÉLIORATIONS PRÉVUES DU SYSTÈME

Les perfectionnements prévus du montage optique, destinés à accroître l'efficacité de production du signal, comprennent le réaligement de l'axe de polarisation de la longueur d'onde résiduelle de  $1,06 \mu\text{m}$  utilisée pour le pompage de l'oscillateur du laser à colorant, la modification de la distance focale des lentilles de focalisation des faisceaux laser et le réajustement de la séparation du faisceau doublé du laser YAG. Le premier perfectionnement devrait permettre un pompage plus efficace du laser à colorant, ce qui devrait se traduire par une plus grande énergie dans le faisceau de Stokes. Les deux derniers perfectionnements devraient se traduire par une plus grande quantité d'énergie dans le faisceau de pompage utilisé dans l'interaction CARS. Des perfectionnements plus récents de la théorie de la spectroscopie CARS seront appliqués dans l'analyse de façon qu'on puisse obtenir un meilleur accord entre la théorie et les résultats expérimentaux. On étudiera aussi la mise en application des techniques d'ajustement rapide.

## BIBLIOGRAPHIE

1. Eckbreth, A.C.; Bonczyk, P.A. and Verdieck, J.F. "Review of laser Raman and fluorescence techniques for practical combustion diagnostics"; United Technologies Report for the EPA Office of Research and Development, *EPA Report No. EPA-600/7-77-066*; June 1977.
2. Eckbreth, A.C.; Bonczyk, P.A. and Shirley, J.A. "Investigation of saturated laser fluorescence and CARS spectroscopic techniques for combustion diagnostics"; United Technologies Report for the EPA Office of Research and Development, *EPA Report No. EPA-600/7-78-104*; June 1978.
3. Eckbreth, A.C.; Bonczyk, P.A. and Verdieck, J.F. "Combustion diagnostics by laser Raman and fluorescence techniques"; *Progr in Energy and Combust Sci* 5:253-322; 1979.
4. Eckbreth, A.C. "Use of lasers in nonlinear Raman spectroscopy"; *United Technologies Report No. UTRC 82-28*; May 1982.
5. Eckbreth, A.C. "CARS thermometry in practical combustors"; *Combust and Flame* 39:133-147; 1980.
6. Eckbreth, A.C. and Schreiber, P.W. "Coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS): Application to combustion and gas-phase diagnostics"; *Chemical Applications of Nonlinear Raman Spectroscopy in Laser Applications*, Vol 1; Academic Press; 1981.
7. Hall, R.J. and Eckbreth, A.C. "Coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS): Application to combustion diagnostics"; *Laser Appl*, Vol 5; Academic Press; 1984.
8. Tine, G. *Gas Sampling and Chemical Analysis in Combustion Processes*; Pergamon Press; 1961.
9. Zinn, B.T., Editor. "Experimental diagnostics in gas phase combustion systems"; *Progr in Astronaut and Aeronaut* 53; 1977.
10. Kurlbaum, F. "A simple method for determining the temperature of luminous flames"; (Translated from German), *Physikalische Zeitschrift* 3:187-188; 1902.
11. Eckbreth, A.C. "Recent advances in laser diagnostics for temperature and species concentration in combustion"; *18th Int Symp on Combust*; 1471-1488; 1981.
12. Marko, K.A. and Rimai, L. "Space and time-resolved coherent anti-Stokes Raman spectroscopy for combustion diagnostics"; *Optic Soc Am* 4:7:211-213; 1979.
13. Davis, L.C.; Marko, K.A. and Rimai, L. "Angular distribution of coherent Raman emission in degenerate four-wave mixing with pumping by a single diffraction coupled laser beam: Configurations for high spatial resolution"; *Appl Optics* 20:9:f1685-1690; 1981.
14. Bjorklund, G.C. "Effects of focussing on third-order non-linear processes in isotropic media"; *IEE J Quantum Electron* Qe-f11:6:287-296; 1975.
15. Owyong, A. and Rahn, L.A. "IEEE/OSA Conf. on laser engineering and applications, Digest of CLEA papers; *IEEE J Quantum Electron* Qe-15:25D-26D; 1976.

16. Tolles, W.M.; Nibler, J.W.; McDonald, J.R. and Harvey, A.B. "A review of the theory and application of coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS)"; *Appl Spectrosc* 31:4:253-271; 1977.
17. Eckbreth, A.C. and Hall, R.J. "CARS thermometry in a sooting flame"; *Combust and Flame* 36:87-98; 1979.
18. Anderson, H.C. and Hudson, B.S. "Coherent anti-Stokes Raman scattering"; *J Mol Spectrosc* 5:142-201; 1978.
19. Druet, S.A. and Taran, J.P.E. "CARS spectroscopy"; *Progr Quantum Electron* 7:1; 1981.
20. Dewitt, R.N., Harvey, A.B. and Tolles, W.M. "Theoretical development of third-order susceptibility as related to coherent anti-Stokes Raman spectroscopy (CARS)"; *Naval Res Lab Rep* NRL-MR-3260; 1976.
21. Yuratich, M.A. "Effects of laser linewidth on CARS"; *Molec Phys* 38:625; 1979.
22. Parameswaran, T. "Program report for CARS (coherent anti-Stokes Raman spectroscopy) project at CANMET"; *Final Rep for DSS Contract No. 23375-84-7731*; October 1985.
23. Teets, R.E. "Accurate convolutions of CARS spectra"; *Optics Letters* 9:226; 1984.
24. Kim, H. "Computer programming in physical chemistry laboratory: Least-squares analysis"; *J Chem Educ* 47:2:120-122; 1970.
25. Eckbreth, A.C., Dobbs, G.M., Stufflebean, J.H. and Tellex, P.A. "CARS temperature and species measurements in augmented jet engine exhausts"; *AIAA Pap No. 83-1294*; Presented at AISS/ASME/SAE 19th Joint Propulsion Conf; Seattle, WA; June 27-29, 1983.

Tableau 1 – Caractéristiques du réseau holographique

Caractéristique	Spécification
Dimensions	20,32 cm de diamètre
Distance focale objet	790 mm
Distance focale image	820 mm
Nombre d'ouverture (f:)	4,5
Dispersion	5,3 Å/mm à 475 nm
Plan de dispersion	horizontal
Résolution	1,5 cm1 pour une image circulaire de 50 $\mu$ m
Efficacité à 475 nm	50 % (sans polarisation)

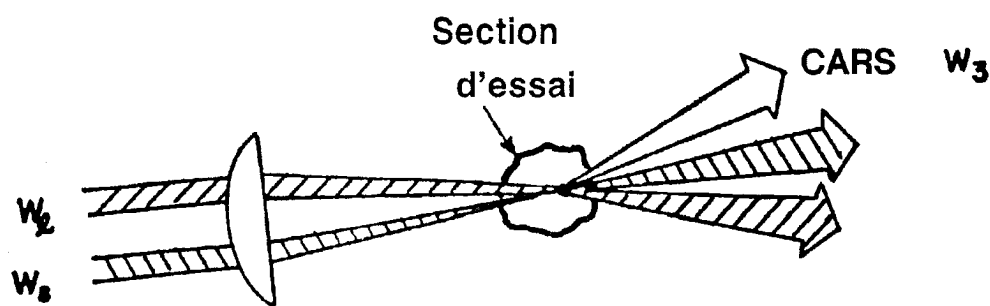


Fig. 1 – Schéma de production d'un signal Raman anti-Stokes cohérent



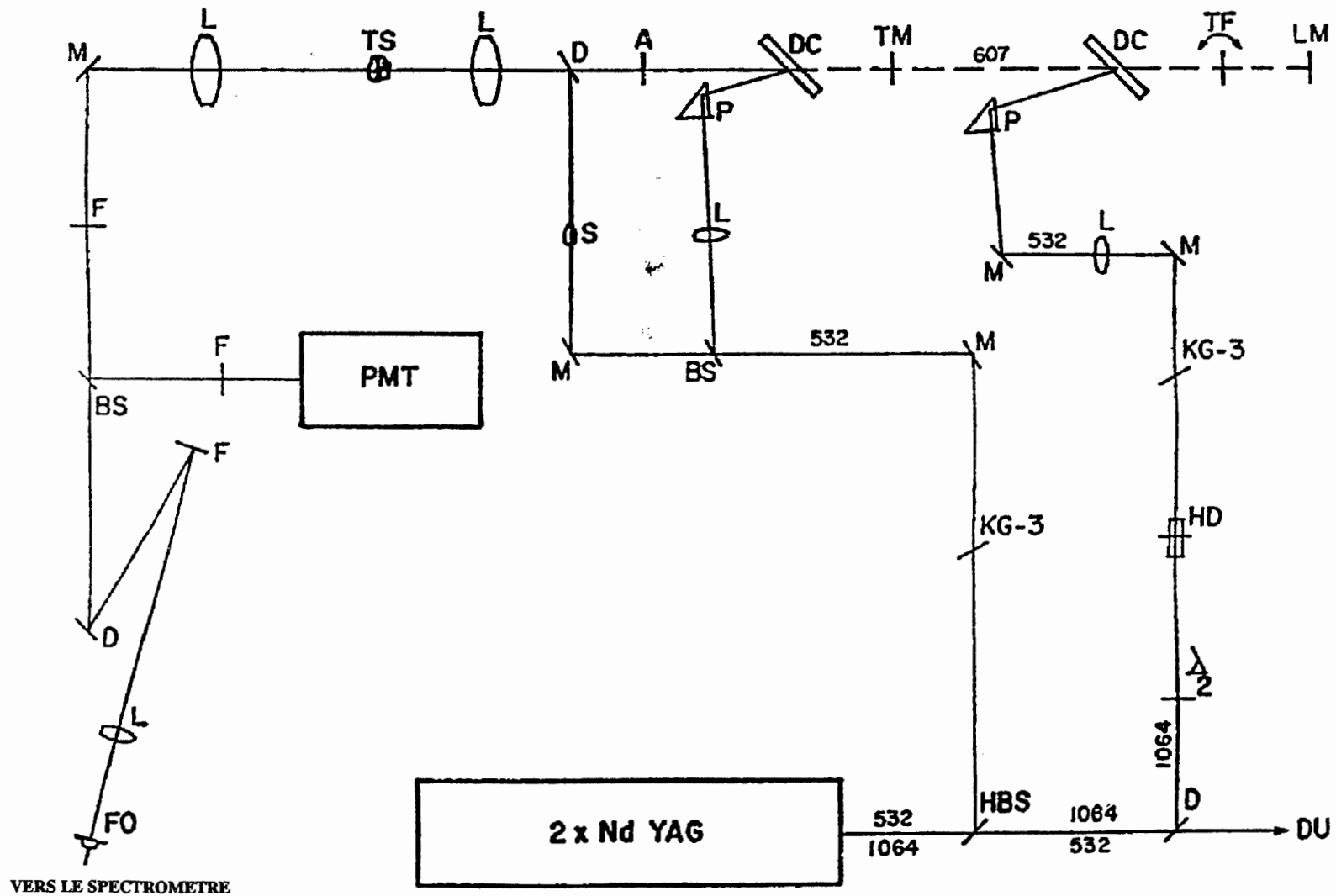


Fig. 2 – Montage optique d'une expérience de spectroscopie CARS

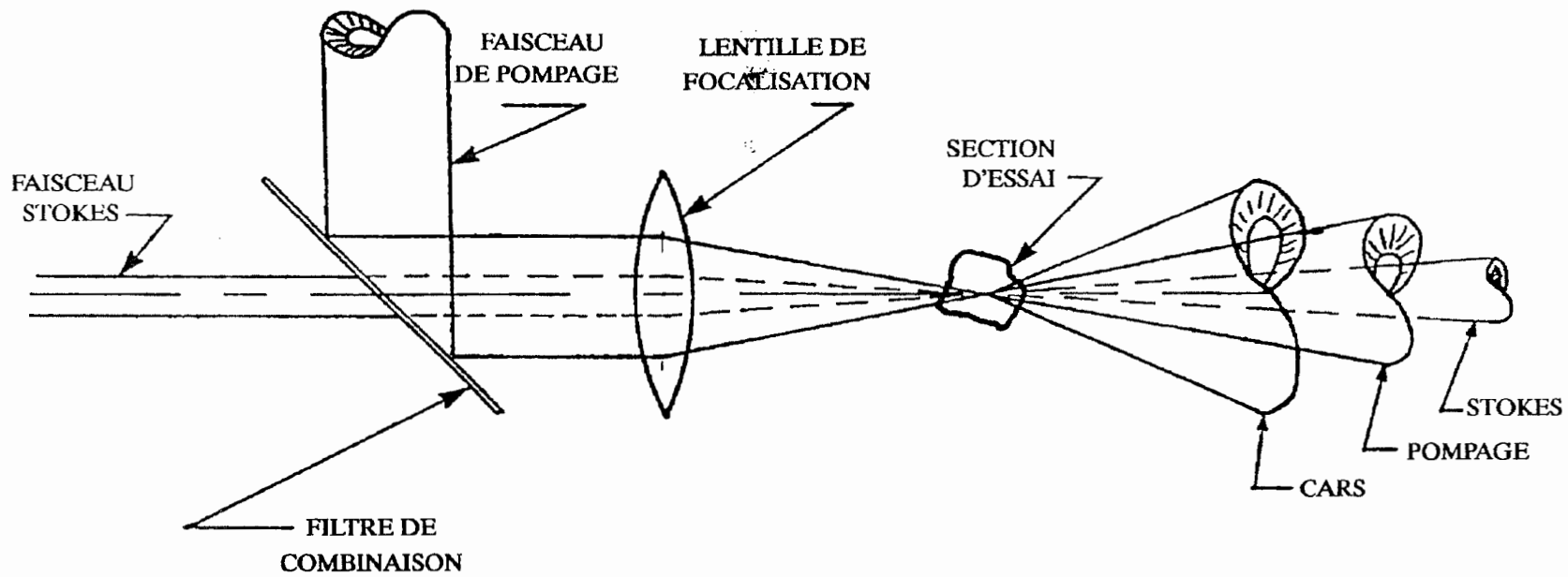
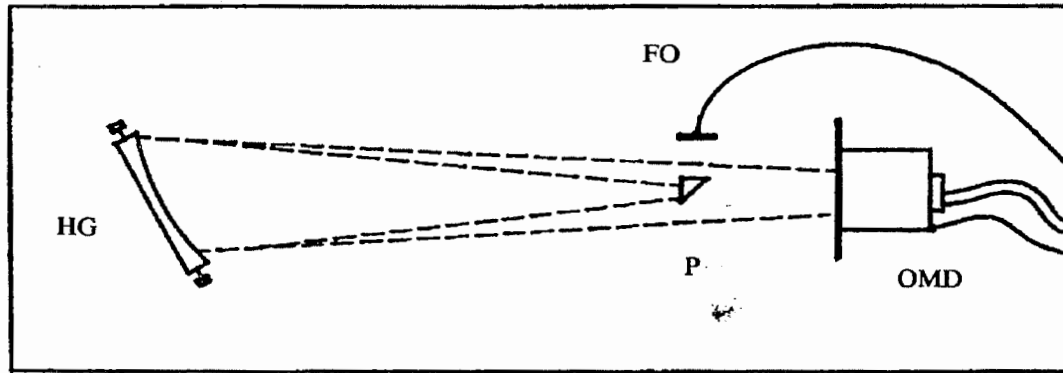
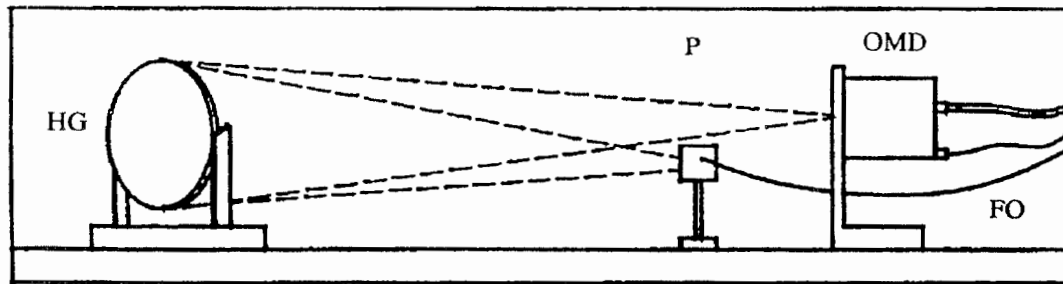


Fig. 3 - Positions relatives des faisceaux CARS, de pompage et Stokes



VUE DE DESSUS



VUE DE COTÉ

- OMD - DÉTECTEUR MULTICANAL OPTIQUE
- P - PRISME
- FO - FIBRE OPTIQUE
- HG - RÉSEAU HOLOGRAPHIQUE

Fig. 4 - Schéma du spectromètre à réseau holographique

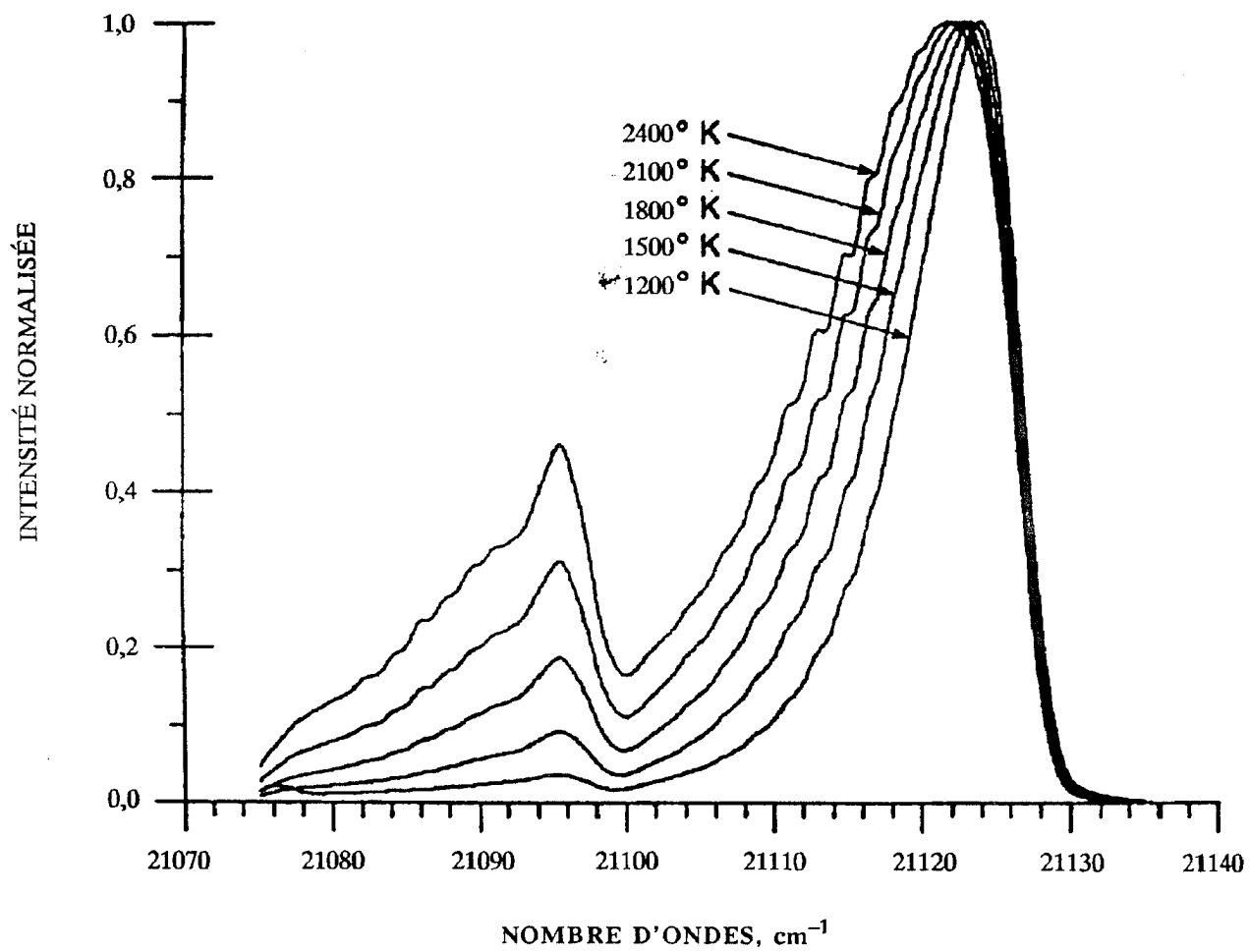


Fig. 5 - Effet de la température sur le profil spectral CARS pour les transitions vibrationnelles pures (Q-branch) de l'azote

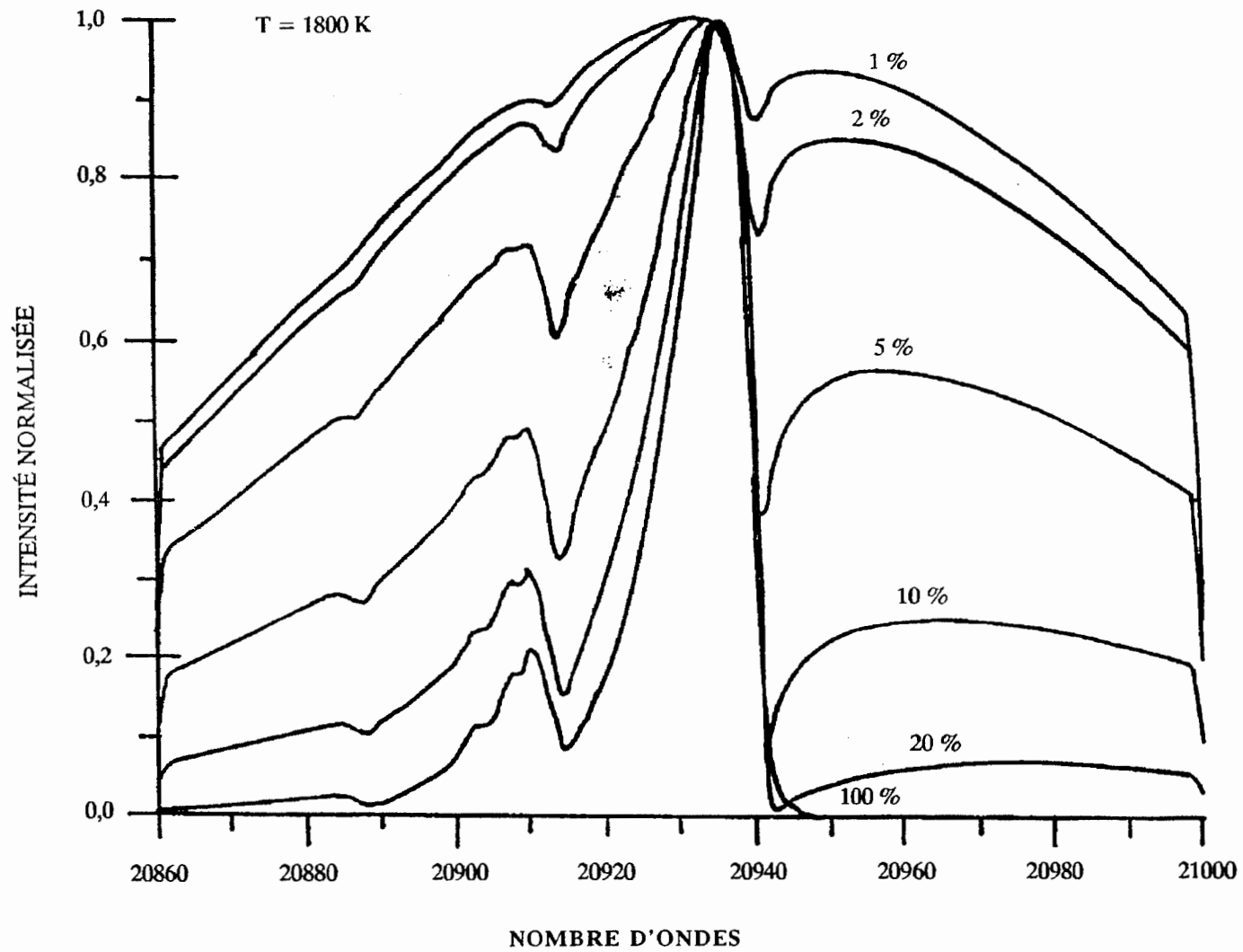


Fig. 6 - Variation du spectre CARS du CO en fonction de la concentration

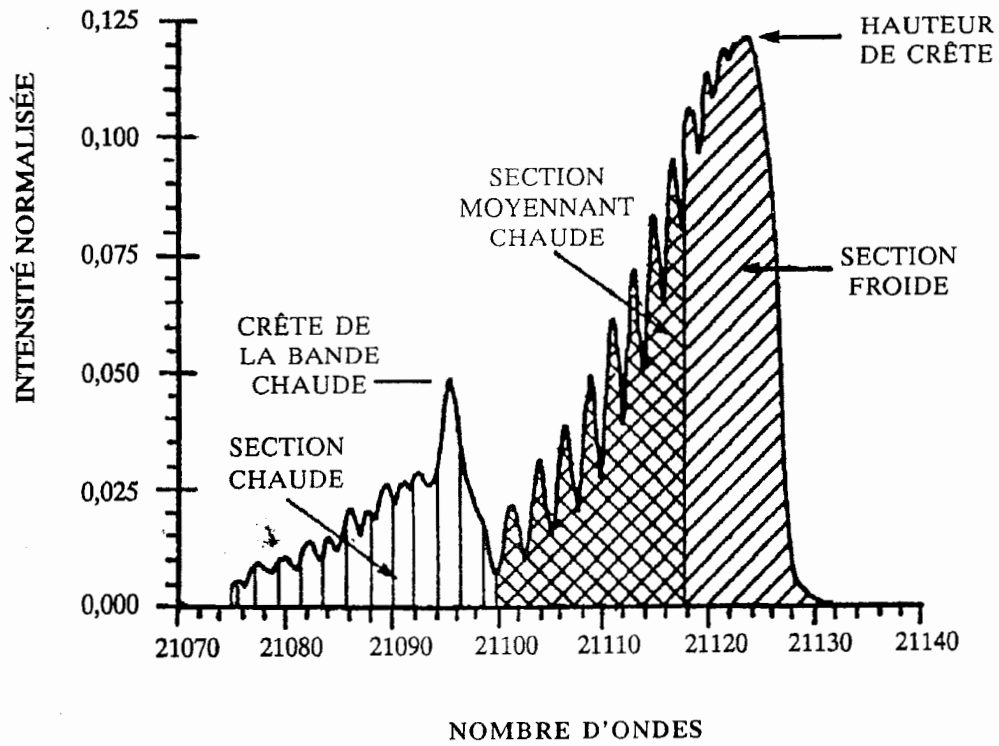


Fig. 7 - Paramètres des algorithmes d'ajustement rapide

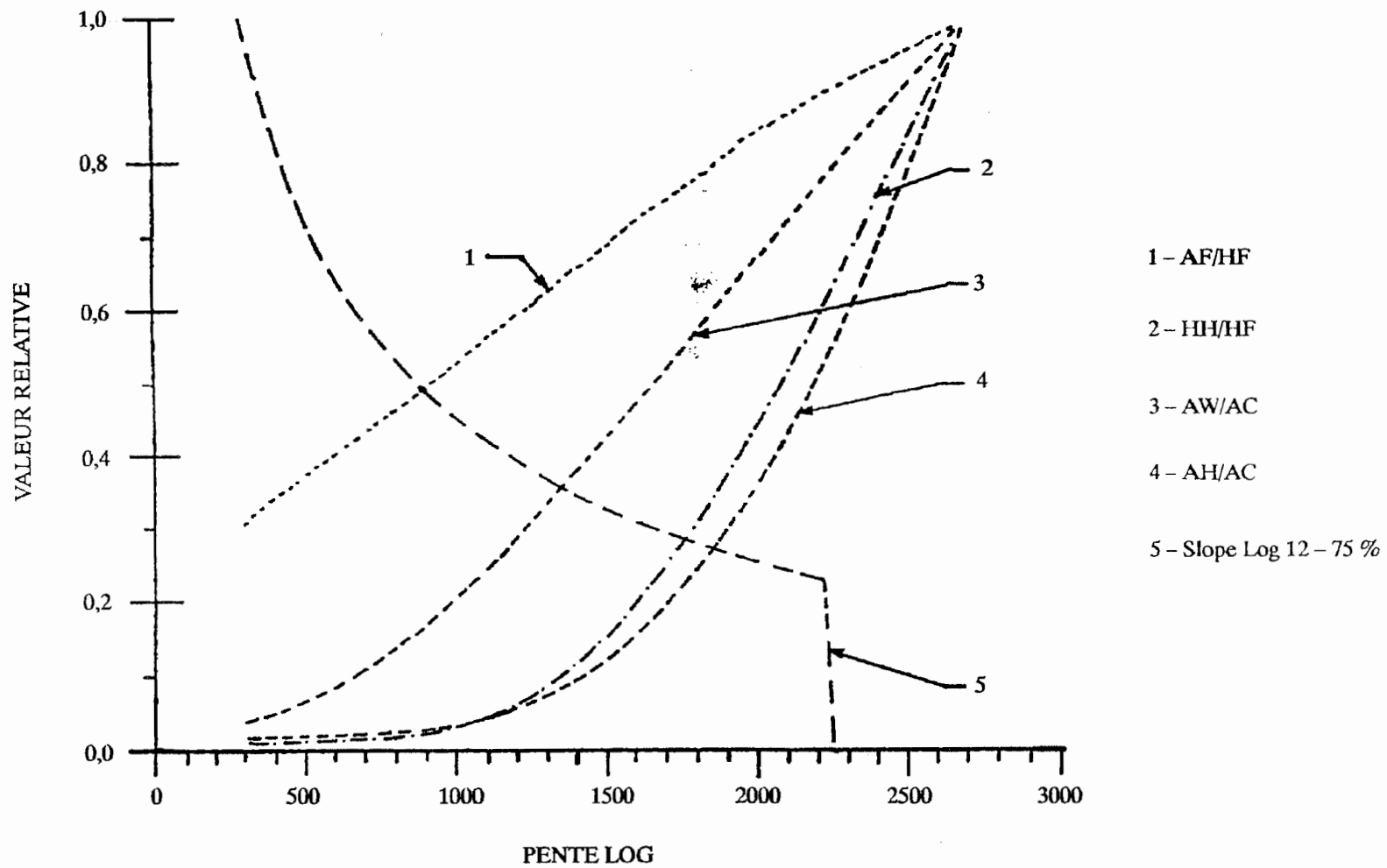


Fig. 8 - Variation des paramètres d'ajustement rapide en fonction de la température

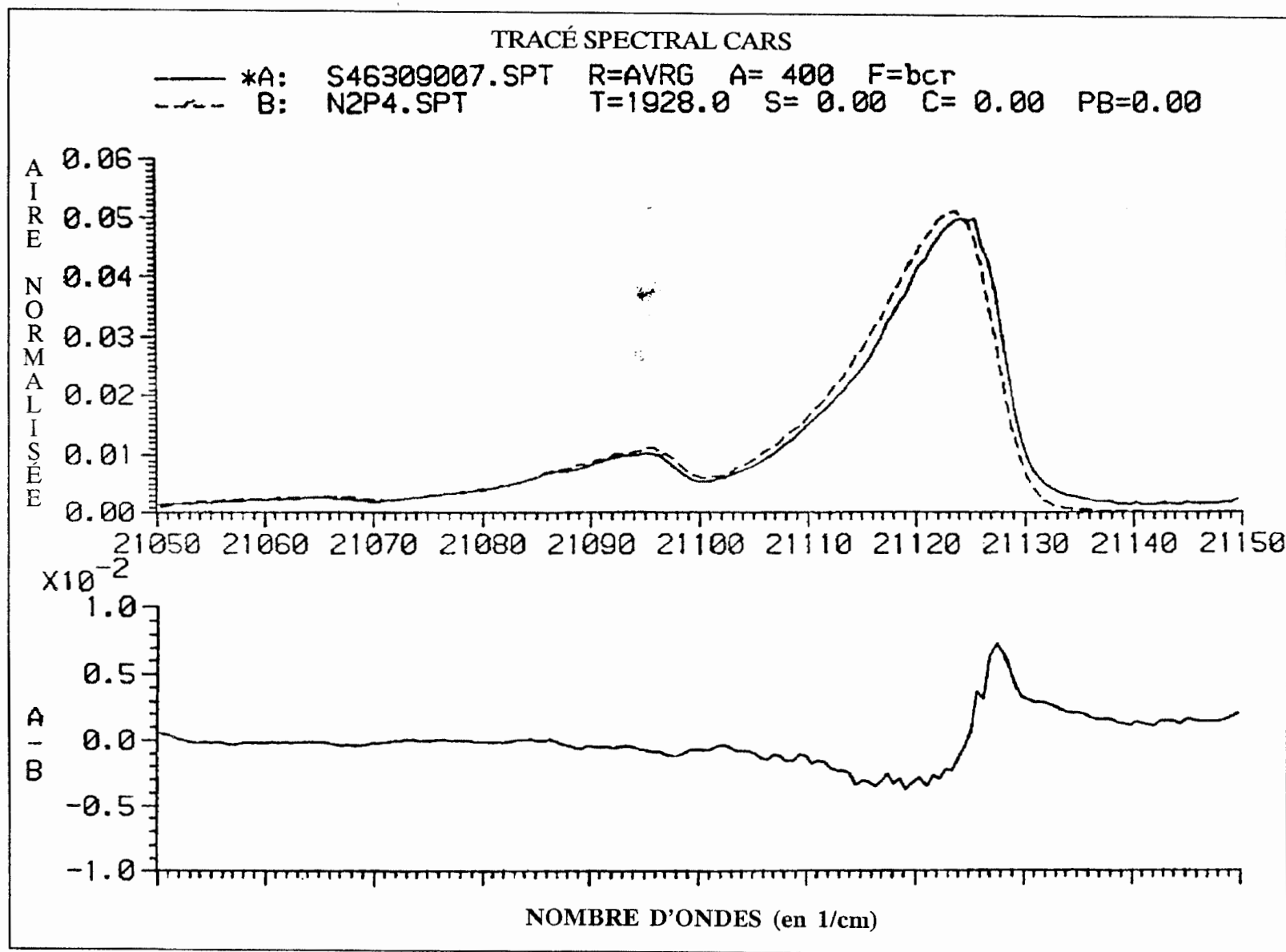


Fig. 9 – Exemple de figure produite par le logiciel d'affichage