

# Lasers nanosecondes monomodes et TALIF (Two-photon Absorption Laser Induced Fluorescence)



Laboratoire de Physique des Plasmas

Cyril Drag



**SORBONNE  
UNIVERSITÉ**  
CRÉATEURS DE FUTURS  
DEPUIS 1257



## 1) Lasers nanosecondes monomodes

L. Cabaret, A. Jucha et R. Leroux  
(LAC)

## 2) TALIF (Two-Photon Absorption Laser Induced Fluorescence) sur O

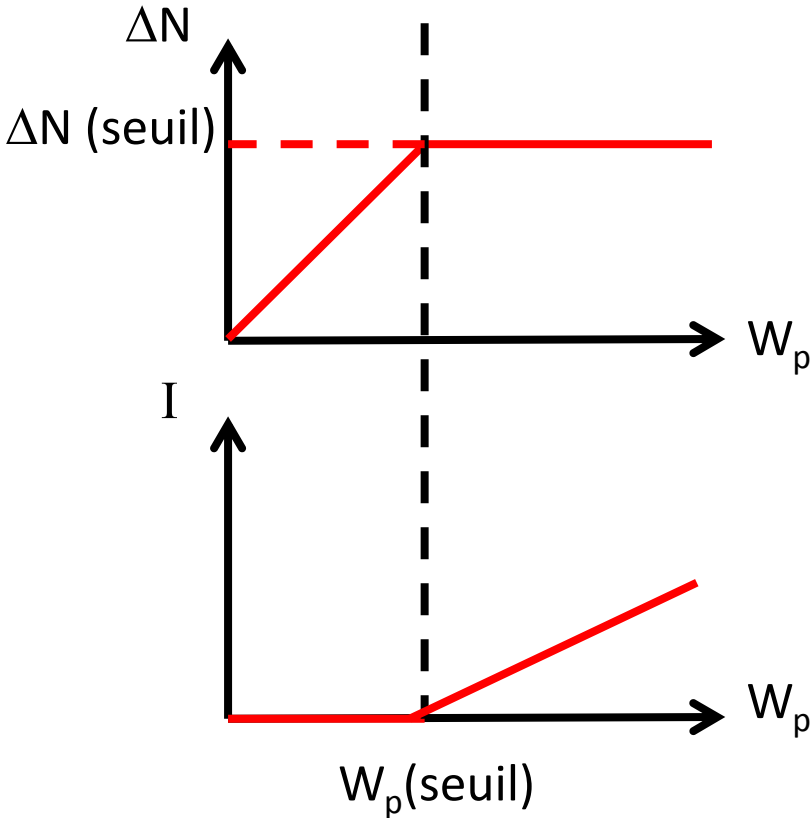
J.P. Booth, O. Guaitella, C. Blondel  
A. Chatterjee, M. Foucher, P. Lottigier, D. Marinov et A.-S. Morillo-Candas  
(LAC et LPP)

## 3) Mesure de la section efficace d'absorption à deux photons du Xe

Les mêmes +  
J. Alkhoury, N. Romeo, T.-L. Chng  
(LPP)

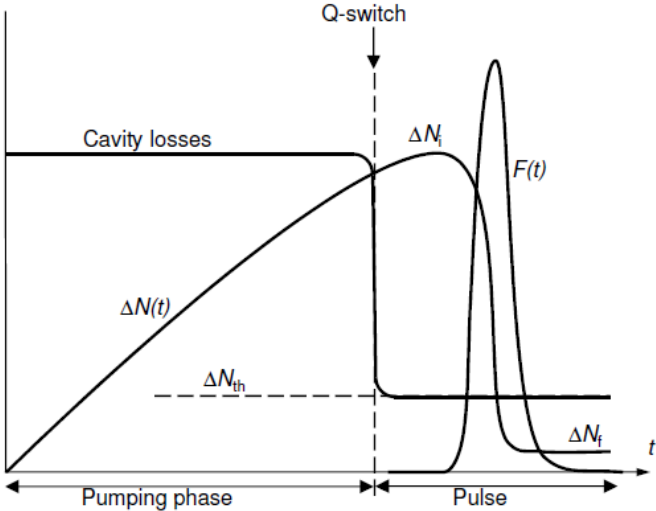
# Lasers continus et lasers nanosecondes (“Q-switch”)

Lasers CW (régime stationnaire)



$P \approx 1 \text{ W}$

Lasers nanosecondes (« Q-switch »)

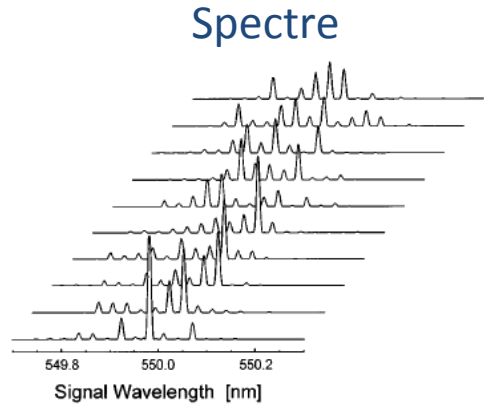


$E \approx 1 \text{ mJ}, t = 10 \text{ ns}, P_c \approx 100 \text{ kW}$

A.E. Siegman, Lasers

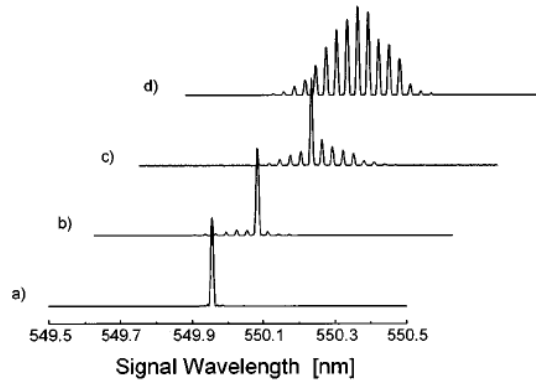
# Laser nanoseconde et injection

**Non-injecté : multimode**



A. Fix and R. Wallenstein, *JOSA B* **13**, 2484 (1996)

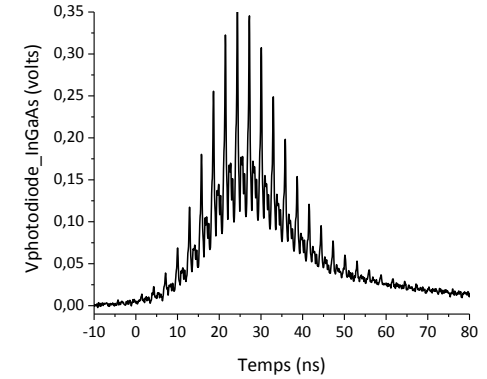
**Injecté**  
Limitée par « **transformée de Fourier** », la résolution est liée à l'inverse de la durée d'impulsion.



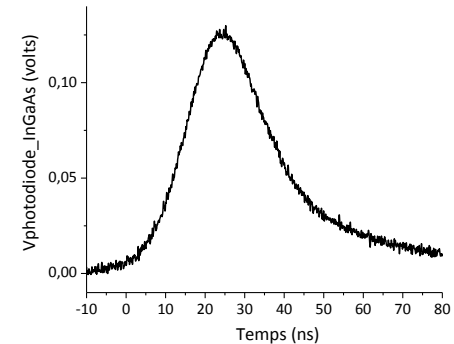
Bon compromis la **puissance** et la **résolution spectrale** :

- Puissance crête ~ 100 kW – 1MW pour quelques mJ dans 10 ns (conversion NL, multiphotonique)
- Largeur spectrale est d'environ 10 MHz pour une impulsion de 20 ns

Evolution temporelle



L. Cabaret and C. Drag, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **37**, 65 (2006)



# Exemples sur H (colorant "compulsé" comme milieu amplificateur)

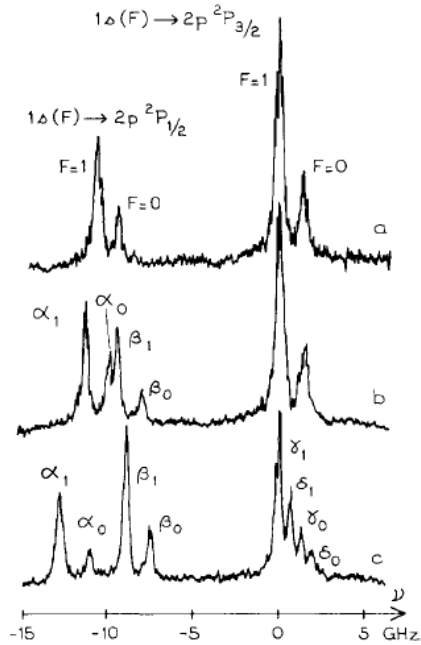


Fig. 2. Recorded structure of the Lyman  $\alpha$  transition for different values of the electric field: a, 0 V/cm; b, 425 V/cm; c, 850 V/cm. The transitions are labeled by  $\alpha_F, \beta_F, \gamma_F, \delta_F$  in which  $F=0, 1$  indicates the 1s hyperfine level and  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  the  $n=2$  split levels; the identification of the  $n=2$  levels is the following:  $\alpha: |^2P_{1/2}\rangle, \beta: |^2S_{1/2}\rangle, \gamma: |^2P_{3/2}; |m_j|=3/2\rangle, \delta: |^2P_{3/2}; |m_j|=1/2\rangle$ .  $\nu$  is the frequency detuning from the (unshifted)  $\gamma_1$  transition.

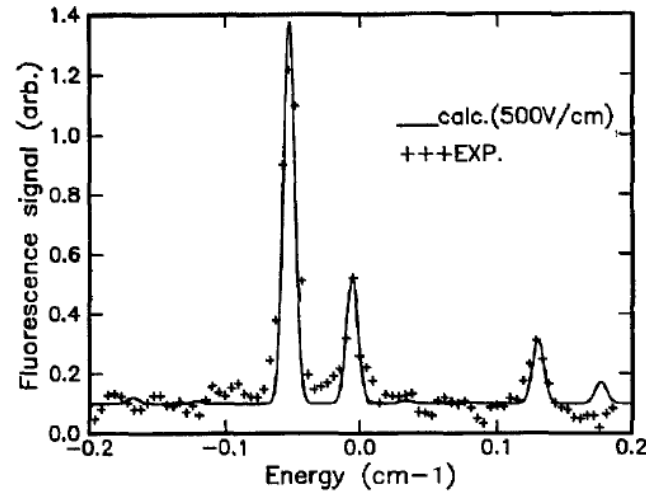


Fig. 3. Comparison between experimental and calculated two-photon absorption spectra shown in Figs. 1 and 2. The experimental spectrum is recorded at 8 mm from the cathode. The simulated spectrum is calculated with an applied electric field of 500 V/cm. In all the figures, the "energies" on the x axis refer to the energy gap between the ground and excited levels coupled by the two-photon transition.

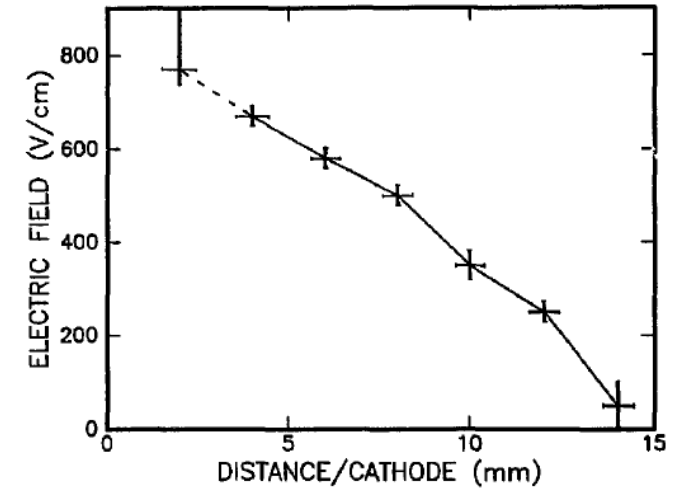
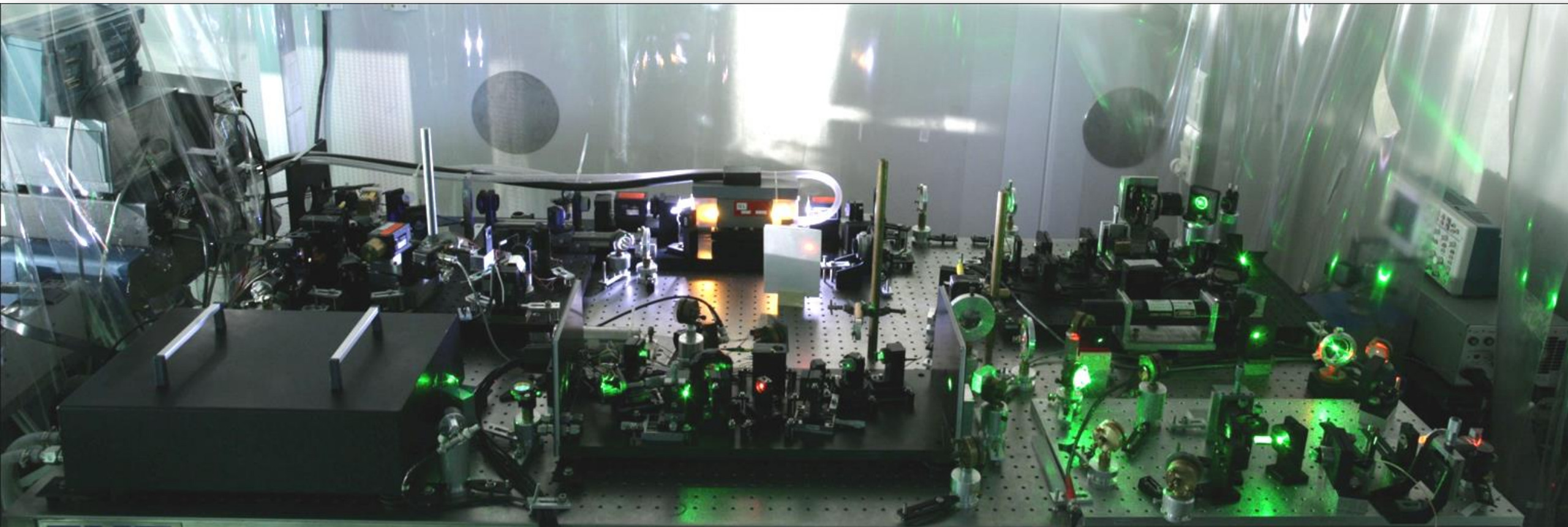


Fig. 4. Electric field profile in a 0.3 Torr, 650 V DC discharge in pure  $H_2$  determined from Doppler-free two-photon  $n=1 \rightarrow n=3$  Stark spectroscopy. At 2 mm from the cathode the spectrum shown in Fig. 1 can only give a lower bound to the electric field.

J.P. Booth, J. Derouard, M. Fadlallah, L. Cabaret, J. Pinard,  
*Opt. Comm.* **132**, 363 (1996)

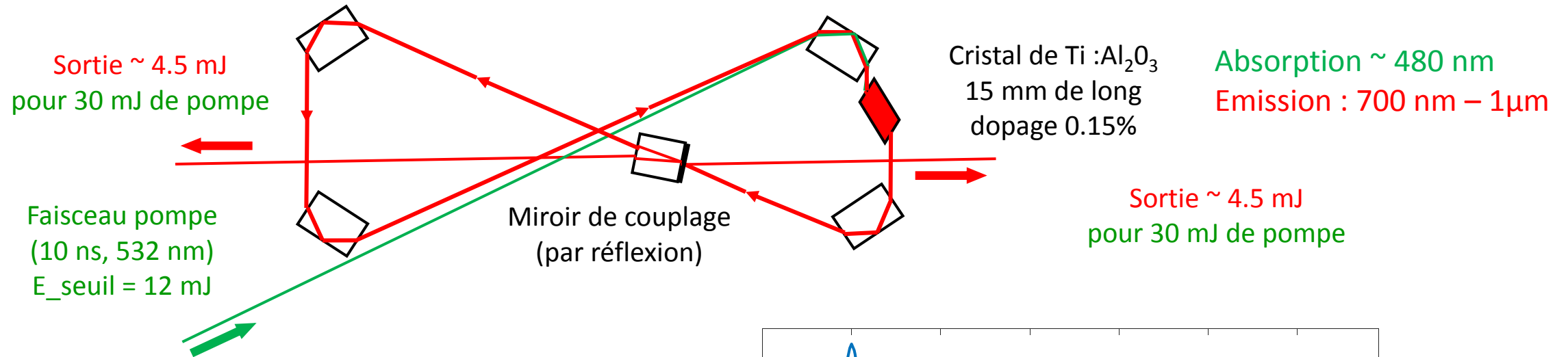
L. Cabaret, C. Delsart et C. Blondel, *Opt. Comm.* **61**, 116 (1987)





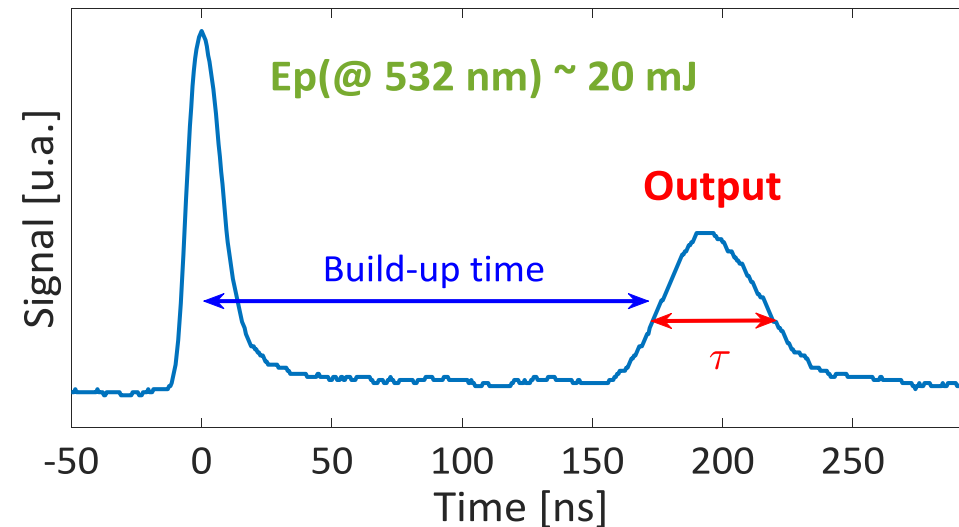
# Cavité en anneau Ti:Saphir : régime de "gain switch"

4 prismes (angle de Brewster) => miroirs achromatiques



"gain switch" : similaire au Q-switch  
Ici le gain laser est rapidement modifié  
à sa valeur haute ( $t_p \sim 10$  ns)

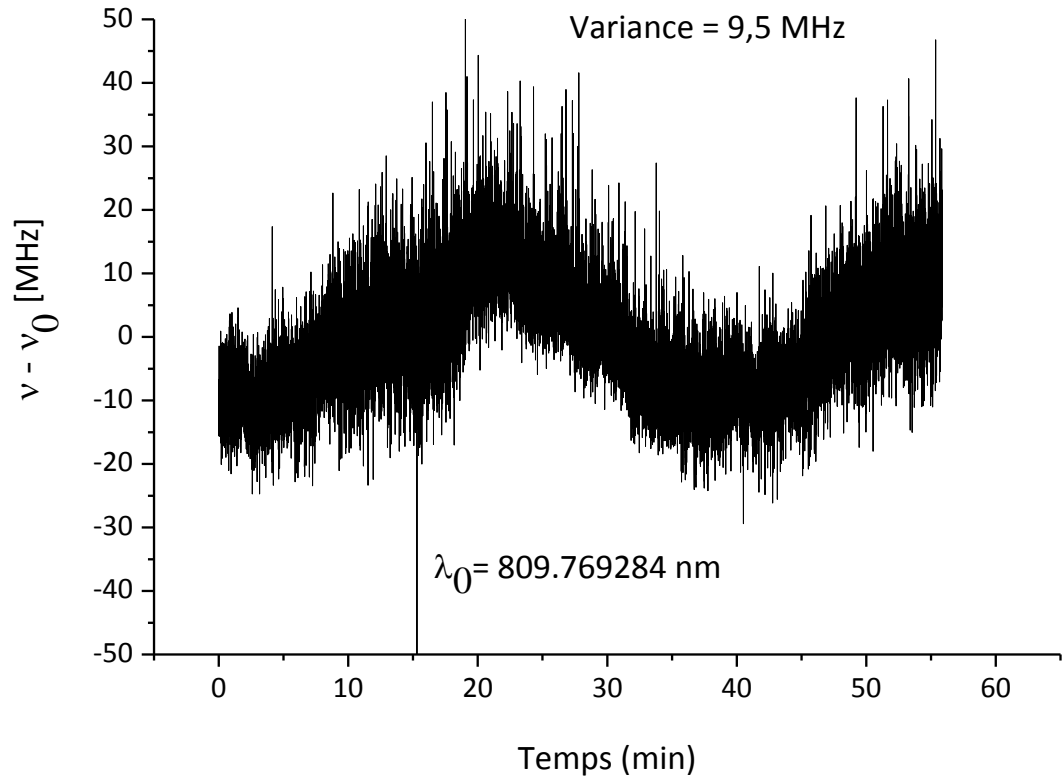
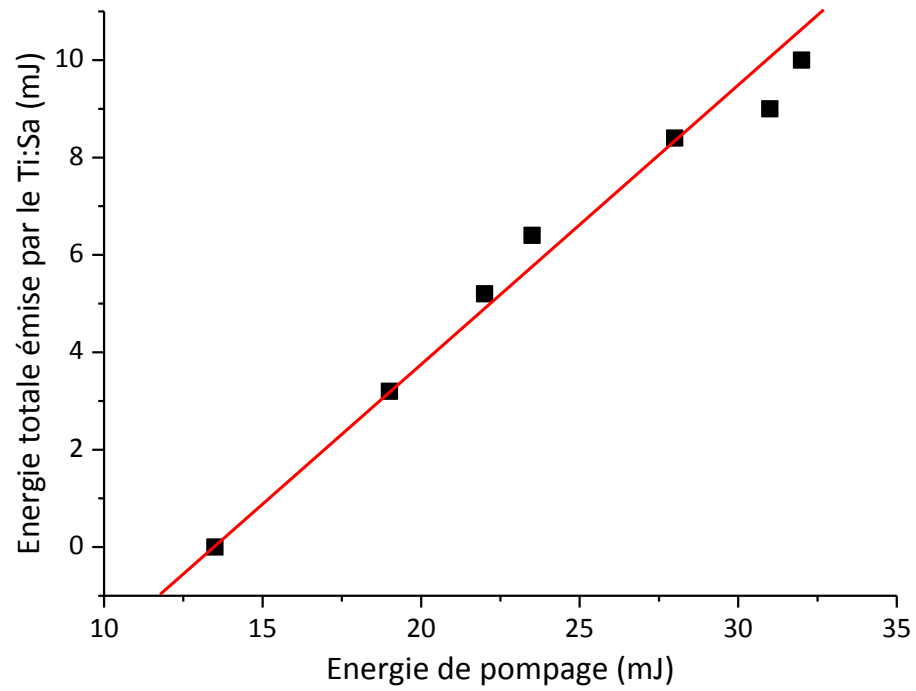
Une grande quantité d'énergie est déposée  
dans le milieu à gain avant que l'énergie ne soit  
extraite sous la forme d'une impulsion laser.



Temps construction, durée impulsion = f (énergie de pompage)

L. Cabaret & C. Drag, *Eur. Phys. J. App. Phys.* **51**, 20702 (2010)

# Cavité Ti:Saphir en anneau injectée: performances



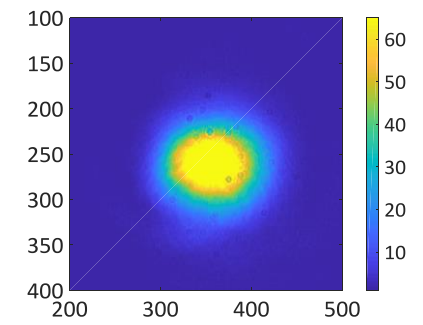
$$eA(^{127}\text{I}) = 24\,672,87 (3) \text{ cm}^{-1} = 3,059045 (4) \text{ eV}$$

R.J. Peláez, C. Blondel, C. Delsart and C. Drag, *J. Phys. B* **42**, 125001 (2009)

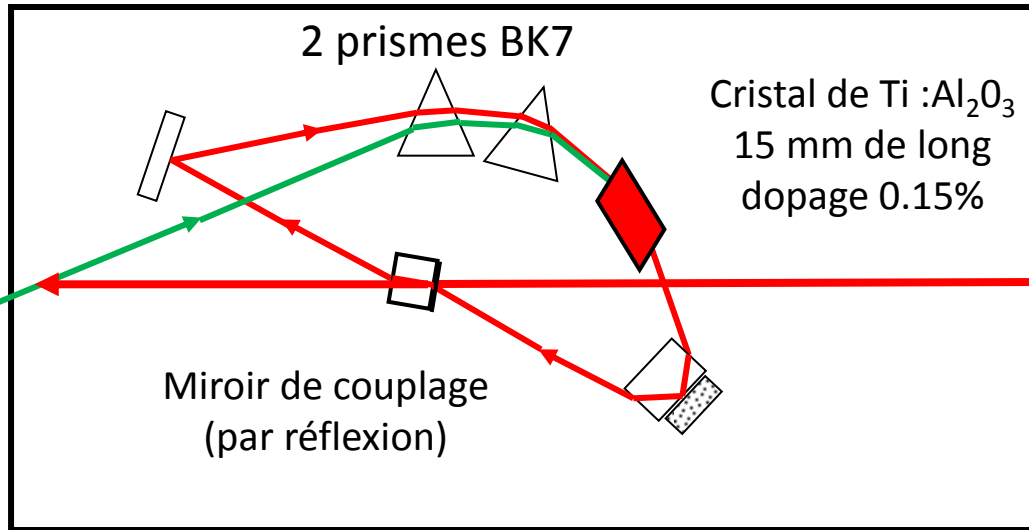
⇒ Mais avec cette cavité, il est difficile d'injecter le laser loin du maximum d'émission du Ti:Saphir ( $\sim 790 \text{ nm}$ ), ainsi nous avons construit une cavité avec **2 prismes**



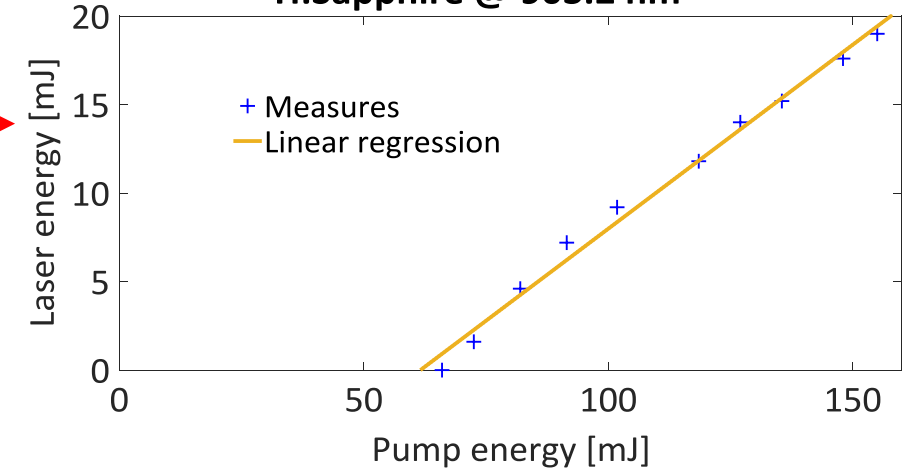
# Cavité Ti:Saphir en anneau avec 2 prismes



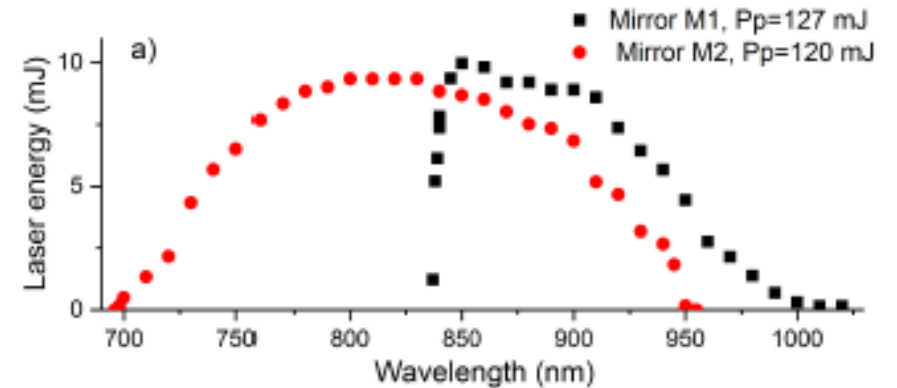
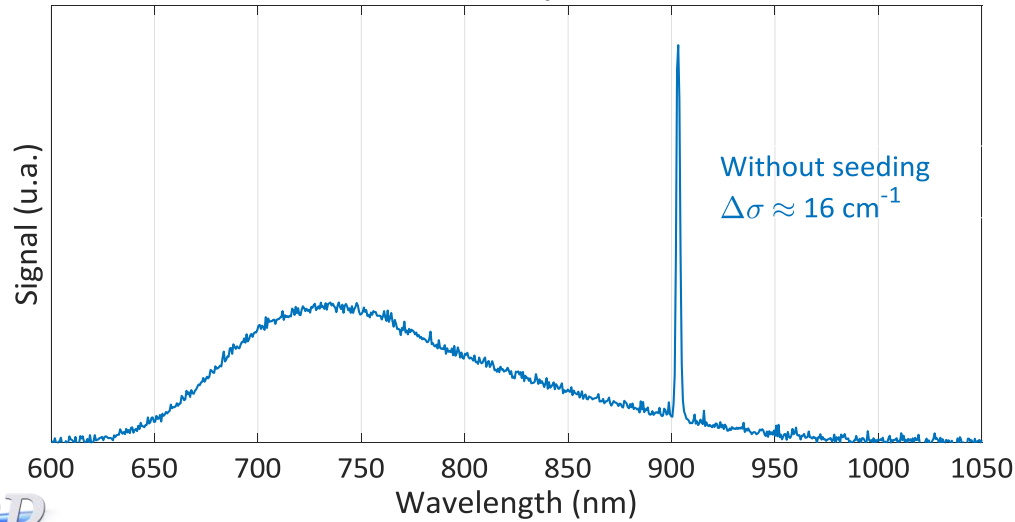
Faisceau de pompe  
(10 ns, 532 nm)  
commercial  
Quantel CFR200



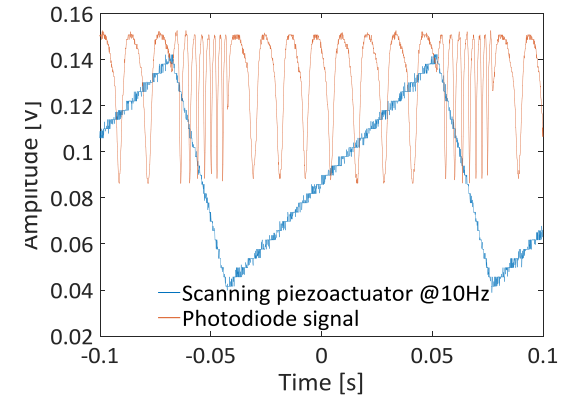
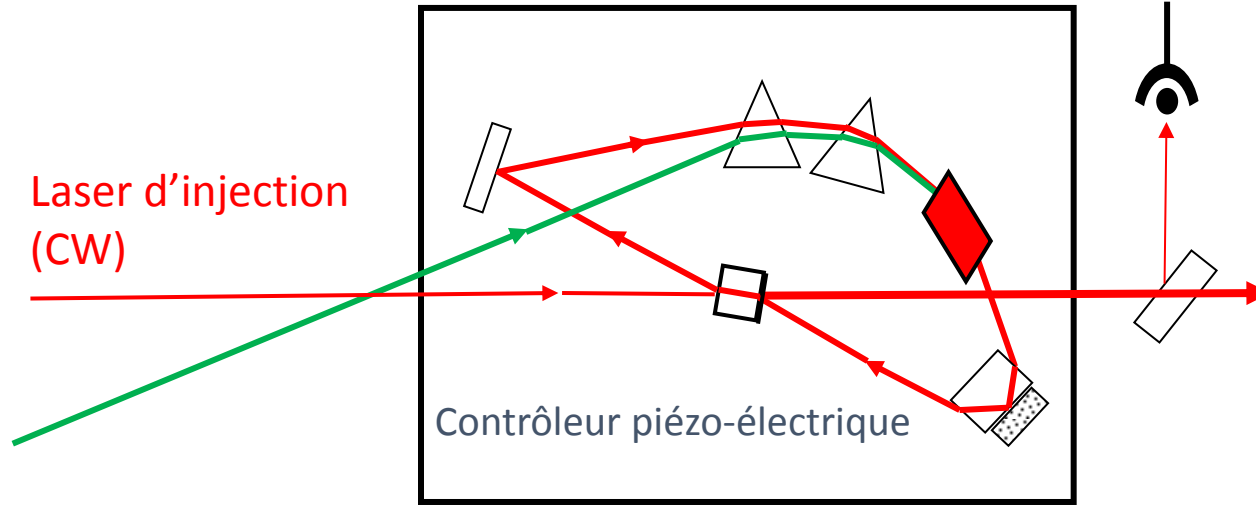
Ti:Sapphire @ 903.2 nm



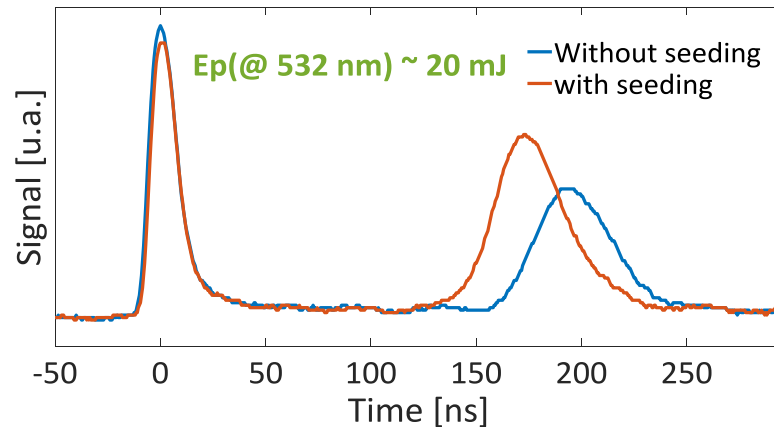
Low resolution spectrometer



# Injection de la cavité Ti:Saphir

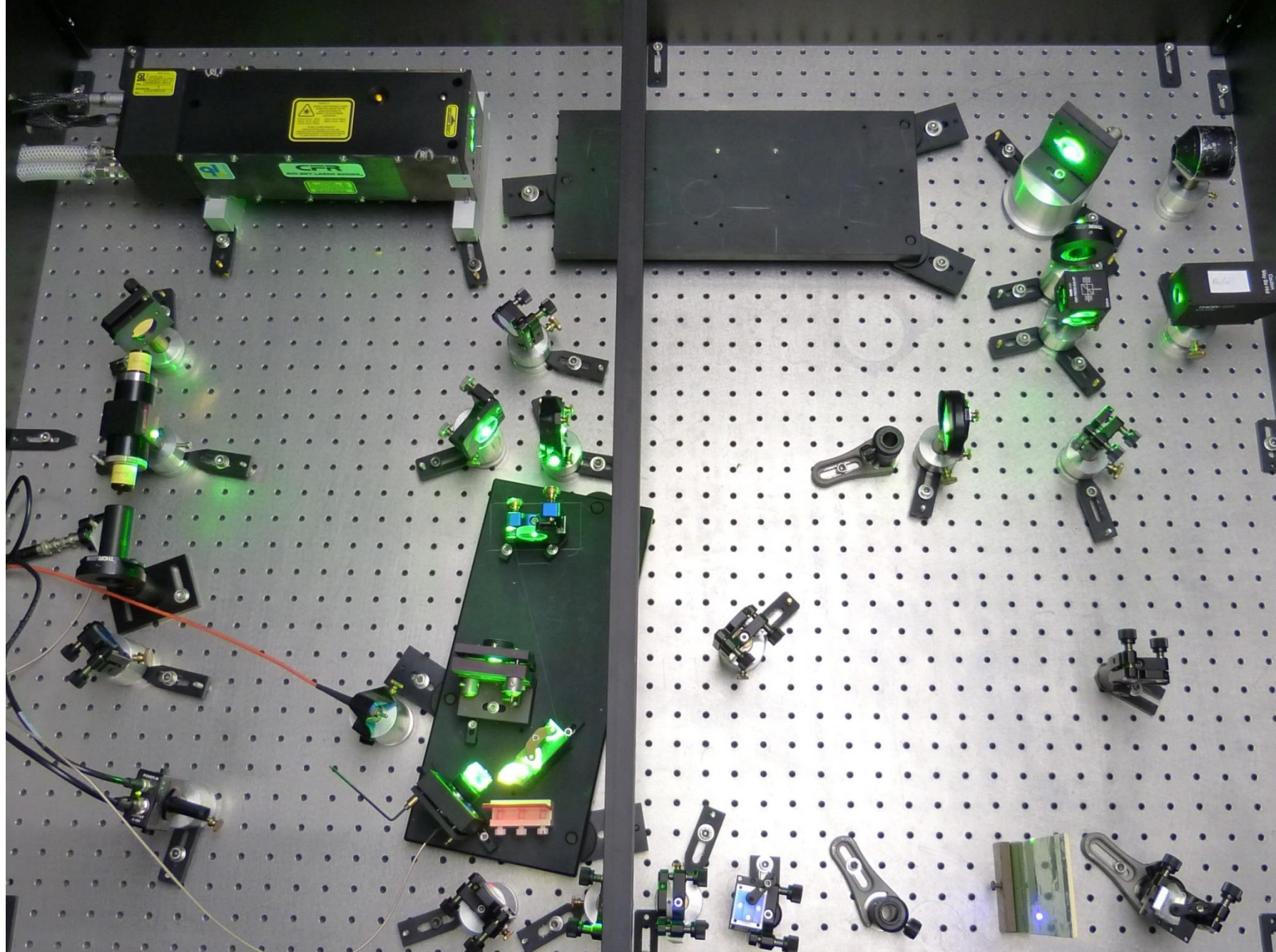


+ électronique maison



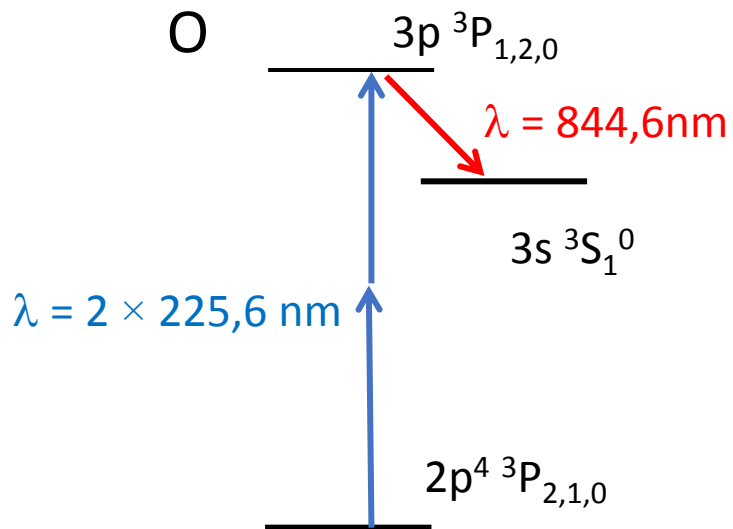
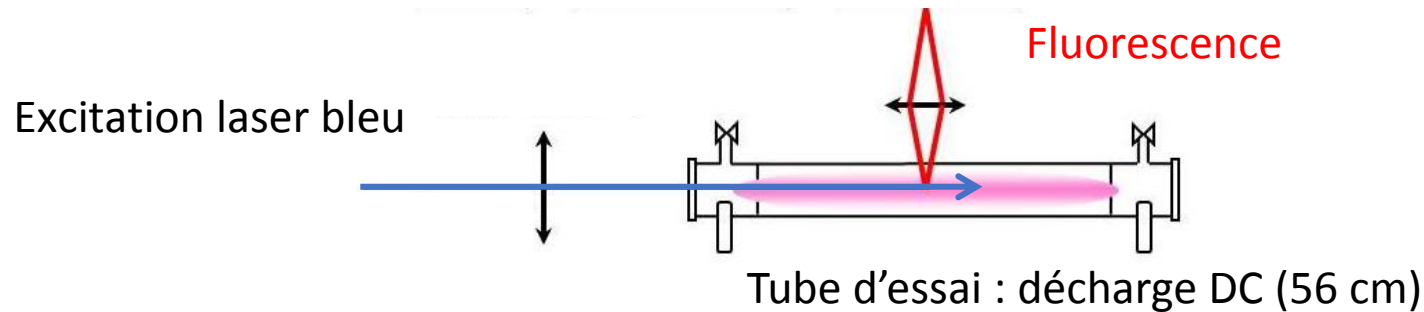
3 façons de vérifier l'injection :

- Réduction de la **largueur spectrale** (même avec un spectromètre basse résolution).
- Réduction du **temps de construction** de l'impulsion.
- L'**énergie** croît d'un facteur 2 dans la direction du laser d'injection (et il n'y a plus d'énergie dans l'autre direction).



# Diagnostiques optiques dans des plasmas $O_2$ , $CO_2$

- ❑ On veut connaître : température, densité, processus collisionnel
- ❑ TALIF technique : **Two-photon Absorption Laser Induced-Fluorescence**



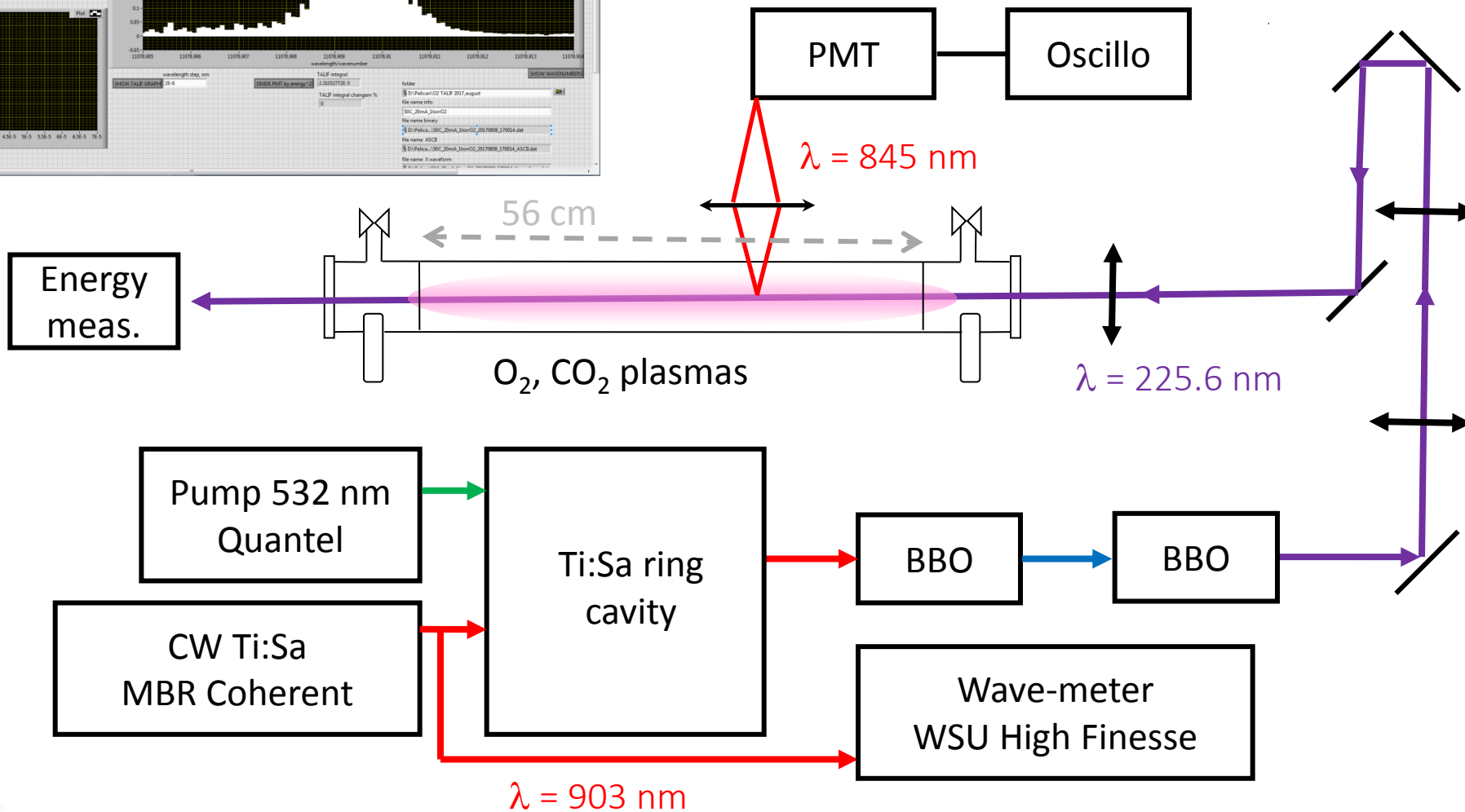
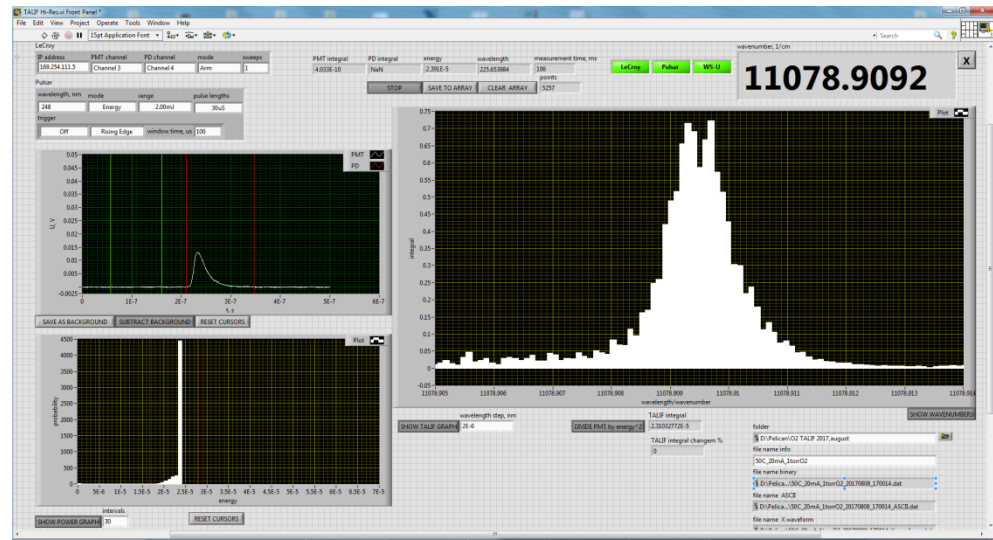
Applicable pour un grand nombre **d'atomes et molécules** d'intérêt pour la technologie des plasmas : H ( $2 \times 205\text{ nm}$ ), Xe ( $2 \times 225\text{ nm}$ ), N ( $2 \times 206\text{ nm}$ ), Kr ( $2 \times 204\text{ nm}$ ), CO ( $2 \times 217\text{ or }230\text{ nm}$ ), Cl ( $2 \times 232\text{ nm}$ )...

Les longueurs d'onde d'excitation sont dans le domaine spectral du **Ti:Saphir quadruplé** ( $225\text{ nm} \times 4 = 900\text{ nm}$ )

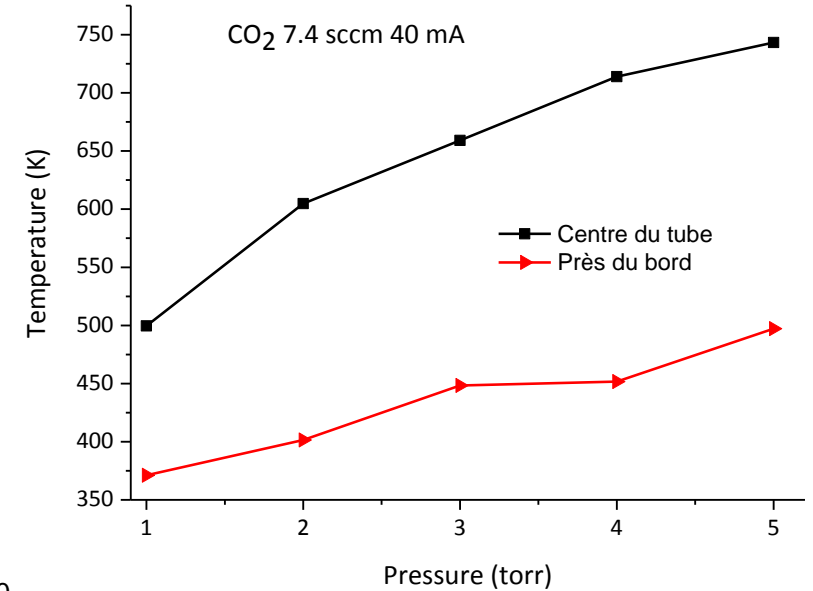
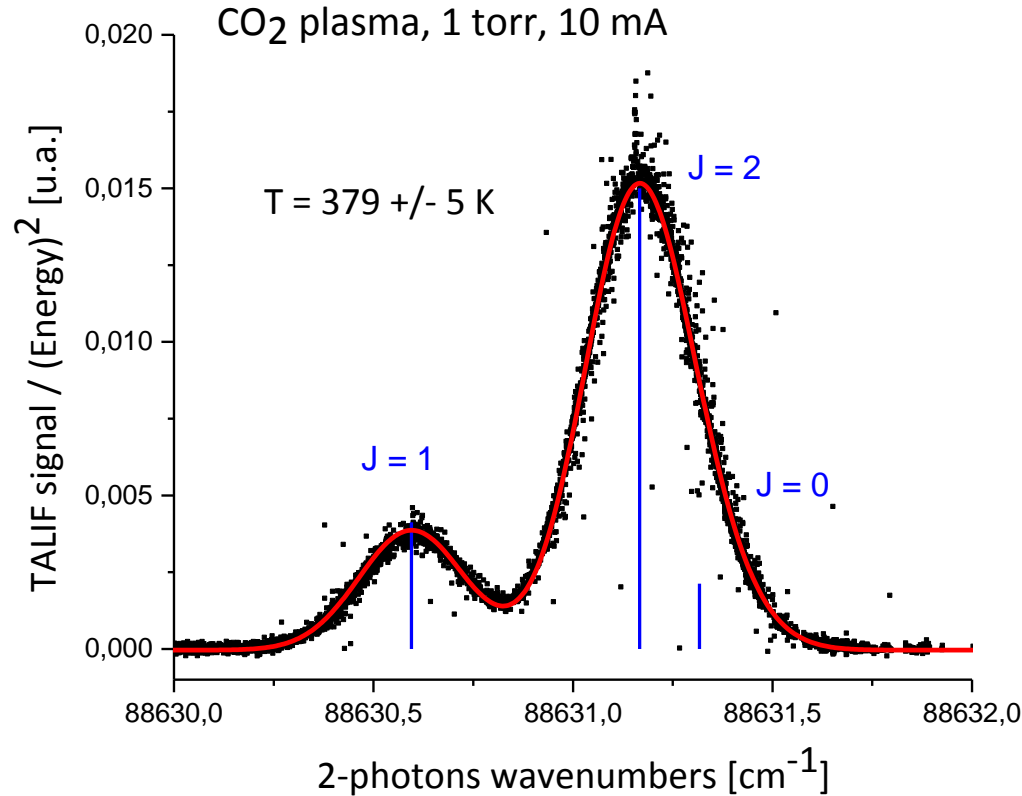
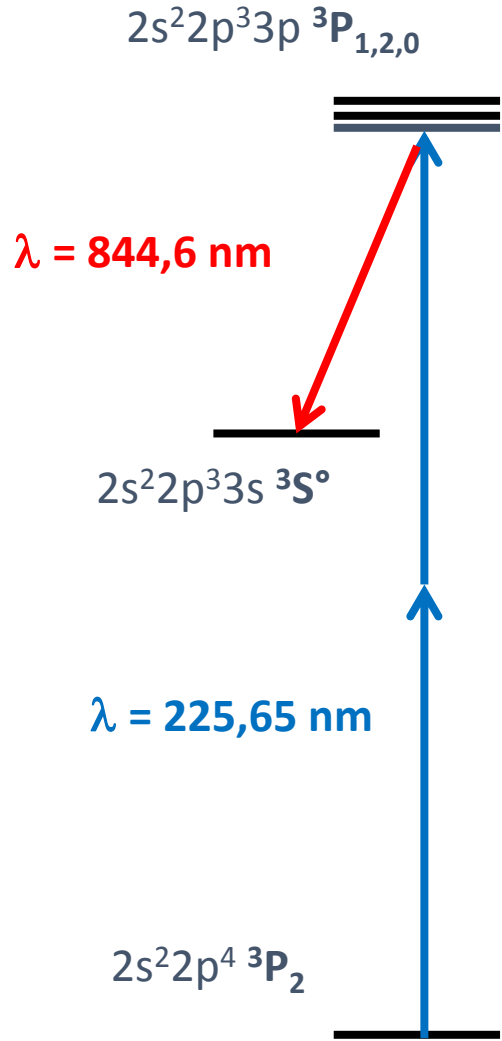


# Montage expérimental

(programme LabVIEW développé par Sergey Zyryanov)



# Mesures de température dans une décharge de CO<sub>2</sub>

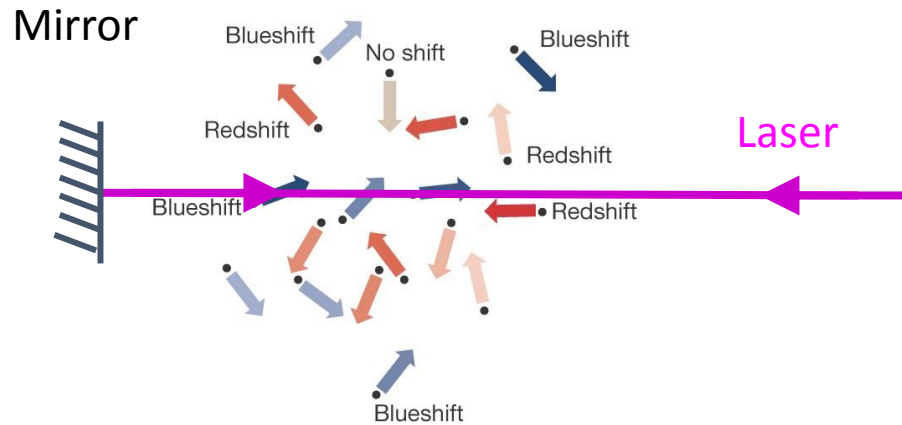


Analyse de la largeur Doppler :  
 mesure **locale** de la température avec une précision  
 de  $\pm 10 \text{ K}$  dans un domaine 200-600 K

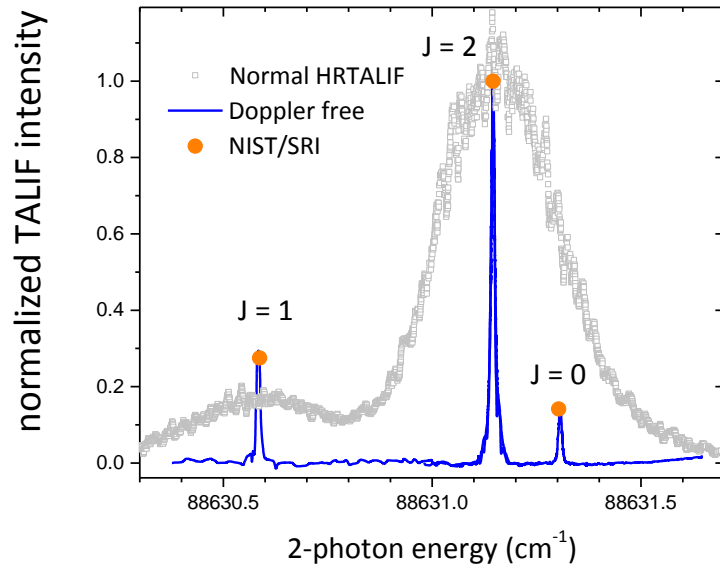
J.P. Booth & al, *J. of Instr.* **10**, C11003 (2015)

# Configuration sans effet Doppler: mesures spectroscopiques (O I)

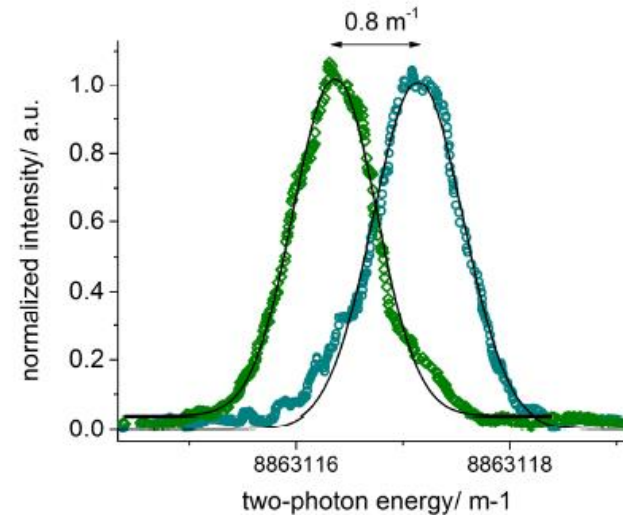
G. Grynberg & B. Cagnac, *Rep. Prog. Phys.* **40**, 791 (1977)



$$h\nu \left(1 - \frac{v_x}{c}\right) + h\nu \left(1 + \frac{v_x}{c}\right) = 2 h\nu$$



D. Marinov, J.-P. Booth, C. Drag & C. Blondel,  
*J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* (2017)

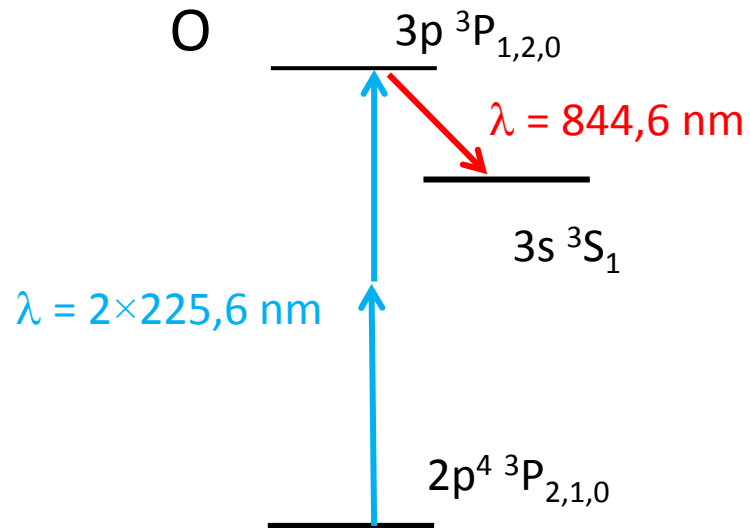
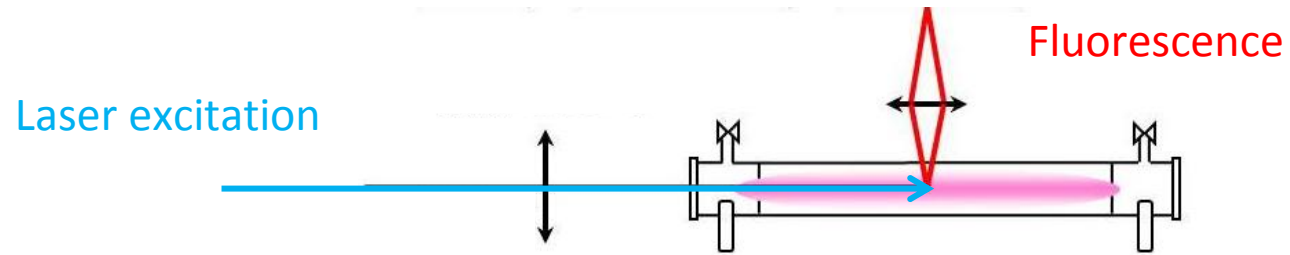


Mesure du **décalage isotopique** ( $^{18}\text{O}$  vs.  $^{16}\text{O}$ ) du niveau de structure fine  $3p\ ^3P_2$  :  $-0.008\ (2)\ \text{cm}^{-1}$

Bon accord avec les calculs  $-1,1\ \text{m}^{-1}$  (NMS :  $34,7\ \text{m}^{-1}$ )  
Jönsson & Godefroid 2000 , *Mol. Phys.* **98** 1141 (2000)



# Densité d'atomes d'oxygène

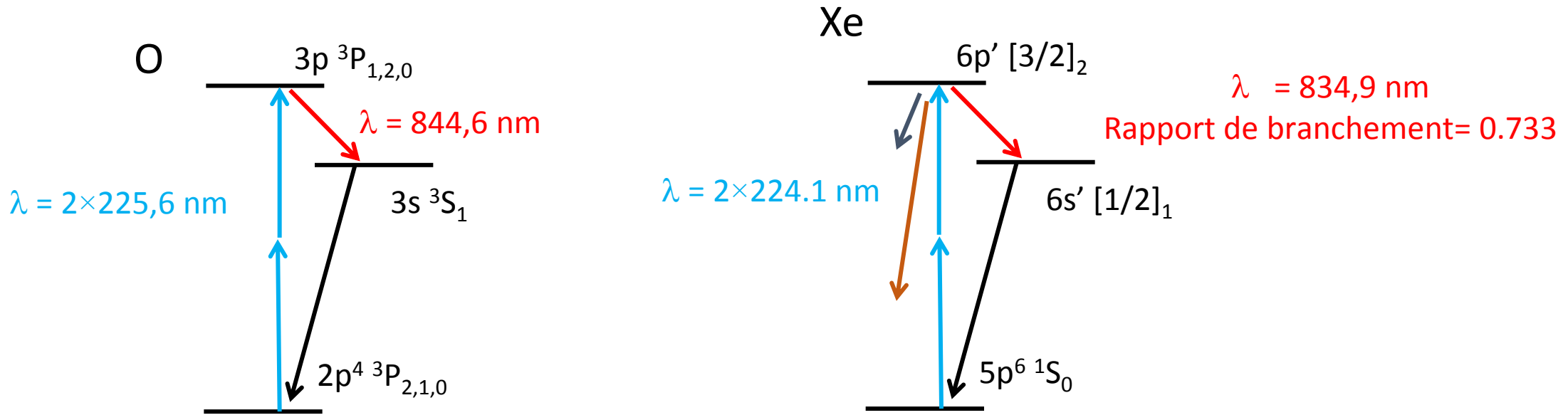


Signal TALIF= **density**

- × probabilité d'excitation (*section efficace*)
- × flux de photons (*énergie, profil spatio-temporel*)
- × probabilité de désexcitation (*durée de vie radiative ou collisionnel*)
- × efficacité de la détection optique (*angle solide, perte*)
- × efficacité de la détection électronique (*efficacité quantique, ampli.*)

D. J. Bamford, M. J. Dyer, and W. K. Bischel, *Phys. Rev. A* **36**, 3497 (1987)

# Mesures de densité avec un gaz noble comme référence



Pour le même flux de photons :

$$\frac{n(O)}{n(Xe)} = \frac{Signal(O)}{Signal(Xe)} \times \frac{\sigma^{(2)}(Xe)}{\sigma^{(2)}(O)} \times \text{calibration relat. (optique/electronique)} \times \text{rapport de branchement}$$

est connu si la densité de O est déterminée par titration

K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen and H. F. Döbele, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 375 (2005)

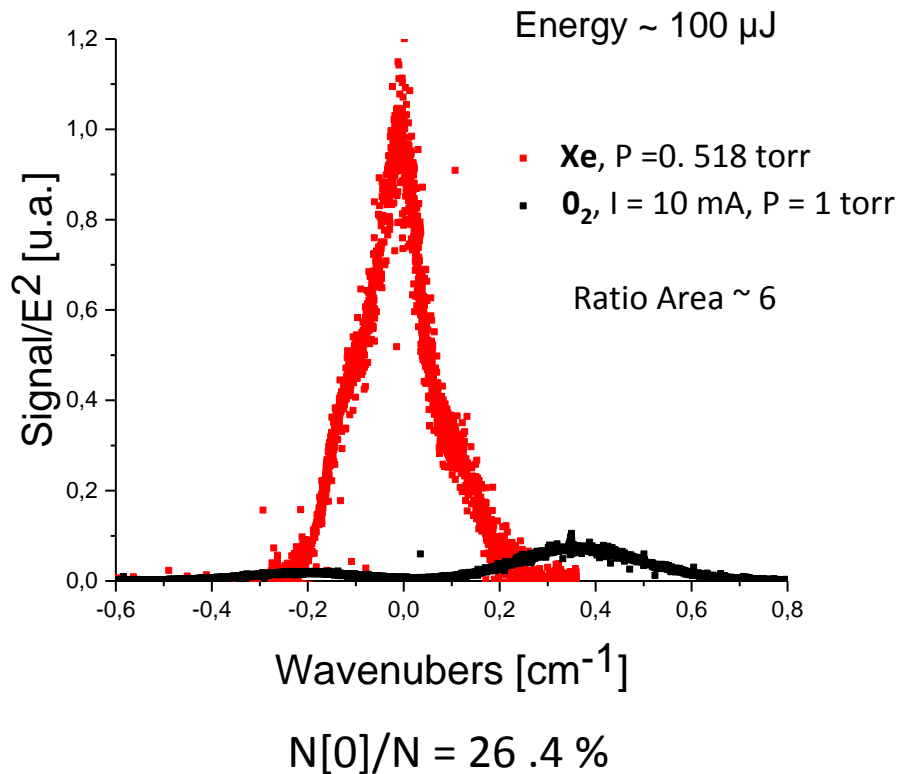
K. Niemi, V. Schulz H.F. Döbele, *J. Phys. D :Appli. Phys.* **34**, 2330 (2001)

A.Goehlich, T.Kawetzki and H.F. Döbele, *J. Chem. Phys.* **108**, 9362 (1998)

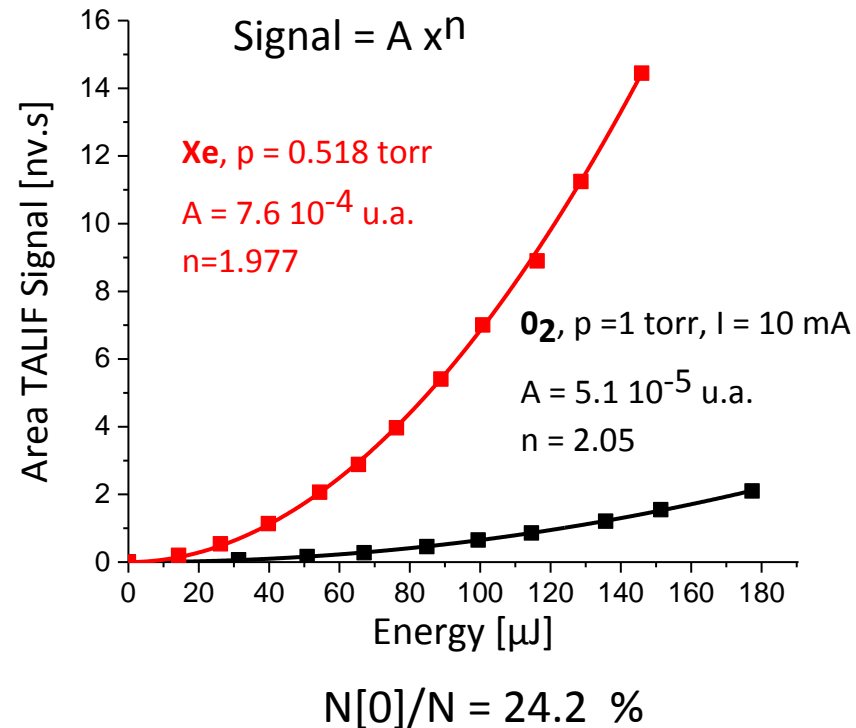
Autres exemples :  
Kr/H, Kr/Ar, Xe/C

# Mesures de densité

Energie fixe, variation longueur d'onde



Longueur d'onde fixe, variation de l'énergie

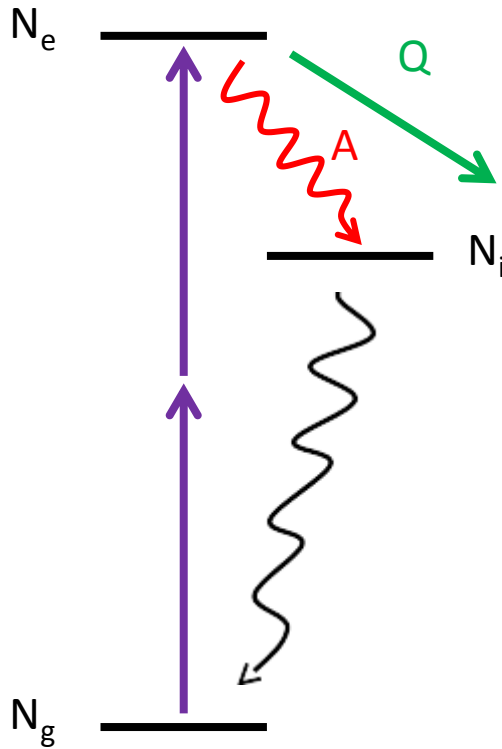


Le résultat dépend du **rapport des sections efficaces.**

Question: absorption directe à 2 photons ?

# Excitation à 2 photons vs. absorption à 2 photons

Hypothèses : régime champ faible, profil rectangulaire en temps  $\tau$  (court), faisceau collimaté ( $a = \pi w^2/2$ )



$$\frac{dn_g}{dt} = -\sigma^{(2)} n_g \varphi^2 \quad n_g(\tau) = n_0 \text{Exp}(-\sigma \varphi^2 \tau)$$

Atomes excités durant un pulse (par unité volume) = variation atomes du fondamental

$$n_e(\tau) = n_0 - n_g(\tau) = n_0 [1 - \text{Exp}(-\sigma \varphi^2 \tau)] \approx n_0 \sigma \varphi^2 \tau$$

TALIF Signal :  $S \sim n_0 \sigma \varphi^2 \tau \times \frac{A}{A+Q}$  D. J. Bamford *et al.*, *Phys. Rev. A* **36**, 3497 (1987)

Fraction d'atomes excités :

$$\Delta n_e(\tau) = \frac{n_e}{n_0} \approx \sigma \varphi^2 \tau$$

Nombre de photons absorbés :

$$N_{ph}(\tau) = 2 N_e(\tau) = 2 n_e(\tau) \times L \times a \approx 2 n_0 \sigma \varphi^2 \tau \times L \times a$$

Fraction de photons absorbés :

$$\Delta \varphi(\tau) = \frac{N_{ph}(\tau)}{N_{ph}} \approx \frac{2 n_0 \sigma \varphi^2 \tau \times L \times a}{\varphi \times a \times \tau} \approx 2 n_0 \sigma \varphi L \quad \Delta \varphi(\tau) \approx 2 n_0 \sigma \varphi L$$

# Cellule d'absorption pour la calibration de l'excitation à deux photons

Longueur d'onde

PC + Labview

Boxcar

PMT

Faisceau collimaté

Ti:Saphir laser

Fenêtre à Brewster

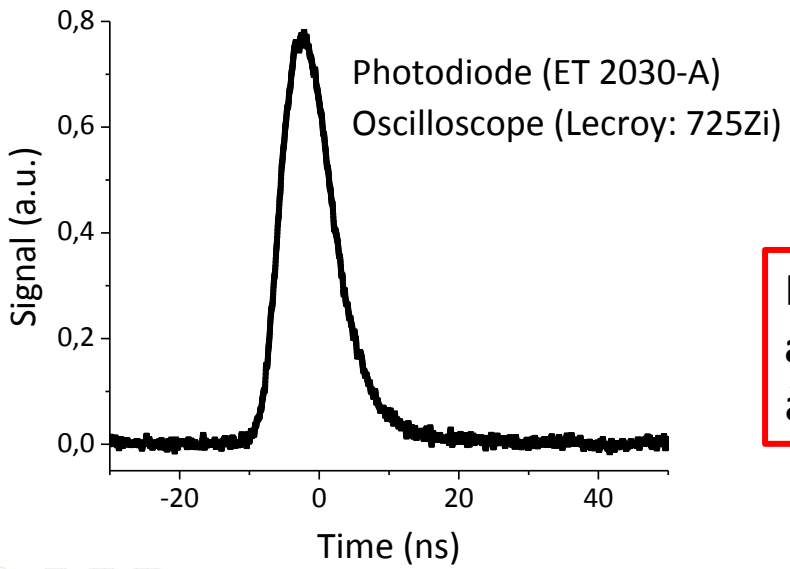
L = 0.51 m

Mesureur d'énergie

Mesureur d'énergie

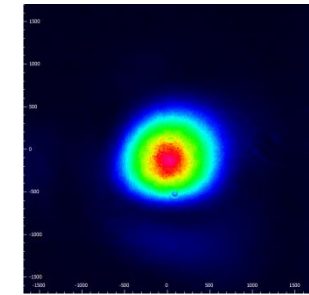
Ophir : PE10-C

Vide ou xénon (statique : 1 – 100 mbar)



Mesure des énergies avant et après la cellule à chaque tir laser (Ophir pulsar2)

Caractérisation spatiale : avant et après la cellule

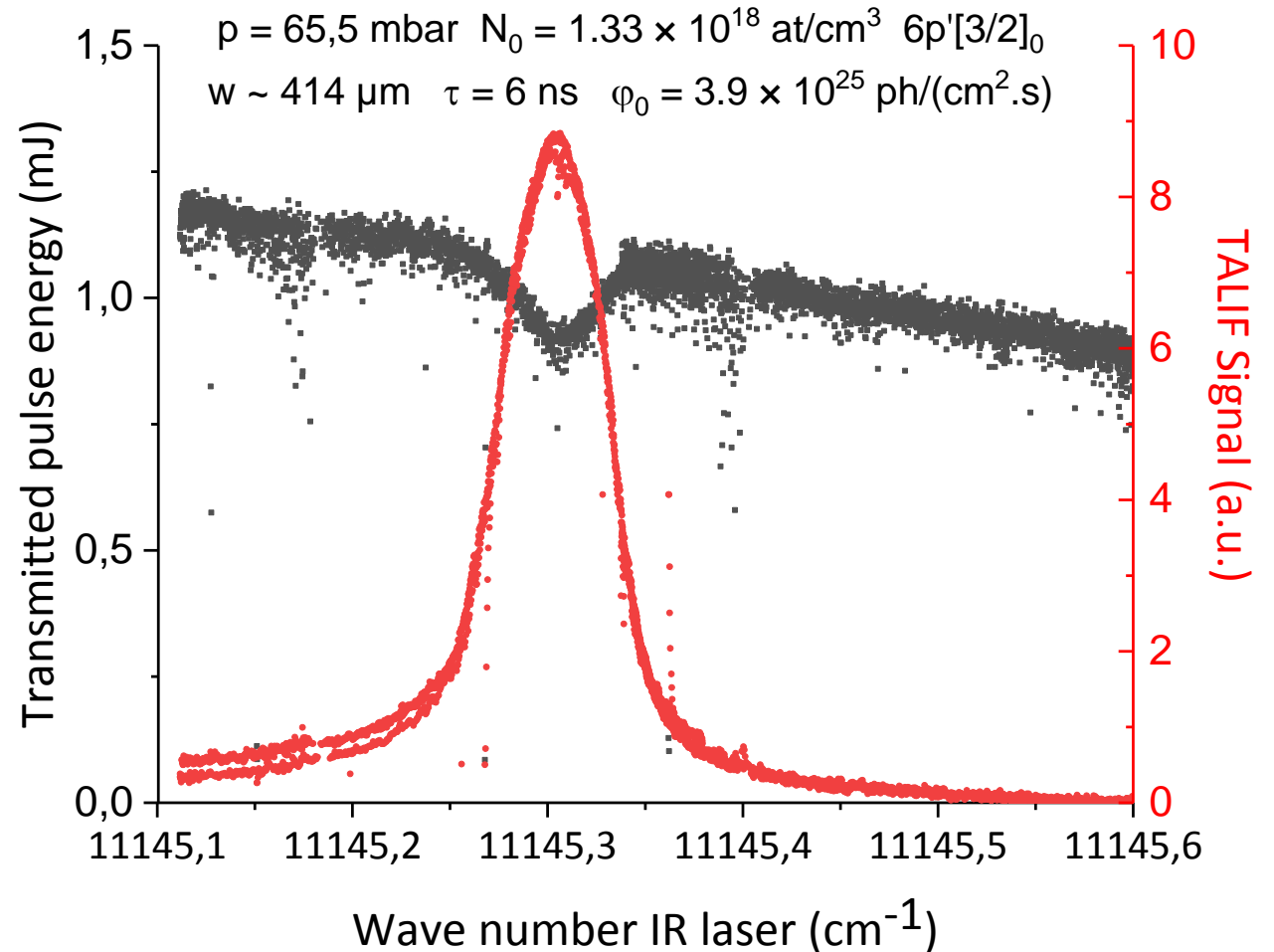


Thorlabs: BC106N

## 1er résultat expérimental (vers $6p'[3/2]_2$ )

- Environ 14 % d'absorption à résonance
- Variation lente de l'énergie transmise durant le balayage (nécessité de normaliser)
- A fortes densités, on observe une saturation du signal TALIF : saturation de la détection et « Amplified Stimulated Emission » (ASE)

Question :  
Comment déduire la section-efficace ?



# Absorption à 2 photons : évolution du flux et de l'énergie

- Hypothèses: -  $N_g(\tau) \sim N_0$  i.e. faible excitation  
 - variation du flux de photons dans le référentiel de l'impulsion laser

$$\frac{d\varphi}{dz} = -2 \sigma^{(2)} n_0 \varphi^2 \quad \int \frac{d\varphi}{\varphi^2} = -2 \int \sigma^{(2)} n_0 dz \quad \varphi(z) = \frac{\varphi(0)}{1 + 2 \sigma^{(2)} n_0 z \varphi(0)}$$

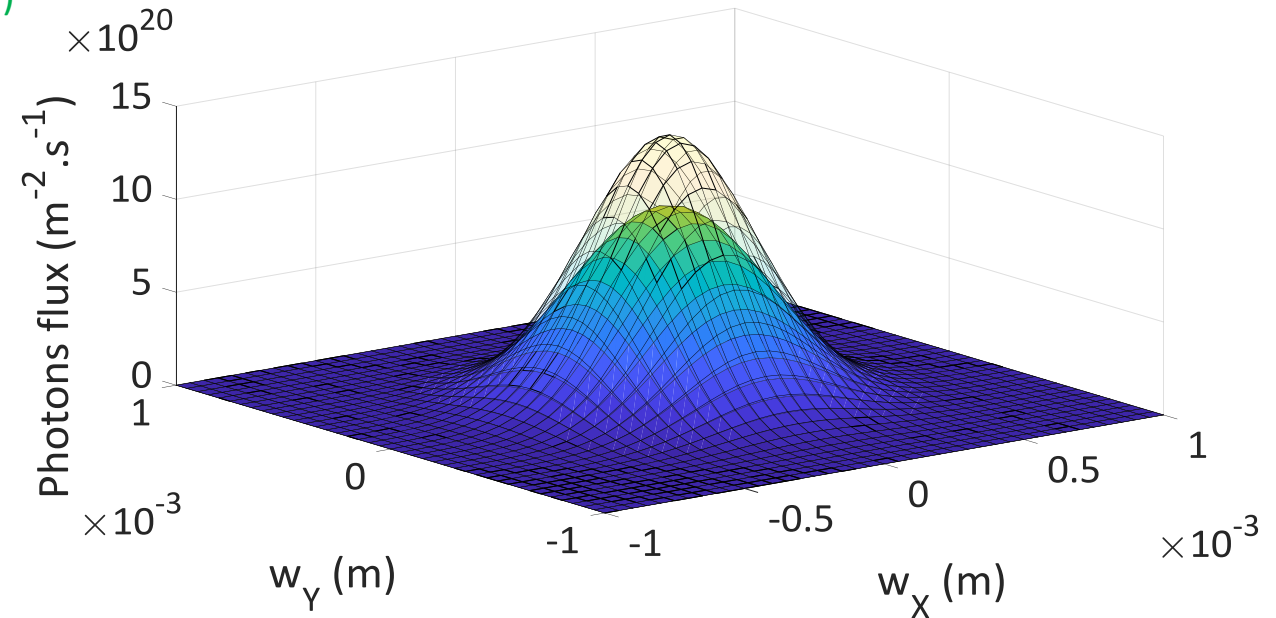
M. Rumi & J.W. Perry, *Adv. in Opt. and Phot.* **2**,451 (2010)

R.L. Sutherland, *Handbook of nonlinear optics*. CRC press (2003)

M.D. Di Rosa & R.L. Farrow, *JOSA B* **16**, 1988 (1999)

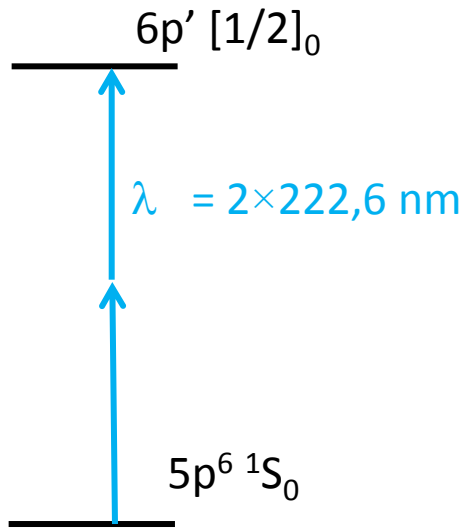
$E_i \rightarrow \varphi_i \rightarrow \text{propagation} \rightarrow \varphi_t \rightarrow E_t \rightarrow T$

- Forme non gaussienne de l'impulsion : **sécante hyperbolique**
- Photo-ionisation

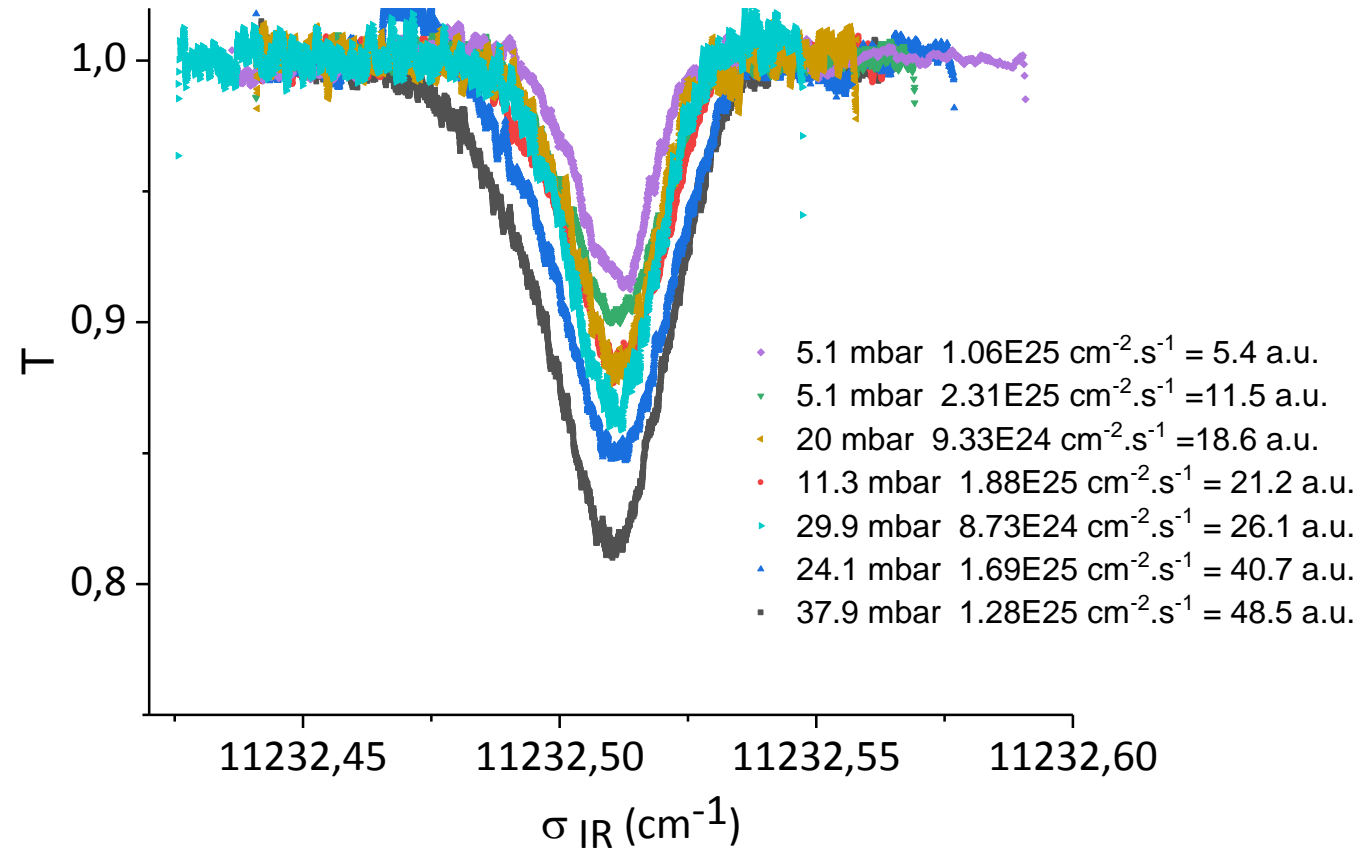




## Exemples de mesures



La transmission décroît lorsque le produit **pression** × **flux de photons** croît



Pour les mesures de sections efficaces, les conditions expérimentales sont variées :

- ☐ La pression entre 10 – 100 mbar
- ☐ Le flux de photons:  $3 \times 10^{24} - 3 \times 10^{25}$  photons.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>

## Résultat et comparaisons avec la littérature

$$\sigma (6p'[3/2]_2) = (1.48 \pm 0.64) \times 10^{-35} \text{ cm}^4$$

Remarque : reste à modéliser la photo-ionisation, l'ASE (variation 10%)

### 1) Comparison relative (Xe vs Xe)

Ref.	Thèse Heichhorn (2014)	Alekseev et al. <i>J. Chem. Phys.</i> <b>100</b> ,5766 (1996)	Ce travail
$\sigma(6p'[1/2]_0) / \sigma(6p'[3/2]_2)$	1.1	1.2	1.3

### 2) Comparaison absolue (Xe vs O) $\Sigma \sigma_0 (J' \leftarrow -2) = (1.87 \pm 0.6) \times 10^{-35} \text{ cm}^4$

Titration:  $\sigma (6p'[3/2]_2) = 1.9 \times (1.87 \pm 0.6) \times 10^{-35} \text{ cm}^4 = (3.55 \pm 1.14) \times 10^{-35} \text{ cm}^4$

K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen and H. F. Döbele, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 375 (2005)

On trouve une **valeur plus faible** (d'un facteur 2,4)

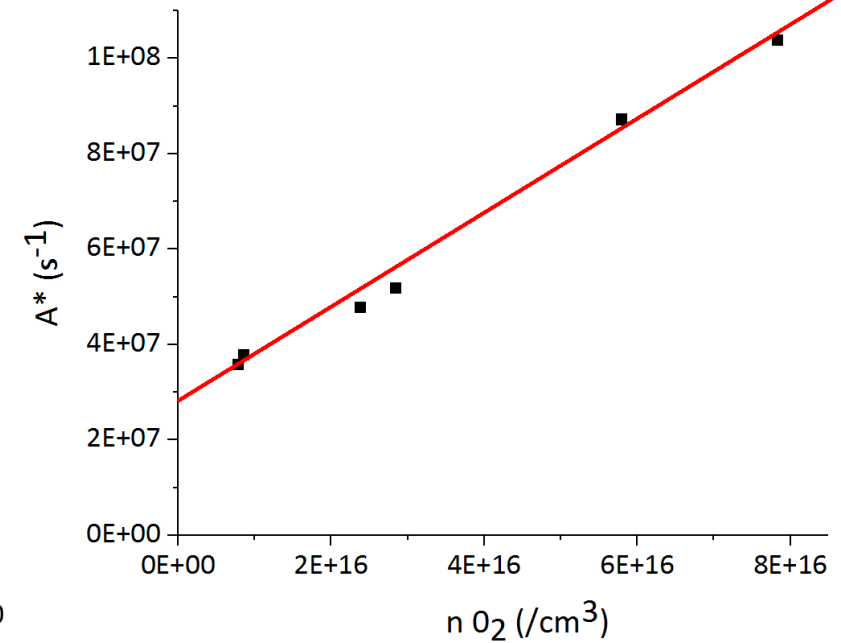
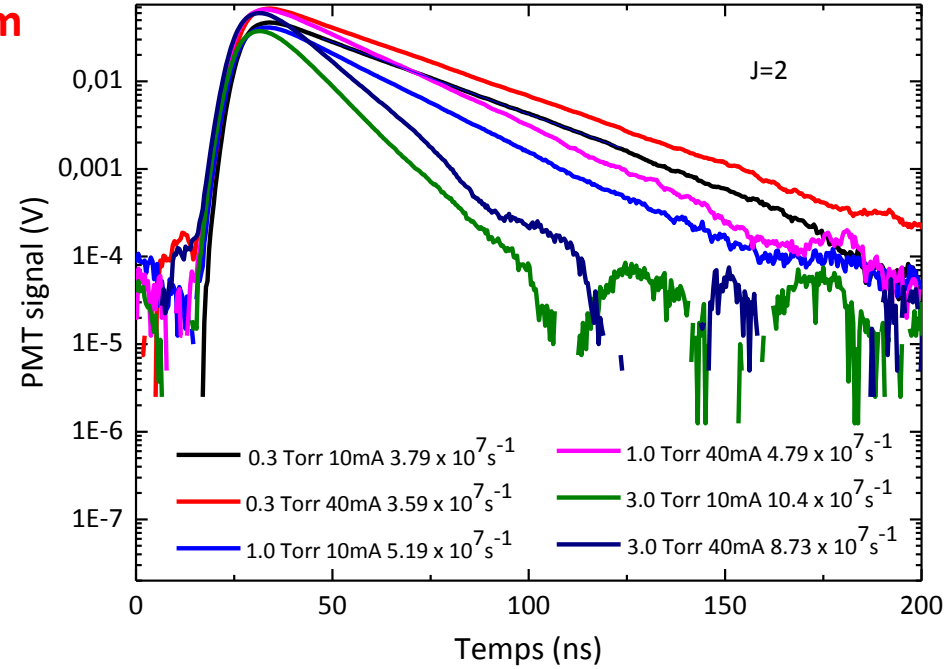
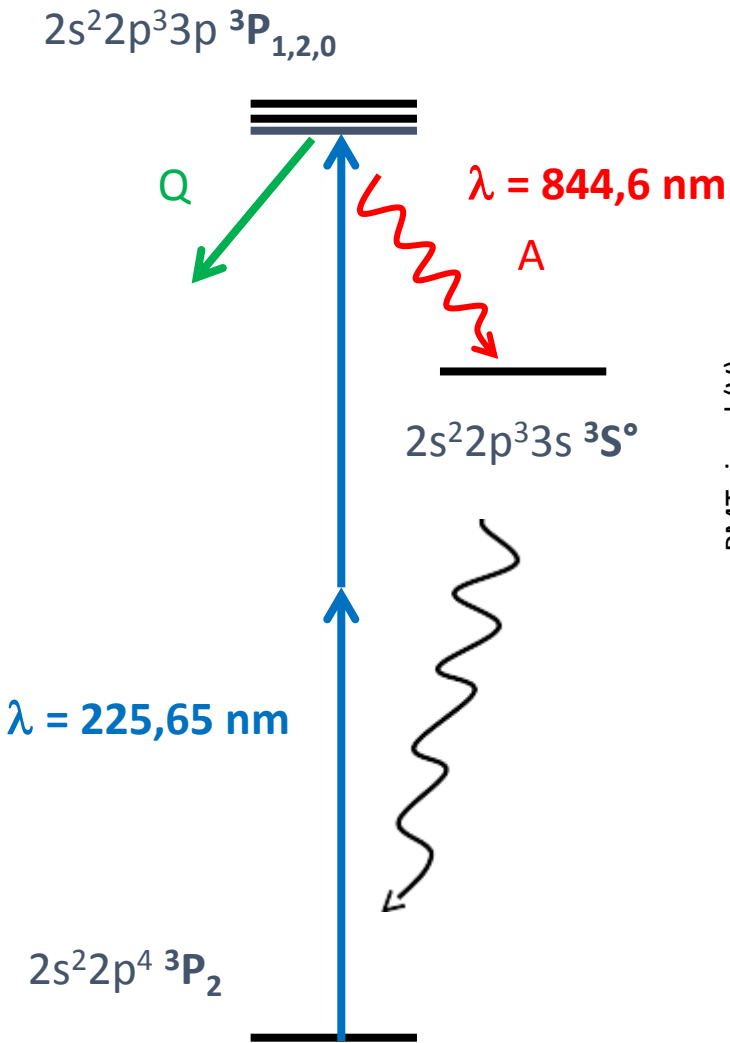
## Conclusion + perspectives

- ❑ Les lasers nanosecondes injectés présentent un bon compromis entre la **résolution spectrale** (limitée par la durée finie de l'impulsion) et la **puissance crête**.
- ❑ Cet outil nous a permis de caractériser des plasmas de O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub> : mesures de **densités** et **températures** atomiques.  
**Mesures similaires dans un réacteur inductif et avec l'atome de chlore.**
- ❑ L'**absorption à deux photons** permet de déterminer les sections efficaces (Xe).  
**Mesure de la section efficace du krypton.**

Laser-Based Metastable Krypton Generation  
M.A. Dakka, et al., *Phys. Rev. Lett.* **121**, 093201 (2018)

# Collisions I : « Quenching\* »

\*extinction



$$A^* = A + Q$$

$$= \frac{1}{\tau} + kO_2 nO_2$$

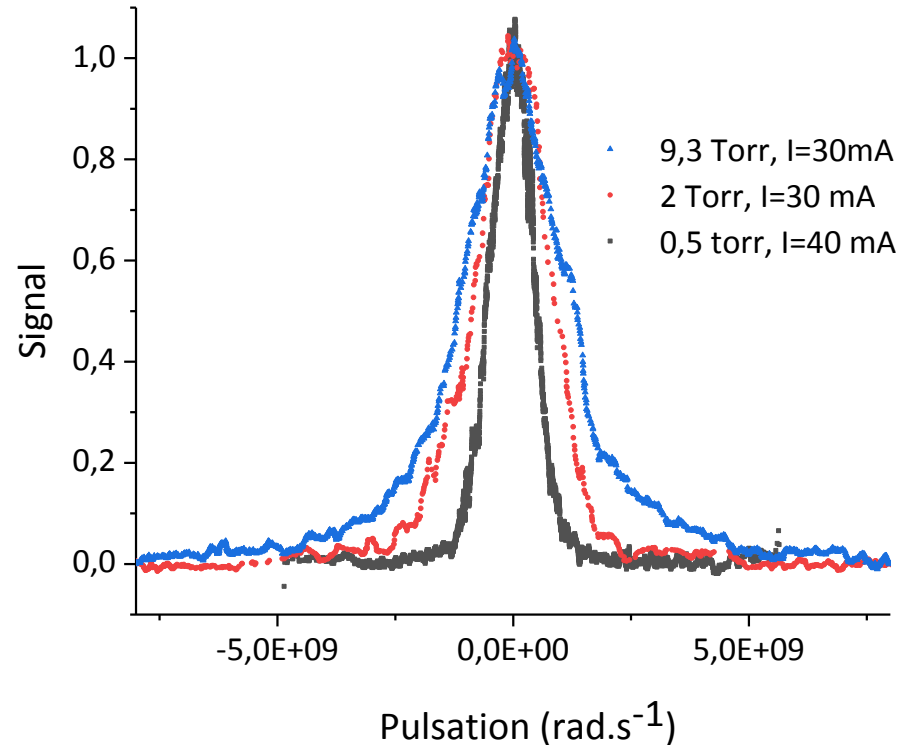
$$\tau = 34,1 \text{ ns}$$

$$kO_2 \approx 9.3 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$$

K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen and H. F. Döbele, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 375 (2005)

## Collisions II : déphasages (sans effet Doppler)

niveau de structure fine  $3p\ ^3P_2$



$$1/T_2 \approx 10 \times 1/T_1 \text{ soit } \gamma \approx 10 Q$$

D. Marinov et al., *Plasma Sources Sci. Technol.* **25**, 06LT03 (2016)

Formalisme de la matrice densité (Maxwell-Bloch)

T.B. Settersten and M.A. Linne, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 954 (2002)

Evolution des populations :

$$T_1 = (A + Q)^{-1}$$

Evolution des cohérences :

$$T_2 = (1/2T_1 + \gamma)^{-1}$$

$\gamma$  Taux de **déphasage collisionnel**  
(interaction longue distance, désorientation des dipôles,...)

**Question ouverte** : quelles informations sur le plasma ?