HAL
open science

Développement de deux instruments LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces à base de sources paramétriques

Jessica Pellegrino

To cite this version:

Jessica Pellegrino. Développement de deux instruments LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces à base de sources paramétriques. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066531 . tel-01134438

HAL Id: tel-01134438

https://theses.hal.science/tel-01134438v1

Submitted on 23 Mar 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Pierre et Marie Curie

Ecole doctorale des sciences de l'environnement

Onera / DMPH / SLM

Développement de deux instruments LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces à base de sources paramétriques

Par Jessica BARRIENTOS BARRIA

Thèse de doctorat de Physique

Présentée et soutenue publiquement le 01/12/2014

Devant un jury composé de :

DELBARRE Hervé	Professeur des universités	Rapporteur
DRAG Cyril	Chargé de Recherche CNRS	Rapporteur
RAVETTA François	Professeur des universités	Examinateur
RAYBAUT Myriam	Ingénieur de recherche à l'Onera	Encadrante Onera
PELON Jacques	Directeur de Recherche au CNRS	Directeur de thèse
HEBERT Jean- Philippe	Ingénieur au CNES	Invité

Remerciements

Table des matières

Introduction générale 1

OBJECTIFS SCIENTIFIQUES 1

LES MESURES PASSIVES 3

ETAT DE L'ART SUR LES MESURES LIDAR 4

I. SUIVI DES EMISSIONS INDUSTRIELLES ET SUIVI DE LA QUALITE DE L'AIR AMBIANT 4

II. DETECTION DE GAZ DE COMBATS ET D'EXPLOSIFS 8

III. SUIVI DES CONCENTRATIONS DES GAZ A EFFET DE SERRE DEPUIS L'ESPACE 10

LES DEVELOPPEMENTS EFFECTUES AU COURS DE CETTE THESE 13

PLAN DU MANUSCRIT 13

Chapitre A : Introduction - Principe de la mesure lidar et sources laser OPO adaptées aux mesures visées 15

A.1. Le lidar : principe général 16

A.1.1. Rappels théoriques sur l'instrument de mesure LIDAR 16

A.1.2. Le schéma de détection choisi 21

A.1.3. Les diverses techniques de mesure par LIDAR 21

A.1.4. Le principe de l'inversion de spectre 26

A.2. Récapitulatif des besoins instrumentaux 28

A.3. Les apports de l'optique non linéaire pour le développement de nouveaux émetteurs 30

A.3.1. Rappels théoriques d'optique non linéaire 31

A.3.2. Le NesCOPO : The Nested Cavity Optical Parametric Oscillator 37

A.3.3. Synthèse 43

Chapitre B : Développement d'un banc LIDAR moyenne portée (100 m) dans la gamme 3,3 – 3,7 µm 44
Introduction..... 45
B.1. Développement et caractérisation d'un instrument compact pour des mesures de concentration IP-DiAL multi-espèces dans la gamme 3,3 – 3,7 µm. 47
B.1.1. Architecture de l'instrument 47
B.1.2. L'émetteur : laser de pompe 50
B.1.3. Conception du bloc de conversion de fréquence et caractérisation de l'émetteur 52
B.1.4. Couplage de l'émetteur et du bloc de réception de l'instrument IP-DiAL..... 58
B.1.5. Réalisation de spectres multi-espèces et mesures de concentration avec l'émetteur moyenne énergie 65
B.1.6. Récapitulatif 70
B.2. Analyse critique des performances de l'instrument 71
B.2.1. Analyse du bruit de mesure 71
B.2.2. Analyse de l'apport de séquences multi-longueur d'ondes dans les mesures 87
B.2.3. Synthèse..... 96
B.3. Perspectives 97
B.3.1. Evaluation des performances de l'instrument IP-DiAL de moyenne portée 97
B.3.2. Amélioration de la robustesse et de la stabilité mécanique de l'instrument 99
B.3.3. Couplage du lidar avec des systèmes passifs 103
B.4. Synthèse 103

Chapitre C : Développement d'un banc LIDAR DiAL longue portée (1 km) autour de 2 µm 105
Introduction..... 106
C.1. Contexte applicatif et architecture de l'instrument..... 108
C.1.1. Spécifications de l'émetteur liées à l'application spatiale..... 108
C.1.2. Contexte Onera et architecture de l'instrument 115
C.2. Potentiel de la solution technologique retenue pour l'application 116
C.2.1. L'émetteur : en début de thèse 116
C.2.2. Les améliorations apportées à l'émetteur au cours de ces travaux 117
C.2.3. Stabilité en énergie de l'émetteur 121
C.2.4. Stabilité en fréquence de l'émetteur..... 122
C.2.5. La stabilité en fréquence à long terme 127
C.2.6. Accord en longueur d'onde tir à tir..... 131
C.2.7. Démonstration du potentiel tri-espèces de l'émetteur 136
C.3. Estimation des performances d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement..... 139
C.3.1. Outils de simulation développés 139
C.3.2. Calcul des RSBs attendus pour une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement pour une mesure du CO_2 153
C.3.3. Discussion 139
C.3.4. Etude de la possibilité d'une mesure simultanée bi-espèces en utilisant les ondes signal et complémentaire issues de l'OPO 158
C.4. Perspectives..... 161
C.4.1. Améliorations à apporter à l'émetteur en vue d'une spatialisation 161
C.4.2. Mesure LIDAR multi-espèces résolue spatialement depuis le sol ... 162
C.5. Synthèse 161

Annexes 169
Annexe A. Outils d'inversion utilisés au cours de cette thèse..... 170
Annexe A.1. Code d'inversion basé sur la méthode de minimisation par les moindres carrés 170
Annexe A.2. Code d'inversion basé sur la méthode du maximum de vraisemblance 171
Annexe B. Optimisation de la portée de mesure de l'instrument IP-DiAL à 3 µm 173
Annexe B.1. Mise en évidence d'un compromis gain et largeur de gain 173
Annexe B.2. Les apports potentiels des cristaux en PPLN apériodiques 174
Annexe C. Expression et propriétés de la forme de raie 177
Annexe D. Sécurité oculaire..... 179
Annexe E. Amplification d'un QCL émettant entre 8 et 12 µm 180
Annexe F. NesCOPO en pompage microseconde 184
Annexe G. Réalisation des mesures lidar IP-DiAL à 3,3 µm sur le CH_4 et H_2O. 187

Bibliographie 197

Lexique

AIRS : Atmospheric Infrared Sounder
ASCEND : Active Sensing of CO_2 Emissions over Nights, Days and Seasons
A-SCOPE : Advanced Space Carbon and Climate Observation of Planet Earth
CALIOP : Cloud-Aerosol LIdar with Orthogonal Polarization
CALIPSO : Cloud Aerosol Lidar an infrared Pathfinder Satellite Observation
DiAL : Differential Absorption LIDAR, LIDAR par absorption différentielle
DROPO : Doubly resonant OPO, OPO doublement résonant
FWHM : Full Width at Half Maximum, la largeur à mi-hauteur
IP-DiAL : Integrated Path Differential Absorption LIDAR, LIDAR par absorption différentielle intégré colonne
GOSAT : Greenhouse gases Observing Satellite
IASI : Infrared atmospheric sounding interferometer
ISL : Interval Spectral Libre
LIDAR : Light Detection and Ranging
MERLIN : MEthane Remote Sensing LIdar MissioN
MCT : Mercure - Cadmium - Tellure (HgCdTe)
MOFA : Master Oscillator - Fiber Amplifier
MOPA : Master Oscillator - Power Amplifier
NesCOPO : Nested-cavity OPO, OPO à cavités imbriquées
NOAA : National Oceanic and Atmospheric Administration
OPO : Optical Parametric Oscillator, Oscillateur Paramétrique Optique
OPA : Optical Parametric Amplifier, amplificateur paramétrique optique
ppb : partie par billion
PPLN : Periodically poled lithium niobate, niobate de lithium périodiquement retourné
ppm : parte par million
ppt : partie par trillion
PZT : piezo-electrique transducer
SCIAMACHY : Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography
SMSR : Side mode suppresion ratio, taux d'extinction des modes secondaires
SROPO : Singly resonant OPO, OPO simplement résonant
QCL : Quantum Cascade Laser, laser à cascade quantique
VBG : Volume Bragg Grating, Réseau de Bragg en volume

Introduction générale

OBJECTIFS SCIENTIFIQUES

Depuis quelques années, la surveillance globale de l'atmosphère et la surveillance de la pollution de l'air sont devenues des enjeux majeurs de portée mondiale. L'objectif est de pouvoir quantifier l'impact des activités humaines sur notre environnement. En effet, il a été démontré que les activités industrielles, en particulier, conduisent à une augmentation de la concentration dans l'atmosphère de différents composés gazeux qui ont un impact significatif sur l'environnement dans plusieurs domaines :

- le changement climatique (effets des nuages, des aérosols, des gaz à effet de serre) ;
- les pluies acides ;
- la chimie troposphérique et stratosphérique ;
- la pollution à l'ozone …

Ces émissions conduisent également à une augmentation de la concentration de certains polluants industriels dans l'atmosphère ayant un effet sur la qualité de l'air et sur la santé.

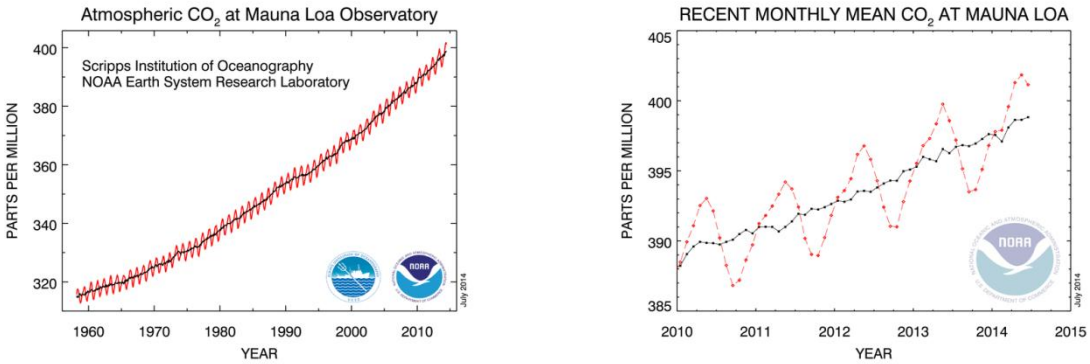
Par conséquent, une meilleure détermination des puits et des sources des gaz à effet de serre permettrait la prévision de l'évolution de notre environnement grâce à la modélisation de la dynamique de l'atmosphère. La compréhension des mécanismes régissant ces divers phénomènes environnementaux et de leurs interactions est un point clé pour les siècles à venir. Les espèces participant à ces mécanismes sont citées dans le *Tableau 1*. Leurs concentrations ne cessent d'augmenter au cours des années depuis l'ère pré-industrielle comme illustré dans le *Tableau 1*.

Principaux gaz à effet de serre	Concentration pré-industrielle	Concentration en 2011
CO_2	280 ppm	390 ppm
CH_4	0,6 à 0,7 ppm	1,8 ppm
N_2O	270 ppb	324 ppb
CFC - 12	0	528 ppt
SF_6	0	7,3 ppt

Tableau 1 : Comparaison des concentrations atmosphériques pré-industrielle et actuelle des principaux gaz à effet de serre [5ème Rapport du GIEC - 2013]

Certains de ces gaz comme le dioxyde de carbone, la vapeur d'eau ou le méthane sont des gaz à effet de serre très importants car leur absorption dans l'infrarouge est élevée et leur temps caractéristique de décomposition est extrêmement long. Ce dernier varie de quelques dizaines d'années à plusieurs centaines d'années.

L'impact, sur le climat et son évolution, de cette augmentation croissante des émissions de dioxyde de carbone, principal gaz à effet de serre est critique. Depuis l'ère préindustrielle, sa concentration a augmenté d'environ 30 %. La *Figure 1(a)* montre l'évolution de la concentration en dioxyde de carbone au cours de ces cinquante dernières années. Ces mesures ont été réalisées par prélèvement d'échantillons d'air. On observe une augmentation de 1,55 ppm par année sur le long terme. Sur le moyen terme, des variations saisonnières comprises entre 4 et 5 ppm sont également observées, particulièrement visibles sur la *Figure 1(b)*. Elles sont principalement dues à l'activité photosynthétique de la biosphère terrestre. Enfin, il existe également des variations journalières ou sur quelques jours (court terme) de la concentration atmosphérique en CO_2 essentiellement dues aux conditions météorologiques. Il est possible d'observer des variations en concentration allant jusqu'à 20 ppm. Afin d'assurer le suivi de l'évolution et l'analyse des sources et puits, la précision de mesure pour la concentration du CO_2 atmosphérique doit être meilleure que 1 % [Miller - 2007].



(a) *(b)*

Figure 1 : Evolution de la concentration en CO_2 atmosphérique au cours de ces cinquante dernières années et ces cinq dernières années (Source : la NOAA pour National Oceanic and Atmospheric Administration)

Si le dioxyde de carbone est considéré comme le principal acteur lié au réchauffement climatique, la vapeur d'eau et le méthane sont également des gaz à effet de serre importants. En particulier, la concentration en méthane a augmenté d'un facteur 2,5 environ depuis l'ère pré-industrielle. Par ailleurs, il existe de gros stocks de méthane sous la forme d'hydrates de méthane, également appelés chlarates de méthane, piégés naturellement sous la glace. Il s'agit d'une formation qui survient dans les milieux à basse température et à haute pression que l'on trouve notamment dans les bassins sédimentaires du plancher océanique et dans le permafrost (régions polaires) [Koch - 2009]. Une augmentation de la température de la surface terrestre ou un changement de la pression pourrait permettre de libérer le méthane emprisonné actuellement dans les sols, l'océan et/ou l'atmosphère. Ces hydrates de méthane deviendraient alors une source d'émission importante de méthane [Rapport du GIEC - 2013].

Le Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC) prévoyait en 1995 un réchauffement de la planète d'environ 3°C d'ici 2100. Or, actuellement les prévisions montrent une augmentation de la température en surface jusqu'à 6 °C d'ici 2100 pour le pire des scénarios [Rapport du GIEC - 2013].

LES MESURES PASSIVES

Afin de mesurer l'ensemble des variations en concentration allant du long terme au court terme, les instruments de mesure développés pour la surveillance de l'atmosphère doivent vérifier plusieurs points clés :

- ✓ une grande sensibilité (mesure de concentration de quelques ppm à 10^{-2}) ;
- ✓ une bonne sélectivité ;
- ✓ une grande dynamique de mesure ;
- ✓ une bonne résolution temporelle et spatiale.

Aujourd'hui, la surveillance globale de l'atmosphère est assurée par un réseau d'instruments au sol et embarqués à bord de ballons, d'avions ou de satellites. Les instruments d'observation placés en orbite autour de la terre sont actuellement des instruments passifs tels que IASI, AIRS, SCIAMACHY [Bovensmann - 1999], GOSAT [Hamazaki - 2005 ; Kuze - 2009] ou encore OCO [Crisp - 2012]. Les données fournies par ces différents types d'instruments apportent des informations indispensables à la réalisation de modèles de simulation de la dynamique de l'atmosphère. Ils assurent notamment une très large couverture spectrale permettant de réaliser des mesures multi-espèces. Néanmoins, les informations fournies par les instruments passifs présentent plusieurs limitations :

- ➢ la couverture jour/nuit n'est pas assurée par les instruments passifs sauf dans l'infrarouge thermique ;
- ➢ les instruments passifs doivent être calibrés très précisément pour diminuer les biais de mesure ;
- ➢ la distribution verticale est mal appréhendée (seules les mesures infrarouge de haute résolution spectrale offrent la possibilité de sondage verticaux) ;
- ➢ les interférences et biais peuvent être significatifs et doivent être corrigées.

Comme il a été évoqué dans l'introduction générale, les instruments actuels fournissent des informations indispensables à la compréhension de la dynamique de l'atmosphère. Cependant, la couverture spatiale et la couverture jour/nuit assurées par ces instruments limitent l'établissement de modèles atmosphériques. L'objectif est alors de réaliser des études à une échelle globale permettant par exemple d'étudier les sources et les puits de dioxyde de carbone et de réaliser le suivi de la dynamique spatiale et temporelle des flux de carbone. Pour répondre à cette problématique, le LIDAR gaz spatial est un bon candidat. Il permettra d'apporter des informations complémentaires aux données des capteurs existants.

Figure 2 : Illustration du satellite CALIPSO (source @CNES)

Afin de s'affranchir des limitations de ces instruments, depuis plusieurs années des programmes de développement de lidars gaz atmosphériques comme MERLIN [Stephan - 2011], A-SCOPE (ESA) ou ASCENDS (NASA) ont été mis en place ou envisagés. La mission franco-américaine (CNES et NASA) CALIPSO pour *Cloud Aerosol Lidar an infrared Pathfinder Satellite Observation* (*Figure 2*) a permis la mise en orbite du premier LIDAR spatial basé sur la technologie laser Nd:YAG : CALIOP pour *Cloud-Aerosol LIdar with Orthogonal Polarization* [Winker - 2004]. Ce LIDAR équipé d'un télescope de 1 m de diamètre est associé à deux autres instruments : une caméra visible à ouverture grand champ et un radiomètre imageur infrarouge. Ces instruments permettent d'étudier l'impact radiatif des nuages et des aérosols afin d'améliorer les modèles d'évolution du climat. Même s'il ne s'agit pas d'un satellite embarquent un LIDAR DiAL, il représente un avancée technologique importante. En effet, il détient à son bord le premier LIDAR spatial.

Placés à bord de satellite, les LIDAR permettraient une observation de l'atmosphère complémentaire aux données issues du réseau de capteurs en permettant de répondre aux besoins identifiés. Le développement d'instruments LIDAR sensibles, basés sur des sources optiques émettant dans le moyen infrarouge disposant d'un niveau de performances spectrales, énergétiques et spatiales élevées est un défi technologique, que nous allons aborder maintenant.

ETAT DE L'ART SUR LES MESURES LIDAR

Nous venons de présenter les mesures passives actuellement mises en œuvre pour la détection et la quantification des gaz à l'état de traces. Cette méthode a des limites dont on pourrait s'affranchir à l'aide de mesures lidar. L'objectif à présent est de montrer le potentiel de cette dernière technique de mesure dans le cadre de trois applications inhérentes à l'Onera, en s'appuyant sur quelques exemples issu de la littérature :

1. le suivi des polluants industriels ;
2. le suivi de la qualité de l'air ;
3. les applications défense.

Cela concerne plus particulièrement les mesures au sol incluant la possibilité de développement de systèmes mobiles ou de réseaux. Nous verrons également ensuite quels instruments ont été réalisés ou proposés dans le cadre des applications spatiales.

I. SUIVI DES EMISSIONS INDUSTRIELLES ET SUIVI DE LA QUALITE DE L'AIR AMBIANT

Le suivi des émissions industrielles est un enjeu pour des problématiques de santé publique ou de changement climatique. En effet, de nombreux composés chimiques réactifs présents dans la basse atmosphère ont des impacts potentiels sur la santé (qualité de l'air), le climat, et les écosystèmes importants.

Dans le cadre de ces applications, la gamme spectrale représentée sur la *Figure 3* la plus intéressante pour ces applications est comprise entre 1,5 et 5 µm. En effet, de nombreux polluants industriels et gaz à effet de serre présentent de fortes section efficace d'absorption dans cette gamme spectrale dont quelques exemples sont fournis sur la *Figure 4*.

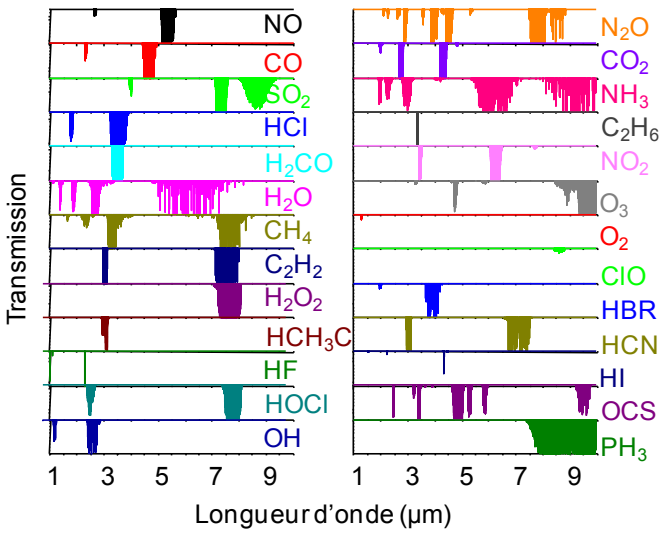


Figure 3 : Spectres de transmission qualitatifs de divers gaz atmosphériques et polluants fonction de la longueur d'onde

Par exemple, le dioxyde de soufre est le polluant principalement rejeté lors de la combustion des énergies fossiles (les transports) ou des minerais à base de sulfure (combustion du charbon). C'est un gaz toxique inodore provoquant des problèmes de santé. Les Composés Organiques Volatils [COVs] sont des molécules composées de carbone, d'oxygène et d'hydrogène pouvant facilement se trouver sous forme gazeuse dans l'atmosphère libérées par les activités industrielles humaines. Ces gaz ont un impact très fort sur la santé pouvant provoquer des cancers et dont les effets sur le long terme ne sont pas encore bien connus.

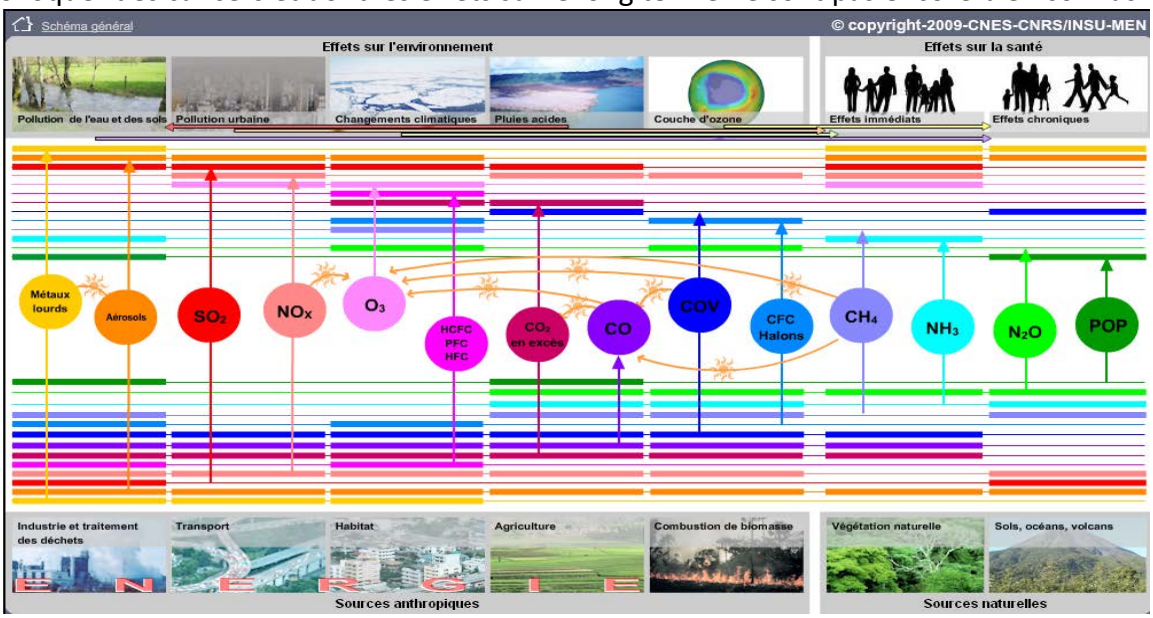


Figure 4 : Exemples d'espèces gazeuses d'intérêt pouvant être détectées dans la gamme spectrale [1,5 - 5 µm] associées à leur effet sur l'environnement ou la santé (Source : CNES/CNRS/INSU/MEN)

Des normes de la qualité de l'air ont été établies afin de limiter l'exposition à ces différents polluants. Pour respecter ces normes en vigueur, le développement d'instruments performants et fiables permettant le suivi et la quantification de ces différents gaz et polluants est nécessaire.

Exemples de développements

Dans ce paragraphe, nous illustrons l'intérêt de la mesure LIDAR dans le cadre du suivi de polluants industriels ou du suivi de la qualité de l'air ambiant au travers de quelques exemples tirés de la littérature. En effet, pour ces applications, de multiples développements LIDAR ont été réalisés ou sont en cours de réalisation.

Un premier exemple que l'on peut citer concerne le LIDAR développé au NPL [*National Physical Laboratory*] permettant de sonder plusieurs gammes spectrales (ultraviolet, visible, infrarouge) placé dans un camion. En effet, des mesures LIDAR de polluants industriels sur sites ont été démontrées au cours d'une campagne de mesure sur des portées comprises entre un kilomètre dans l'infrarouge et trois kilomètres dans l'ultraviolet [Robinson - 1995]. Afin d'atteindre la gamme spectrale infrarouge entre 2 et 4,5 µm, le NPL a développé un émetteur utilisant deux lasers de pompe Nd:YAG suivi d'étage non linéaire. Ainsi, l'émetteur délivre jusqu'à 20 mJ en régime nanoseconde. Cet instrument, large bande, permet d'adresser de nombreux gaz et polluants industriels comme CH_4, C_2H_4, C_2H_6, benzène, CO, HCl, N_2O, SO_2 … Ces expériences ont permis, notamment, de montrer le potentiel des mesures LIDAR pour le suivi des émissions industrielles sur site.

De même, un LIDAR multi-longueurs d'onde a été développé au LTH [*Lunds Tekniska Högskola*] à partir de la technologie OPO (Oscillateur Paramétrique Optique) permettant d'atteindre les gammes spectrales de l'ultraviolet à l'infrarouge [Weibring - 2003]. L'émetteur est composé de quatre éléments : deux lasers Nd:YAG, un OPO et un étage permettant de réaliser de la différence de fréquences [DFG]. L'OPO associé à un cristal doubleur intracavité délivre des impulsions de 12 mJ dans la gamme spectrale ultraviolet [220 - 440 nm]. L'OPO seul émet dans la gamme spectrale visible et SWIR [440 nm - 1,7 µm]. Enfin, l'étage de DFG permet de générer une émission dans la gamme spectrale MWIR [2,6 - 4,3 µm] avec 20 mJ par impulsion en régime nanoseconde. Cette large couverture spectrale permet à cet instrument d'adresser une large gamme de gaz et polluants industriels comme le mercure, les hydrocarbures, CH_4, SO_2 ... Par ailleurs, plusieurs campagnes de mesures LIDAR ont été effectuées à l'aide de cet instrument placé dans un camion [Weibring - 2003]. Elles ont montré qu'il était possible, par exemple, de réaliser des mesures LIDAR résolues spatialement, dans la gamme spectrale ultraviolet, d'un panache de dioxyde de soufre lors d'une éruption volcanique. Par ailleurs, des mesures LIDAR intégrées colonne sur une portée de 60 m ont été réalisées afin de détecter une fuite de méthane dans le domaine spectral infrarouge autour de 3,3 µm. Dans le cas d'une mesure résolue spatialement dans l'infrarouge, il a été démontré qu'une portée maximale de 200 m était atteignable.

Un dernier exemple de camion LIDAR représenté sur la *Figure 5*, concerne les développements réalisés par l'Ineris [Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques]. Ils ont permis de réaliser un instrument Lidar multi-gaz multi-longueurs d'onde permettant le suivi des émissions industrielles comme le suivi de panache de dioxyde de soufre ou la localisation et la quantification des émissions diffuses (benzène, toluène, Styrène, Xylène) et la caractérisation de la dynamique atmosphérique (ozone). Cet instrument permet de générer entre trois et seize longueurs d'onde couvrant plusieurs domaines spectraux (UV, Visible, IR (3 - 3,5 µm)) permettant d'adresser de nombreux gaz sur des portées supérieures au kilomètre.

Figure 5 : Photographie d'un exemple de camion LIDAR (Ineris)

Par ailleurs, sur la thématique de la qualité de l'air ambiant lié aux perturbations anthropiques le laboratoire de Physico-chimie de l'atmosphère [LPCA] de Dunkerque dédie ses recherches à l'étude des phénomènes de pollution. De nombreuses sources de pollutions sont étudiées telles que les pollutions urbaines et industrielles, la pollution de fond dans la troposphère libre ou encore les feux de biomasse. Pour ces études des moyens de télédétection active (lidars, radar) et des mesures physico-chimiques sont mises en œuvre, afin d'analyser la pollution gazeuse et aérosols dans l'air. Notamment, ce laboratoire dispose d'un lidar UV permettant d'étudier en temps réel la structure verticale et les propriétés optiques de la troposphère jusqu'à la basse stratosphère. Cet instrument basé sur la technologie laser triplé en fréquence permet d'effectuer des balayages horizontaux et verticaux sur un rayon d'action maximum de 15 à 20 km.

Parmi les méthodes de mesure basées sur l'absorption directe, il existe également la méthode DOAS pour Differential Optical Absorption Spectroscopy. Cette technique de mesure permet de réaliser des mesures de concentrations moyennes sur la ligne de visée en couplant une source optique large spectralement avec un spectromètre de haute résolution. Par exemple, un tel instrument a été développé pour le suivi de la qualité de l'air atmosphérique en couplant une lampe à Xe permettant d'obtenir une spectre d'émission large s'étendant de l'ultraviolet à l'infrarouge avec un spectromètre d'une résolution de 0,23 nm [Edner - 1993]. A l'aide de ce système, il a été possible de détecter et de quantifier plusieurs polluants comme NO_2, le NH_3 ou encore l'ozone. De plus, les sources supercontinuum peuvent également utilisées pour réaliser ce type de mesure. Par exemple, une source supercontinuum émettant dans le domaine spectral compris entre 500 nm et 1500 nm a été couplée à un analyseur de spectre optique ANDO d'une résolution maximum de 0,4 cm^{-1}. Des mesures de la concentration moyenne de la vapeur d'eau atmosphérique ont été réalisées sur une gamme spectrale comprise entre 1420 et 1460 nm en extérieur avec une portée de 150 m [Brown - 2008]. De plus, des mesures de concentrations sur deux espèces ont été réalisées sur la gamme spectrale comprise entre 1300 et 1400 nm à l'aide d'une source supercontinuum couplée à un spectromètre à réseaux d'une résolution spectrale maximale de 1 nm. La concentration en vapeur d'eau atmosphérique est mesurée tandis qu'une cellule massive de 10 cm de long remplie à 100 % de méthane à pression atmosphérique a été mise en place sur le trajet optique du faisceau. L'estimation de la concentration en vapeur d'eau atmosphérique est précise à +/- 1 % [Dobroc - 2012]. Néanmoins, l'inconvénient de ce type de sources optiques très larges spectralement réside dans le faible niveau d'énergie disponible par longueur d'onde émise.

II. DETECTION DE GAZ DE COMBATS ET D'EXPLOSIFS

Dans ce paragraphe, une dernière application de la mesure LIDAR est illustrée au travers d'exemples tirés de la littérature : la détection d'espèces dangereuses (agents chimiques, gaz de combat et explosifs. La menace terroriste envers les populations civiles est un des enjeux majeurs de ces dernières années. Cette menace peut apparaître sous plusieurs formes :

- une attaque chimique de masse avec des gaz de combat comme les gaz neurotoxiques,
- une attaque à la bombe dans des lieux publics très fréquentés comme les aéroports ou les marchés.

Afin de pouvoir prévenir ce genre d'attaques, il est nécessaire de disposer de systèmes de détection performants. Outre la menace terroriste, un autre enjeu nécessitant le développement de ce genre d'instruments est la protection des soldats sur le terrain contre les attaques chimiques lors d'interventions militaires. Ces gaz présentent une signature spectrale intéressante dans la gamme spectrale comprise entre 8 et 12 µm comme illustré sur la *Figure 6* [Webber - 2005]. Par ailleurs, cette gamme spectrale constitue une fenêtre de transmission de l'atmosphère [LWIR] permettant d'envisager la détection de ces espèces sur des portées supérieures au kilomètre.

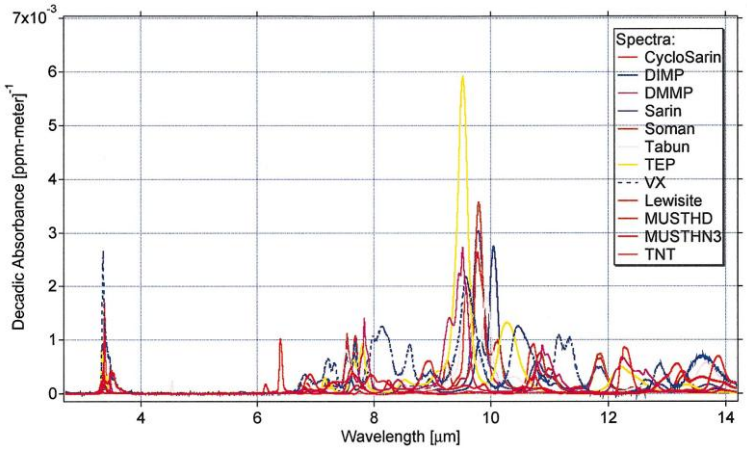


Figure 6 : Exemples de signatures de certains gaz toxiques dans la bande 8 - 12 µm [Webber - 2005]

Afin de pouvoir réaliser une détection des espèces dangereuses par mesure LIDAR sur des portées importantes, il est nécessaire de développer un instrument dont l'émetteur émet des impulsions en régime nanoseconde monofréquence de forte énergie et de bonne qualité spatiale dans la gamme spectrale d'intérêt. Par ailleurs, afin d'assurer une bonne sélectivité en espèce, l'émetteur doit être fin spectralement.

Exemples de développements

Il existe des sources optiques largement accordables pouvant émettre entre 8 et 12 µm et répondant aux spécifications sources ci-dessus : les lasers CO_2, les sources OPOS et les lasers à cascade quantique (QCLs).

Historiquement, les premiers développements LIDAR gaz infrarouge IP-DiAL ont été réalisés à partir d'un laser à CO_2 émettant autour de 10,3 µm [Murray - 1976]. Il délivre des impulsions de 1 J en régime nanoseconde avec une accordabilité d'environ 60 nm dans les

raies du CO_2 permettant d'adresser trois raies de la vapeur d'eau. Par ailleurs, ce LIDAR IP-DiAL permet d'atteindre des portées de l'ordre de 1,5 à 2 km suivant l'épaisseur optique de la raie de vapeur d'eau sondée. De plus, le LIDAR ATLAS basé sur un laser CO_2, a réalisé des mesures de flux de la vapeur d'eau dans les panaches de fumées volcaniques lors d'une éruption du mont Stromboli [Fiorani - 2011]. Ces travaux ont combiné des mesures de la vitesse du vent et des mesures résolues spatialement de la concentration en vapeur d'eau. Le laser CO_2 délivre des impulsions de 850 mJ en régime nanoseconde permettant d'atteindre une portée de 3 km avec une résolution spatiale de 15 m et une résolution temporelle de 20 s. Cependant, l'accord en longueurs d'onde est discret et la couverture spectrale est limitée de 9,2 à 10,8 µm pour les émetteurs basés sur les lasers CO_2.

Les OPOs et les QCLs, quant à eux, permettent d'avoir des couvertures spectrales de plusieurs micromètres. Par exemple, une accordabilité en longueur d'onde entre 3,8 et 12,4 µm a été démontrée avec un OPO basé sur un cristal en ZGP dont la largeur de raie était typiquement de quelques cm^{-1} [Vodopyanov - 2000]. Un exemple d'application à la spectrométrie concerne le développement d'un OPO délivrant des impulsions en régime nanoseconde entre 50 et 400 µJ. Une accordabilité continue entre 7,9 et 12,6 µm est obtenue avec cette source dont la largeur spectrale d'émission est d'environ 2,5 cm^{-1}. Par ailleurs, un banc a été développé grâce auquel une mesure du spectre de l'ammoniac a été réalisée en cellule [Chandra - 2000].

Le concept de laser à cascade quantique est apparue en 1971 mais le premier QCL a été mis en œuvre aux Laboratoires Bell en 1994 par J. Faist et F. Capasso. Au cours de ces dix dernières années, les QCLs ont été implémentés dans des systèmes de détection d'espèces chimiques local par photo-acoustique [Patel - 2008 ; Holthoff - 2010], des systèmes IP-DiAL courte portée, typiquement une trentaine de mètres, avec rétrodiffusion sur une cible blanche [Macleod - 2013] et des systèmes d'imagerie hyperspectrale [Fuchs - 2010 ; Hugger - 2013]. Par exemple, les QCLs actuellement développés sont capable d'émettre entre 4 et 12 µm. Dans le cadre d'une détection locale par mesure photo-acoustique, de nombreux explosifs comme le TNT ou la TATP ont été adressés ainsi que des gaz toxiques comme le DMMP [Patel - 2008]. Il a été démontré qu'il est possible de générer par saut de mode plusieurs dizaines longueurs d'onde avec une accordabilité sur plus de 350 nm [Pushkarsky - 2006 ; Patel - 2008]. De plus, les QCLs sont également de bons candidats pour les instruments de mesure IP-DiAL courte portée. En effet, récemment une mesure de concentration par la méthode IP-DiAL avec une portée de 30 m a été réalisée sur quatre espèces N_2O, H_2O_2, H_2O et CH_4 [Macleod - 2013]. Néanmoins, la puissance crête des QCLs est limitée, en général, à quelques Watts. Ainsi, la portée des instruments LIDAR basés sur les QCLs est restreinte, en particulier, dans le cas de mesures résolues spatialement, les portées d'ordre kilométrique ne sont pas atteignables. Une des solutions proposées afin d'augmenter la portée des instruments dédiés à la détection des espèces chimiques dangereuses consiste à amplifier un QCL [Clément - 2013] afin d'atteindre un niveau d'énergie suffisant en sortie d'émetteur.

III. SUIVI DES CONCENTRATIONS DES GAZ A EFFET DE SERRE DEPUIS L'ESPACE

Une des préoccupations majeures actuelles concerne l'effet de l'augmentation des concentrations des gaz à effet de serre sur le réchauffement climatique. Notamment, l'étude du cycle du carbone et la détermination des puits et des sources des gaz à effet de serre tels que le dioxyde de carbone ou le méthane sont un enjeu majeur pour les années à venir. De nombreuses stations d'observation terrestres sont actives afin de quantifier ces gaz. Cependant, les données récoltées par ces stations sont locales et ne permettent pas de mettre en évidence les flux des différents gaz à effet de serre. La mesure LIDAR par satellite répond à ce besoin de comprendre l'ensemble de ces flux. Une telle mesure permettrait d'obtenir une cartographie planétaire de la distribution du CO_2, par exemple.

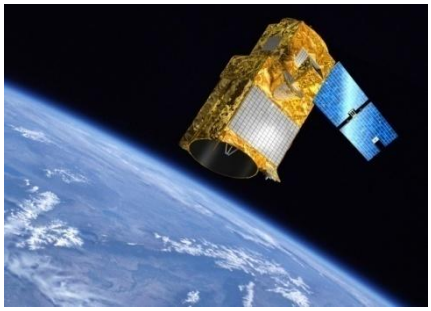


Figure 7 : Illustration du LIDAR gaz MERLIN (Methane Remote Sensing Mission) développé par le DLR (Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt) et le CNES (Centre Nationale d'Etudes Spatiales)

Dans ce contexte applicatif, plusieurs études théoriques [Caron - 2009 ; Ehret - 2008] ont été réalisées afin de déterminer les raies d'absorption les plus adaptées à une mesure IP-DiAL depuis l'espace des gaz d'intérêt (CO_2, CH_4, NO_2). Deux gammes spectrales ont été sélectionnées pour la caractérisation du dioxyde de carbone et du méthane : la première est située autour de 1,5 µm et la seconde gamme intéressante autour de 2 µm.

Exemples de développements

Ce paragraphe présente un état de l'art des instruments LIDAR en cours de développement dédiés au suivi des concentrations des gaz à effet de serre depuis l'espace. Notons ici qu'à ce jour il n'y a pas de satellites de mesure des gaz à effet de serre en orbite. La mission MERLIN dédiée au suivi en concentration du méthane est en préparation (*Figure 7*) ainsi que la mission ASCEND dédiée au suivi du dioxyde de carbone (NASA). Dans ce contexte du suivi des concentrations des gaz à effet de serre depuis l'espace, les spécifications associées au développement de ces instruments sont très exigeantes notamment vis à vis de l'émetteur [Ehret - 2008 ; Caron - 2009]. Ces spécifications émetteur sont détaillées dans la partie C de ce manuscrit. Afin de répondre à ces spécifications, plusieurs développements instrumentaux sont en cours de réalisation.

Le premier exemple concerne les développements réalisés par la NASA à 2 µm basés sur un émetteur laser injecté. Cet émetteur utilise un cristal en Tm,Ho:LiLuF permettant de délivrer des impulsions de 90 mJ afin d'atteindre une portée de 1,3 km pour la détection du dioxyde de carbone par mesure LIDAR résolue spatialement [Koch - 2008]. Récemment, des mesures LIDAR IP-DiAL aéroportées sur le CO_2 ont été réalisées en détection hétérodyne sur des portées d'environ 3 km. Cette campagne de mesures démontre une précision sur la concentration moyenne en CO_2 de 4 ppm environ [Spiers - 2011]. De plus, les lasers basés

sur les cristaux Tm,Ho:YLF permettent aussi de réaliser un suivi en concentration des gaz à effet de serre autour de 2 µm. La première mesure LIDAR du dioxyde de carbone et de la vapeur d'eau atmosphériques a été réalisé avec un émetteur de ce type délivrant un rayonnement continu à 2,066 µm accordable sur 6 cm^{-1}. Cette expérience montre une précision de mesure comprise entre 5 et 10 % sur les deux espèces atmosphériques [Taczak - 1998]. Néanmoins les gammes spectrales atteintes dans cet exemple ne correspondent pas aux spécifications pour les applications spatiales [Ehret - 2008 ; Caron - 2009]. En s'appuyant sur cette technologie, un LIDAR en détection cohérente permettant le suivi de la concentration en CO_2 à 2,064 µm jusqu'à une altitude d'environ 1,5 km a été développé. Cet instrument permet également de réaliser une mesure du profil de la vitesse du vent [Le Rille - 2002]. De même, l'Institut Pierre et Simon Laplace [IPSL] a développé et testé un instrument lidar en détection hétérodyne autour de 2 µm permettant d'atteindre une portée kilométrique pour la mesure du CO_2 atmosphérique. Pour cet instrument, l'émetteur délivre des impulsions de 10 mJ accordable entre 2050 et 2065 nm [Gibert - 2006 ; Gibert - 2008]. Néanmoins, ces instruments pour le spatial basés sur des émetteurs laser sont limités à une configuration de mesure mono-espèce car leur accordabilité est restreinte.

Par ailleurs, plusieurs développements d'instruments LIDAR sont en cours, émettant autour de 1,5 µm afin de pouvoir adresser le dioxyde de carbone et/ou le méthane. Par exemple, l'agence spatiale japonaise [JAXA] développe un LIDAR basé sur un OPO injecté permettant de suivre la concentration en dioxyde de carbone à 1,6 µm sur une portée de 2 km [Sakaizawa – 2009 ; Sakaizawa - 2010]. De plus, la NASA et le DLR développent des instruments LIDAR basés sur la même technologie OPO injecté pouvant détecter le méthane ou le dioxyde de carbone dans cette gamme spectrale [Riris – 2012 ; Amediek - 2008]. La NASA a démontré le potentiel de cette technologie au travers de campagnes de mesures aéroportées utilisant le technique de mesure IP-DiAL avec une détection directe sur le méthane à 1,65 µm [Riris - 2012] et sur le dioxyde de carbone à 1,57 µm [Abshire 2013] avec des portées supérieures à 10 km. Le DLR est impliqué dans le développement de deux instruments basés sur des OPOs pour sonder simultanément deux espèces : le CO_2 et le CH_4 à 1,57 µm et 1,64 µm respectivement [Fix - 2011].

De plus, des travaux récents de la NASA ont montré les bénéfices apportés par un instrument multi-longueurs d'onde [Numata - 2012] générant jusqu'à vingt longueurs d'onde pour le sondage d'une espèce. En effet, un émetteur multi-longueurs d'onde a le potentiel de réaliser des mesure multi-espèces. Enfin, un instrument LIDAR IP-DiAL multi-espèces permettant d'adresser quatre espèces (CH_4, CO_2, H_2O et CO) a été testé lors de campagnes de mesures au sol avec une portée de 11 km [Numata - 2014]. Cependant, cet instrument est composé de trois émetteurs le rendant complexe.

De plus, le suivi de la qualité de l'air est intéressant pour la prédiction du climat dans les décennies ou les siècles à venir. Par exemple, le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement [LSCE] cherche à comprendre les évolutions du climat à toutes les échelles temporelles afin de pouvoir prédire les changements climatiques auxquels seront soumis la planète dans les prochaines décennies et les prochains siècles. L'objectif est de quantifier et comprendre l'évolution récente des flux de gaz à effet de serre, aérosols et gaz réactifs, et des échanges d'énergie et d'eau des surfaces continentales. Le projet RAMCES a permis une mise en commun des ressources de plusieurs stations en Europe. Au travers de ce projet, le suivi en concentration de divers gaz comme CH_4, CO_2, NO_2 a été réalisé à l'aide de divers instruments dont un LIDAR installé sur le site du LCSE.

IV. Analyse des besoins de nouvelles briques technologiques

L'état de l'art montre le potentiel des mesures lidar dans le cadre de ces diverses applications. Cependant, les développements effectués jusqu'à présent ont des limites. Ainsi, une analyse des besoins de nouvelles technologies pour les développements de l'émetteur concernant les trois applications envisagée ci-dessus est menée ici à partir de l'état de l'art fait précédemment.

La détection d'explosif et de gaz de combat

Les OPOs et QCLs sont les deux technologies émetteur largement accordables entre 8 et 12 µm actuellement utilisés pour la détection d'espèces dangereuses par mesure locale ou par mesure IP-DiAL courte portée (typiquement < 100 m). L'objectif est alors de favoriser davantage la détection multi-gaz et multi-longueurs d'onde à l'aide d'émetteur largement accordable. Mais surtout, il convient d'aller vers des systèmes LIDAR à base de QCLs de plus grande portée et atteindre le kilomètre. Cette application est étudiée à l'Onera au travers de la thèse de Q. Clément. Elle ne fait pas l'objet direct des développements de cette thèse. Cependant, nous avons été amenés à collaborer ensemble sur ce sujet car la source développée au cours du chapitre C a été mise en œuvre pour l'amplification d'un QCL au cours de ma thèse [Clément - 2013]. Cette expérience a fait l'objet d'une publication reportée en Annexe E.

Le suivi de la qualité de l'air et des polluants industriels

Au travers des différents développements évoqués dans le I, nous avons pu constater qu'il existe une multitude d'émetteurs. En effet, les applications étant diverses, les spécifications liées à chacune de ces applications sont uniques. L'inconvénient majeur des instruments actuels reste leur encombrement et leur complexité. En effet, les installations sont soit fixes soit contenues dans un camion. A présent, le but est de se diriger vers des systèmes de mesure LIDAR plus compacts et transportables. Plus particulièrement, au cours de cette thèse des développements ont eu lieu afin de développer un instrument IP-DiAL compact et transportable sur site industriel. Ces travaux sont présentés dans le chapitre B de ce manuscrit.

Le suivi de gaz à effet de serre depuis l'espace

De nombreux instruments sont développés pour le suivi de concentration de gaz à effet de serre depuis l'espace basé sur des technologies émetteurs différentes. La plupart de ces instruments sont dédiés à l'étude d'une seule espèce car leur accordabilité est limitée. Par ailleurs, quelques émetteurs développés pour cette application permettent de réaliser des mesures LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces. Cependant, la plupart des instruments multi-espèces sont constitués d'un émetteur par espèce d'intérêt. A présent, l'objectif est de développer un unique émetteur permettant d'adresser plusieurs gaz à effet de serre. Les développements effectués au cours de cette thèse sur ce sujet sont présentés dans le chapitre C. Par ailleurs, la mesure LIDAR multi-longueurs d'onde permettant d'émettre plus que deux longueurs d'onde pour sonder une même espèce, semble une piste intéressante à explorer. Une réflexion sera initiée au cours de cette thèse sur ce sujet aussi bien dans le chapitre B que dans le chapitre C.

LES DEVELOPPEMENTS EFFECTUES AU COURS DE CETTE THESE

Dans le cadre des travaux de cette thèse, nous proposons d'explorer les possibilités de mesure des espèces minoritaires telles que CO_2, CH_4 ou H_2O, dans l'infrarouge proche et moyen. Pour cela, nous avons développé deux instruments LIDARs s'appuyant sur la technologie OPO :

(1) Un premier instrument dédié au suivi de concentration de gaz pour des applications de type industrielles. Afin de disposer d'un instrument compact et facilement transportable, nous nous attacherons à développer un émetteur compact, multi-espèces, et nous l'intégrerons dans un instrument permettant d'effectuer des mesures IP-DiAL avec une portée de l'ordre de 100 m. La gamme spectrale accessible grâce à cet instrument sera comprise entre 3,3 et 3,7 µm permettant de mesurer de nombreux polluants industriels comme les COVs (l'acétone, le propylène ...), le dioxyde d'azote (NO_2) et certains gaz à effet de serre comme le méthane ou la vapeur d'eau.

(2) Un second instrument dédié au suivi des concentrations de gaz à effet de serre, multi-espèces. Le but de ce développement est ici de répondre aux besoins des applications spatiales en démontrant la possibilité d'un instrument tri-espèces (CO_2, CH_4, H_2O) autour de 2 µm à partir d'une seule architecture. Il s'agira de montrer le potentiel de l'architecture émetteur retenue pour cette application. Pour cela, la mise en place d'un système LIDAR longue portée depuis le sol ainsi que la mise en place d'un code numérique de modélisation de l'instrument sera effectué.

Pour ces deux instruments, la problématique du nombre de longueurs d'onde à émettre pour répondre au mieux aux différents scénarios de détection sera abordée dans le domaine spectral moyen infrarouge permettant cibler les polluants industriels d'un part et les gaz à effet de serre d'autre part.

PLAN DU MANUSCRIT

Mon travail de thèse s'inscrit dans cette problématique de détection et quantification de gaz à l'état de traces dans l'atmosphère. Il consiste à développer et caractériser deux instruments LIDAR capable de réaliser des mesures de concentrations multi-longueurs d'onde et multi-espèces à l'aide d'un seul émetteur. Ainsi, pour plus de clarté, les deux instruments sont présentés dans deux chapitres distincts. Le manuscrit est constitué de trois chapitres :

Dans le ***chapitre A***, nous nous intéressons dans un premier temps aux notions de base concernant la mesure LIDAR DiAL. Ensuite, un état de l'art au niveau des instruments LIDAR est présenté concernant différentes applications. Enfin, nous présentons la brique technologique constituant les émetteurs développés au cours de cette thèse en rappelant succinctement quelques notions d'optique non linéaire.

Le ***chapitre B*** est consacré au développement et à la caractérisation d'un instrument IP-DiAL destiné au suivi du méthane dans le cadre de la surveillance des sites industriels. Les mesures LIDAR intégrée colonne multi-espèces sont présentées et étudiées. Une analyse critique des performances de l'instrument est réalisée. Les sources de bruit principales de la mesure sont identifiées et la portée maximale de l'instrument ainsi que sa sensibilité sont

estimées. Et enfin, nous proposons des pistes d'amélioration pour l'instrument en termes d'optimisation de la portée et de la robustesse.

Le ***chapitre C*** est dédiée aux travaux réalisés sur le développement d'un émetteur permettant de réaliser des mesures LIDAR dans la gamme spectrale à 2 µm. Dans un premier temps, le contexte de développement ainsi que les spécifications de l'émetteur liées à l'application du suivi des gaz à effet de serre dans le contexte spatial sont présentés. Ensuite, nous aborderons les développements effectués sur l'émetteur dédié aux mesures LIDAR DiAL résolue spatialement autour de 2 µm. En particulier, nous présentons les améliorations apportées à un banc existant d'un point de vue notamment énergétique et spectral. Par ailleurs, un code de modélisation de l'instrument a été développé à cette occasion afin de prévoir les performances de notre instrument. Enfin, plusieurs perspectives d'améliorations sont dégagées.

Chapitre A : Introduction - Principe de la mesure lidar et sources laser OPO adaptées aux mesures visées

Objectif du chapitre :

Dans ce chapitre, nous rappelons le principe d'une mesure lidar ainsi que les notions de base associées dont notamment les deux techniques de mesure utilisés au cours de ces travaux. De plus, des rappels sont faits sur l'optique non linéaire et la source OPO utilisée. Les propriétés d'émission, en particulier spectrales, intéressantes pour la mesure lidar multi-espèces sont présentées.

A.1. Le lidar : principe général

A.1.1. Rappels théoriques sur l'instrument de mesure LIDAR

LIDAR est l'acronyme pour "*Light Detection and Ranging*" et désigne une méthode de mesure active analogue au RADAR pour "*Radiometry Detection and Ranging*" mais adaptée au domaine des longueurs d'onde optiques. Par extension LIDAR désigne l'instrument complet constitué dans son principe d'une source laser, d'une cible et d'un système de détection permettant de mesurer l'écho laser sur cette cible, c'est-à-dire la lumière réfléchie. Selon les applications cette cible peut être dure ou volumique. Le sondage atmosphérique permet de réaliser des mesures de vélocimétrie [Gentry - 2000], de profils d'aérosols [She - 1992], d'altimétrie... Par ailleurs, cette technique est une des méthodes utilisées actuellement pour la spectrométrie d'espèces atmosphériques à l'état de traces. Il existe de nombreuses méthodes optiques pour la détection et la quantification de gaz à l'état de traces s'appuyant principalement sur l'utilisation de trois processus physiques [Sigrist - 1994] la fluorescence [Cleary - 2002], la diffusion [Cooney - 1970] et l'absorption, faisant aussi l'objet de développement à l'Onera/DMPH dans le contexte des applications aéronautiques et spatiales. Dans le cadre de cette thèse, nous nous focaliserons sur les lidars permettant de mesurer les espèces minoritaires en s'appuyant sur la spectrométrie d'absorption que nous dénommerons par la suite "lidar gaz".

- La spectrométrie d'absorption

La spectrométrie d'absorption basée sur l'absorption directe du rayonnement permet l'identification et la quantification de molécules présentes dans un mélange. Le processus d'absorption s'appuient sur la loi de Beer-Lambert pour laquelle l'intensité transmise $I_2(\lambda)$ est liée à l'intensité incidente $I_1(\lambda)$ par le coefficient d'absorption α par la relation suivante :

$$I_2(\lambda) = I_1(\lambda) exp(-\alpha(\lambda)L) \qquad \textit{(Eq. 1)}$$

avec L la longueur du milieu traversée par le rayonnement.

Cette méthode est à la base d'un grand nombre d'instruments et de techniques de mesure s'appuyant soit sur la mesure d'un spectre d'absorption soit sur la mesure d'une absorption différentielle. Parmi les techniques développées, nous pouvons citer deux techniques sensibles basées sur l'utilisation d'une cavité : la spectroscopie photoacoustique et la CRDS pour *Cavity Ring-Down Spectroscopy*. La spectroscopie photoacoustique détecte un signal photoacoustique directement proportionnel à l'absorption du rayonnement incident [Sigrist - 1994]. C'est une technique de mesure sur fond noir permettant de mesurer de nombreux polluants industriels et d'atteindre de très bonne sensibilité de détection dans la gamme spectrale infrarouge. La technique de mesure CRDS consiste à réaliser une mesure du temps de vie des photons dans une cavité hautement réfléchissante [Romanini - 1997]. En présence d'une molécule, le temps du photon dans la cavité est plus court qu'en son absence permettant d'en déduire sa concentration. Cette technique est insensible aux fluctuations en puissance de la source optique et permet d'atteindre des niveaux de sensibilité meilleure que le ppt. Par exemple, elle a permis de réaliser une analyse sur l'éthane de l'air expiré en temps réel [Dahnke - 2001]. Elle est aussi mise en œuvre à l'Onera/DMPH pour la caractérisation des écoulements en soufflerie hypersonique. Cependant, cette technique

nécessite l'utilisation de miroirs hautement réfléchissant limitant ainsi la gamme spectrale utile autour de la longueur d'onde centrale.

- Le "lidar gaz"

En particulier, le "lidar gaz" est à la base du sondage atmosphérique pour la mesure de concentrations des constituants atmosphériques. Cet instrument permet de mesurer de nombreux polluants industriels et gaz à effet de serre sur une gamme spectrale allant de l'ultraviolet à l'infrarouge. Selon la technique de mesure utilisée (A.1.3), il est possible de réaliser des profils de concentration en espèce ou une mesure de la concentration moyenne sur la ligne de visée permettant ainsi d'adresser de nombreuses applications (environnementale, défense, industrielle ...). Cette technologie fait l'objet de développements récents à l'Onera, dans lesquels s'inscrivent cette thèse. Le principe général de fonctionnement du LIDAR gaz est représenté sur la *Figure 8*.

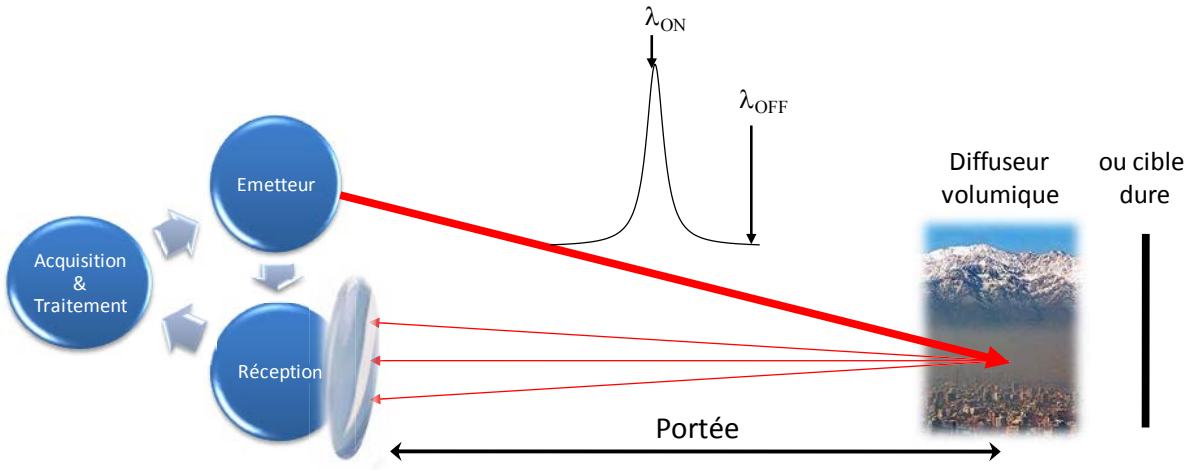


Figure 8 : Schéma de principe général d'un instrument LIDAR gaz DiAL mono-espèce dont une longueur d'onde est émise dans la raie d'absorption (λ_{on}) et une longueur d'onde est émise en dehors de toute absorption (λ_{off}).

Un instrument LIDAR gaz est constitué de trois blocs représentés : (1) un bloc émetteur, (2) un bloc réception et (3) un bloc d'acquisition et traitement de l'information. Le principe d'une mesure LIDAR consiste à envoyer un faisceau laser impulsionnel à travers l'atmosphère, constituant la ligne de visée et d'analyser le rayonnement rétrodiffusé par une cible, sur des portées variant de quelques mètres à quelques centaines de kilomètres. Cette cible peut être de différentes natures selon les systèmes :

- une cible dure comme un objet, la surface de la terre, les nuages
- une cible volumique constituée des particules de l'atmosphère permettant d'analyser le rayonnement rétrodiffusé le long de la ligne de visée.

Dans la suite de ce paragraphe, nous nous plaçons dans le cas particulier d'une cible volumique où l'on a accès à une résolution spatiale le long de la ligne de visée grâce au caractère impulsionnel de la source optique. Ainsi une détection en fonction de la distance r entre le laser et le volume de mesure est possible. Il est alors possible de réaliser des mesures de profil de concentration en gaz avec une résolution spatiale ΔR limitée en théorie par la durée de l'impulsion laser τ_L.

$$\Delta R = \frac{\tau_L c}{2} \qquad \textit{(Eq. 2)}$$

avec c la célérité de la lumière.

En pratique, cette résolution spatiale ΔR sera limitée par la rapidité des électroniques du système de détection.

Au cours de son trajet au travers de l'atmosphère, selon ses propriétés spectrales, le faisceau est absorbé par les molécules contenues dans l'atmosphère. On se place dans le cas où une partie du faisceau émis est rétrodiffusée par les particules contenues dans l'atmosphère c'est-à-dire les aérosols, et collectée à l'aide du bloc de réception constitué d'un télescope et d'un module de détection. Ainsi, deux processus de diffusion élastique sont à l'origine du coefficient de diffusion totale $\alpha_d(\lambda, r)$:

- la diffusion Rayleigh [Rayleigh - 1871] et
- la diffusion de Mie [Mie - 1908].

La diffusion de Rayleigh correspond au cas où la taille des particules est petite devant la longueur d'onde du rayonnement incident. La diffusion du rayonnement par des particules sphériques de taille au moins de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde est bien décrite par la théorie de Mie. L'atmosphère est constituée de molécules et de particules qui participent aux processus de diffusion.

Tout d'abord, la diffusion moléculaire est bien décrite par la diffusion de Rayleigh. En effet, la taille des molécules de gaz de l'ordre de l'Ångström, à savoir 10^{-10} m, est très petite par rapport à la longueur d'onde du rayonnement incident de l'ordre de 10^{-6} m.

La diffusion particulaire est due aux aérosols contenus dans l'atmosphère. Ces particules sont plus massives avec une distribution de taille allant de quelques dizaines de nm à quelques µm. Si on suppose que les aérosols sont des particules sphériques, la diffusion particulaire est bien décrite par la diffusion de Mie [Born - 1999].

Le coefficient de diffusion totale $\alpha_d(\lambda, r)$ est défini par l'intégration du coefficient de diffusion angulaire $\beta(\theta, \lambda, r)$ (en $m^{-1}.sr^{-1}$) sur tout l'espace c'est-à-dire sur 4π stéradians et s'exprime de la manière suivante :

$$\alpha_d(\lambda, r) = \int_{4\pi} \beta(\theta, \lambda, r) d\theta \qquad \textit{(Eq. 3)}$$

$$\beta(\theta, \lambda, r) = \sum_{i=1}^{L} n_{\beta,i}(r) \sigma_{d,i}(\theta, \lambda) \qquad \textit{(Eq. 4)}$$

avec $n_{\beta,i}(r)$ la concentration volumique et $\sigma_{d,i}(\theta, \lambda)$ la section efficace différentielle de diffusion dans la direction θ pour l'espèce diffusante i.

De plus, comme nous l'avons précisé, le signal utile lors d'une mesure LIDAR correspond à la partie du signal rétrodiffusé par l'atmosphère. Tout d'abord, abordons la notion de rétrodiffusion. Le coefficient de rétrodiffusion $\beta(\pi, \lambda, r)$ (en $m^{-1}.sr^{-1}$) est défini comme le coefficient de diffusion sur la ligne de visée pour une direction de diffusion $\theta = \pi$. Dans la suite du manuscrit, le coefficient de rétrodiffusion sera noté $\beta_\pi(\lambda, r)$. Dans le cas général, ce coefficient est constitué d'une contribution moléculaire et d'une contribution particulaire :

$$\beta_\pi(\lambda, r) = \beta_m(\lambda, r) + \beta_p(\lambda, r) \qquad \textit{(Eq. 5)}$$

avec $\beta_m(\lambda, r)$ le coefficient de rétrodiffusion moléculaire et $\beta_p(\lambda, r)$ le coefficient de rétrodiffusion particulaire.

Dans des conditions normales de pression et de température, il est possible d'estimer le coefficient de rétrodiffusion moléculaire $\beta_m(\lambda, r)$ (en $m^{-1}.sr^{-1}$) à la longueur d'onde λ à l'aide de relation suivante [Collis - 1976] :

$$\beta_m(\lambda, r) = 1{,}39 \times \left(\frac{\lambda}{0{,}55}\right)^{-4} \times 10^{-6} \qquad \textit{(Eq. 6)}$$

avec la longueur d'onde λ exprimée en µm. Cette relation est valable pour une mesure depuis le sol.

Par exemple, pour un rayonnement dans l'infrarouge le coefficient de diffusion moléculaire β_m est de l'ordre de 10^{-9} $m^{-1}.sr^{-1}$. Le coefficient de rétrodiffusion totale à 2 µm mesuré lors de travaux antérieurs dans des conditions atmosphériques correspondant à des conditions météorologiques classiques en milieu urbain européen [Le Rille - 2002] est de l'ordre de 10^{-7} $m^{-1}.sr^{-1}$. On en conclut que la diffusion de Mie par les particules est prépondérante devant la diffusion moléculaire dans l'infrarouge dans notre cas expérimental proche de celui de la thèse de O. Le Rille [Le Rille - 2002].

Les particules aérosols sont particulièrement présentes dans les basses couches de l'atmosphère mais leur taille, leur concentration et leur composition varient en fonction de la zone géographique et des conditions climatiques. Ainsi, la valeur du coefficient de rétrodiffusion particulaire peut varier de plusieurs ordres de grandeur en fonction de ces paramètres. Dans le cas d'une mesure LIDAR DiAL, la mesure du coefficient de rétrodiffusion n'est pas indispensable. En effet, la mesure de la puissance rétrodiffusée à la longueur d'onde "OFF" permet de normaliser la transmission atmosphérique en caractérisant l'extinction atmosphérique car les longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} sont choisies suffisamment proches spectralement. La mesure du coefficient de rétrodiffusion permet de connaître la distribution spatiale des aérosols et des particules de l'atmosphère. Ceci n'est pas l'objet de ce travail de thèse.

L'atténuation du signal observée au cours de sa propagation dans l'atmosphère est définie par un coefficient d'extinction total $\alpha_e(\lambda, r)$ (en m^{-1}) égal à la somme du coefficient de diffusion totale $\alpha_d(\lambda, r)$ (en m^{-1}) et du coefficient d'absorption totale $\alpha_a(\lambda, r)$ (en m^{-1}) correspondant à l'absorption du rayonnement par les gaz présents.

$$\alpha_e(\lambda, r) = \alpha_a(\lambda, r) + \alpha_d(\lambda, r) \qquad \textit{(Eq. 7)}$$

Ainsi, la transmission atmosphérique sur un aller-retour mesurée entre le LIDAR et une tranche d'atmosphère située à une distance r s'exprime de la manière suivante :

$$T_{atm}(\lambda, r) = \exp\left(-2 \times \int_0^r \alpha_e(\lambda, r')dr'\right) \qquad \textit{(Eq. 8)}$$

avec *r* la distance de mesure par rapport au système de collection ou d'émission supposé ici placés au même endroit.

Le coefficient d'absorption traduit la capacité d'une molécule à absorber un rayonnement incident à la longueur d'onde λ. Pour une tranche d'atmosphère située à une distance *r* et constituée de *M* types de molécules avec une concentration n_i (en m^{-3}), le coefficient d'absorption totale $\alpha_a(\lambda, r)$ s'exprime de la manière suivante :

$$\alpha_a(\lambda, r) = \sum_{i=1}^{M} n_i(r)\sigma_{a,i}(\lambda) \qquad \textit{(Eq. 9)}$$

avec $\sigma_{a,i}(\lambda)$ la section efficace d'absorption de chaque molécule présente dans le volume sondé en m^2.

Par ailleurs, afin de pouvoir réaliser une détection efficace des gaz d'intérêt sur de grandes portées (supérieures au kilomètre), il est nécessaire d'avoir une très bonne transmission atmosphérique. Par conséquent, l'atténuation due à l'atmosphère (l'absorption par les autres espèces, la diffusion, les turbulences atmosphériques ...) doit être négligeable dans les domaines spectraux utilisés.

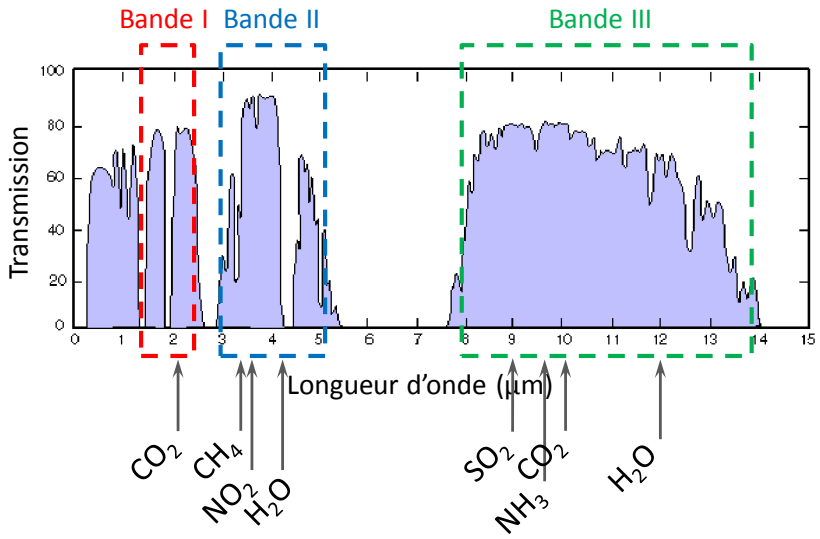


Figure 9 : Transmission atmosphérique dans l'infrarouge entre 1 et 15 µm. Mise en évidence des trois fenêtres de transparence de l'atmosphère avec quelques espèces d'intérêt pour la mesure LIDAR.

En particulier, l'absorption par les espèces fortement présentes dans l'atmosphère, comme la vapeur d'eau par exemple, peut être problématique. Ainsi, les gammes spectrales choisies correspondent aux fenêtres de transparence de l'atmosphère représentées sur la *Figure 9*. Ainsi, les gammes spectrales intéressantes accessibles pour la détection de gaz dans l'atmosphère sont alors limitées aux trois fenêtres de transparence :

- ✓ Proche infrarouge : entre 1,5 et 2,5 µm [SWIR]
- ✓ Moyen infrarouge : entre 3 et 5 µm [MWIR]
- ✓ Infrarouge thermique : entre 8 et 12 µm [LWIR]

Comme illustré sur la *Figure 9*, les espèces visées dans ces différentes fenêtres de transparence de l'atmosphère ne sont pas les mêmes. Ainsi, comme nous l'avons constaté au travers de plusieurs exemples de mesures LIDAR dans l'introduction générale diverses applications sont associées à ces domaines spectraux.

Ainsi, en considérant que le champ d'émission est inférieur au champ de réception, l'équation générale donnant la puissance moyenne du signal rétrodiffusé par l'atmosphère par une tranche d'atmosphère d'épaisseur ΔR centrée à une distance r à un instant t est la suivante [Le Rille - 2002] :

$$P_R(\lambda, r = c \times t) = \int_{\frac{c}{2}\left(t-\frac{\tau_L}{2}\right)}^{\frac{c}{2}\left(t+\frac{\tau_L}{2}\right)} P_{inc}\left(t - \frac{2r'}{c}\right)\frac{A_{op}}{r'^2} T_{op} T_{atm}(\lambda, r')\beta_\pi(\lambda, r')dr' \qquad \textit{(Eq. 10)}$$

avec $\beta_\pi(\lambda, r)$ le coefficient de rétrodiffusion, T_{op} la transmission du système de réception, P_{inc} la puissance crête de l'impulsion laser émise, A_{op} la surface du télescope.

Si on peut considérer que le temps de propagation aller-retour de l'impulsion laser sur la distance r est grand devant la durée de l'impulsion, alors le terme en $1/r^2$ est considéré comme constant sur l'épaisseur Δr de la couche traversée. D'autre part, nous faisons comme hypothèse que le coefficient de rétrodiffusion, la transmission atmosphérique et la transmission du système optique sont constants dans chaque tranche atmosphérique sondée. Alors l'équation *(Eq. 10)* donnant la puissance moyenne du signal rétrodiffusé s'exprime de la manière suivante :

$$P_R(\lambda, r) = \beta_\pi(\lambda, r) T_{op} T_{atm}(\lambda, r) \frac{E_{inc} c}{2} \frac{A_{op}}{r^2} \qquad \textit{(Eq. 11)}$$

avec $\beta_\pi(\lambda, r)$ le coefficient de rétrodiffusion, E_{inc} l'énergie émise par impulsion en sortie de l'émetteur, A_{op} la surface du télescope et r la distance.

La puissance rétrodiffusée est proportionnelle au coefficient de rétrodiffusion $\beta_\pi(\lambda, r)$, à la transmission atmosphérique sur un aller-retour $T_{atm}(\lambda, r)$ et à l'angle solide de collection de la réception A_{op}/r^2. Cette équation généralement présentée comme étant l'équation LIDAR [Measures - 1984].

A.1.2. Le schéma de détection choisi

Dans le cadre de ma thèse, nous avons choisi d'utiliser une détection directe du fait du caractère multi-longueurs d'onde sur une grande gamme spectrale de la mesure LIDAR. Cette méthode de détection principalement limitée par le bruit de détection lui-même est bien adaptée aux mesures que nous souhaitons réalisées.

A.1.3. Les diverses techniques de mesure par LIDAR

Au cours des travaux menés dans cette thèse, les deux techniques de mesure par LIDAR seront abordées, à savoir :

1. la mesure de concentration résolue spatialement DiAL ;
2. la mesure de concentration intégrée sur la ligne de visée.

Ces deux techniques permettent de réaliser des mesures de concentration de gaz à distance à partir d'une mesure de l'absorption pour deux longueurs d'onde ou d'un spectre d'absorption. Ainsi, l'objectif de ce paragraphe est de présenter ces deux techniques en considérant les hypothèses suivantes :

- un champ d'émission adapté au champ de réception ;
- le coefficient de rétrodiffusion, la transmission atmosphérique et la transmission du système optique sont constants dans chaque tranche atmosphérique sondée ;
- une mesure DiAL à deux longueurs d'onde uniquement dites "ON" et "OFF" (avec et hors absorption).

Ainsi, on se place dans un cas simple de mesure de concentration avec deux longueurs d'onde dites "ON" et "OFF".

La mesure de concentration résolue spatialement DiAL

Cette technique consiste à collecter la partie du signal rétrodiffusé par les particules contenues dans l'atmosphère sur des portées supérieures au kilomètre, et en déduire la concentration d'un gaz à une distance donnée par une mesure de l'absorption différentielle [DiAL] de ce gaz adressé à deux longueurs d'onde. Ainsi, l'émetteur génère deux longueurs d'onde que l'on désignera par λ_{on} et λ_{off} comme représenté sur la *Figure 8*. La première, λ_{on}, est située dans une raie d'absorption isolée, c'est-à-dire sans interférents, de la molécule adressée. La seconde longueur d'onde, λ_{off}, est choisie en dehors de toute absorption. Ainsi, à partir de l'équation *(Eq. 11)*, les puissances moyennes des signaux rétrodiffusés aux deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} s'expriment de la manière suivante :

$$P_R(\lambda_{on},r) = \frac{cA_{op}T_{op}}{2r^2}E_{inc}(\lambda_{on})\beta_\pi(\lambda_{on}) \times exp\left[-2\int_0^r \left(\alpha_a(\lambda_{on},r') + \xi(\lambda_{on},r')\right)dr'\right] \quad \textit{(Eq. 12)}$$

$$P_R(\lambda_{off},r) = \frac{cA_{op}T_{op}}{2r^2}E_{inc}(\lambda_{off})\beta_\pi(\lambda_{off}) \times exp\left[-2\int_0^r \left(\alpha_a(\lambda_{off},r') + \xi(\lambda_{off},r')\right)dr'\right] \quad \textit{(Eq. 13)}$$

avec $\beta_\pi(\lambda)$ le coefficient de rétrodiffusion, $\alpha_a(\lambda, r)$ le coefficient d'absorption totale au longueur d'onde λ_{on} et λ_{off} et $\xi(\lambda, r)$ le coefficient d'extinction résiduelle incluant l'ensemble des processus de diffusion latérale et d'absorption moléculaire autre que l'absorption de l'espèce mesurée aux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off}.

Ensuite, à partir de l'analyse des puissances moyennes rétrodiffusés par les particules de l'atmosphère à ces deux longueurs d'onde, il est possible de retrouver certaines informations utiles sur le (ou les) gaz adressé(s) comme leur concentration. Effet, la concentration de la molécule considérée est liée au coefficient d'absorption $\alpha_a(\lambda, r)$ par l'expression suivante :

$$\alpha_a(\lambda_{on},r) = N(r)\sigma_a(\lambda_{on},r) \quad \textit{(Eq. 14)}$$

avec $N(r)$ la concentration volumique en espèce en m^{-3} et $\sigma_a(\lambda_{on}, r)$ la section efficace d'absorption de l'espèce d'intérêt qui dépend des conditions de pression et température de l'atmosphère à la distance r.

Par ailleurs, la longueur d'onde a été choisie ici afin que l'absorption pour toutes les molécules présentes (la molécule sondée et les interférents) soit nulle :

$$\alpha_a(\lambda_{off},r) = 0 \quad \textit{(Eq. 15)}$$

En considérant une énergie émise égale aux deux longueurs d'onde, l'expression de la concentration $N(r)$ s'exprime à partir du rapport des équations *(Eq. 12)* et *(Eq. 13)* de la manière suivante :

$$N(r) = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on},r)} \times \left(\frac{d}{dr}\left[ln\left[\frac{P_R(\lambda_{off},r)}{P_R(\lambda_{on},r)}\right]\right] - \frac{d}{dr}\left[ln\left[\frac{\beta(\lambda_{off},r)}{\beta(\lambda_{on},r)}\right]\right] - 2[\xi(\lambda_{on},r) - \xi(\lambda_{off},r)]\right) \quad \textit{(Eq. 16)}$$

On en déduit alors l'expression de la concentration moyenne $N_{av}(r)$ sur une tranche atmosphérique d'épaisseur Δr, correspondant la résolution spatiale de l'instrument, située à une distance r.

$$N_{av}(r) = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on},r)\Delta r} \times \left(ln\left[\frac{P_R(\lambda_{off},r+\Delta r)P_R(\lambda_{on},r)}{P_R(\lambda_{on},r+\Delta r)P_R(\lambda_{off},r)}\right] - ln\left[\frac{\beta(\lambda_{off},r+\Delta r)\beta(\lambda_{on},r)}{\beta(\lambda_{on},r+\Delta r)\beta(\lambda_{off},r)}\right] - 2\left[\xi(\lambda_{on},r) - \xi(\lambda_{off},r)\right]\Delta r \right) \quad \textit{(Eq. 17)}$$

Dans l'hypothèse où λ_{on} et λ_{off} sont suffisamment proches l'une de l'autre, alors les termes de rétrodiffusion et d'extinction résiduelle sont considérés égaux en première approximation. L'expression de la concentration moyenne $N_{av}(r)$ sur une tranche atmosphérique d'épaisseur Δr, correspondant la résolution spatiale de l'instrument, située à une distance r s'exprime de la manière suivante :

$$N_{av}(r) = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on},r)\Delta r} \times ln\left[\frac{P_R(\lambda_{off},r+\Delta r)P_R(\lambda_{on},r)}{P_R(\lambda_{on},r+\Delta r)P_R(\lambda_{off},r)}\right] \quad \textit{(Eq. 18)}$$

La mesure LIDAR résolue spatialement permet de réaliser des profils de concentrations le long de la ligne de visée pour les espèces d'intérêt avec une résolution spatiale ΔR limitée par la durée de l'impulsion laser.

Ce type de technique nécessite de disposer d'un émetteur très énergétique, en régime nanoseconde permettant d'obtenir une bonne résolution spatiale sur la ligne de visée de l'ordre de plusieurs dizaines de mètres, et d'un module de réception permettant de détecter le faible flux rétrodiffusé par l'atmosphère.

En supposant l'atmosphère figée entre les deux tirs, l'erreur statistique relative sur la concentration déduite de l'équation *(Eq. 18)* s'exprime sous la forme suivante :

$$\frac{\sigma(N_{av})}{N_{av}} = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on},r)N\Delta r} \times \sqrt{2\left[\left(\frac{\sigma(P_R(\lambda_{on}))}{P_R(\lambda_{on})}\right)^2 + \left(\frac{\sigma\left(P_R(\lambda_{off})\right)}{P_R(\lambda_{off})}\right)^2\right]} \quad \textit{(Eq. 19)}$$

Les biais de mesure associés à une mesure lidar résolue spatialement ont été largement décrits dans la littérature [Cahen – 1981 ; Ansmann - 1985]. Nous en présentons un résumé dans le *Tableau 2*. Par exemple dans le cas d'une mesure LIDAR résolue spatialement, la dépendance en longueur d'onde des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion peuvent introduire une erreur dans l'estimation de la concentration en espèce.

Biais de mesures	Causes
Extinction et rétrodiffusion résiduelles	Les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion varient avec la longueur d'onde émise.
Section efficace	Elle dépend de la température, de la pression et des propriétés spectrales du faisceau laser utilisé.
Positionnement spectral	Un décalage en fréquence de l'émission laser par rapport à la raie d'absorption induit une mauvaise estimation de la section efficace d'absorption.
Pureté spectrale	La portion d'énergie laser émise en dehors de la raie d'absorption de la molécule sondée par rapport à l'énergie totale émise.

Tableau 2 : Les biais de mesures présents lors d'une mesure LIDAR résolue spatialement en détection directe.

Ces biais de mesure introduisent des erreurs systématiques au moment de l'inversion de spectre dans l'estimation de la concentration en espèce. Il n'est pas toujours simple de connaître ces biais de mesure. Ainsi, des hypothèses simplificatrices sont souvent prises pour la conception du code d'inversion. Cependant si les biais de mesure sont connus, il est possible d'en tenir compte et de les compenser lors de l'inversion.

La mesure de concentration intégrée sur la ligne de visée dite IP-DiAL pour Integrated Path DiAL

Cette méthode de mesure consiste à mesurer la concentration moyenne en espèces sur toute la ligne de visée en utilisant la rétrodiffusion par une cible dure. Cette cible peut être topographique comme par exemple l'écho de sol ou l'écho sur le couvert végétal ou bien une cible spécifique. La cible est caractérisée par son albédo c'est-à-dire sa capacité à réfléchir un rayonnement incident. Par exemple, au cours d'une étude, l'albédo de la surface de l'océan a été mesuré et varie entre 0,03 et 0,4 suivant les conditions d'éclairement de l'océan par le soleil et la distribution d'aérosols [Jin - 2004]. Par conséquent, le coefficient de rétrodiffusion des particules atmosphériques mesuré dans [Sugimoto - 1990], de l'ordre de $6.10^{-7} m^{-1}.sr^{-1}$ à 2 µm, est inférieur de plusieurs ordres de grandeurs à l'albédo d'une cible dure. L'utilisation d'une cible permet donc d'obtenir des puissances rétrodiffusées supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles obtenues à partir de la rétrodiffusion volumique par les particules de l'atmosphère.

Dans le cadre d'une mesure IP-DiAL effectuée sur une distance *r* et réalisée avec deux longueurs d'onde la puissance moyenne rétrodiffusée par l'atmosphère aux deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} s'exprime comme suit [Grant - 1982] :

$$P_R(\lambda_{on}, r) = \frac{A_{op} T_{op} E_{inc}(\lambda_{on})}{\tau_L r^2} \frac{\rho_{on} cos(\theta_{inc})}{\pi} \times exp\left[-2\int_0^r \left(\alpha_a(\lambda_{on}, r') + \xi(\lambda_{on}, r')\right) dr'\right] \quad \textit{(Eq. 20)}$$

$$P_R(\lambda_{off}, r) = \frac{A_{op} T_{op} E_{inc}(\lambda_{off})}{\tau_L r^2} \frac{\rho_{off} cos(\theta_{inc})}{\pi} \times exp\left[-2\int_0^r \xi(\lambda_{off}, r') dr'\right] \quad \textit{(Eq. 21)}$$

avec $\alpha_a(\lambda_{on}, r)$ le coefficient d'absorption totale à la longueur d'onde λ_{on}, $\xi(\lambda, r)$ le coefficient d'extinction résiduelle incluant l'ensemble des processus de diffusion latérale et d'absorption moléculaire autre que l'absorption de l'espèce mesurée aux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} et ρ_{on} et ρ_{off} l'albédo de la cible mesurée aux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} respectivement.

Par ailleurs, en réalisant les mêmes hypothèses que pour le paragraphe précédent, on en déduit alors l'expression de la concentration moyenne $N_{av}(r)$ sur une tranche atmosphérique d'épaisseur Δr, correspondant la résolution spatiale de l'instrument, située à une distance r.

$$N_{av}(r) = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on}, r)r} \times \left(ln\left[\frac{E_{inc}(\lambda_{off})P_R(\lambda_{on}, r)}{E_{inc}(\lambda_{on})P_R(\lambda_{off}, r)}\right] - ln\left[\frac{\beta(\lambda_{on}, r)}{\beta(\lambda_{off}, r)}\right] - 2[\xi(\lambda_{on}, r) - \xi(\lambda_{off}, r)]r \right) \quad \text{(Eq. 22)}$$

Alors sous l'hypothèse où λ_{on} et λ_{off} sont suffisamment proches l'une de l'autre, les termes d'albédo de la cible et d'extinction résiduelle sont considérés égaux en première approximation. De plus, en supposant que la section efficace d'absorption $\sigma_a(\lambda_{on}, r)$ est constante sur le trajet optique du faisceau, on en déduit à partir l'équation précédente l'expression de la concentration moyenne N_{av} de l'espèce considérée le long de la ligne de visée sur une portée r :

$$N_{av}(r) = \frac{1}{2\sigma_a(\lambda_{on}, r)r} \times ln\left[\frac{E_{inc}(\lambda_{off})P_R(\lambda_{on}, r)}{E_{inc}(\lambda_{on})P_R(\lambda_{off}, r)}\right] \quad \text{(Eq. 23)}$$

Avec cette méthode de mesure, il est nécessaire de mettre en place une référence afin de corriger les fluctuations en puissance de l'émetteur au cours de la mesure. En effet, nous disposons d'une information uniquement à la distance de la cible. Ainsi, la normalisation se fait en mesurant l'énergie émise par l'émetteur avant propagation au travers de l'atmosphère.

Biais de mesures	Causes
Extinction résiduelle	Le coefficient d'extinction varie avec la longueur d'onde émise.
Albédo de la cible	L'albédo de la cible varie avec la longueur d'onde émise.
Section efficace d'absorption	Elle dépend de la température, de la pression et des propriétés spectrales du faisceau laser utilisé.
Positionnement spectral	Un décalage en fréquence de l'émission laser par rapport à la raie d'absorption induit une mauvaise estimation de la section efficace d'absorption.
Pureté spectrale	La portion d'énergie laser émise en dehors de la raie d'absorption de la molécule sondée par rapport à l'énergie totale émise.

Tableau 3 : Les biais de mesures présents lors d'une mesure LIDAR intégrée colonne en détection directe.

Les biais de mesure associés à une mesure lidar intégrée colonne sont résumés dans le *Tableau 3*. Dans le cas d'une mesure LIDAR intégrée colonne, la dépendance en longueur d'onde des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion n'est pas une source d'erreur. Néanmoins, l'albédo de la cible utilisée varie avec la longueur d'onde émise pouvant introduire un biais dans la mesure de concentration [Grant - 1982]. De manière générale, l'ensemble de ces biais de mesures introduise une erreur systématique dans la

concentration en espèce. De la même manière que pour le paragraphe précédent, si les biais de mesure lidar sont connus, il est possible alors possible d'en tenir compte et de les compenser lors de l'inversion de spectre.

Ces techniques de mesure à deux longueurs d'onde mono-espèce peuvent être généralisées à des mesures d'absorption différentielle multi-longueurs d'onde et multi-espèces où le nombre de longueurs d'onde à émettre dépendra du nombre d'espèces adressées.

A.1.4. Le principe de l'inversion de spectre

Afin de mieux comprendre le processus permettant de déduire d'une mesure de transmission en fonction de la longueur d'onde (dite spectre) la concentration en espèces, le principe de fonctionnement du bloc de traitement des données est détaillé sur la *Figure 10*. En effet, il suppose de modéliser dans un premier temps fidèlement l'atmosphère à partir de données a priori connues. Ce modèle atmosphérique sert alors de référence pour la détermination de la concentration en espèce considérée par comparaison avec la mesure d'absorption aux deux longueurs d'onde considérées. Cependant, il n'est pas toujours facile de connaître avec exactitude les paramètres atmosphériques le long de la ligne de visée tels que la pression, la température ou la concentration en aérosols. De manière générale, sans accès direct à ces paramètres atmosphériques, les modèles classiques de pression et température de l'atmosphère sont initialement utilisés. La modélisation de l'atmosphère nécessite également de connaître les paramètres spectroscopiques des espèces mise en jeu.

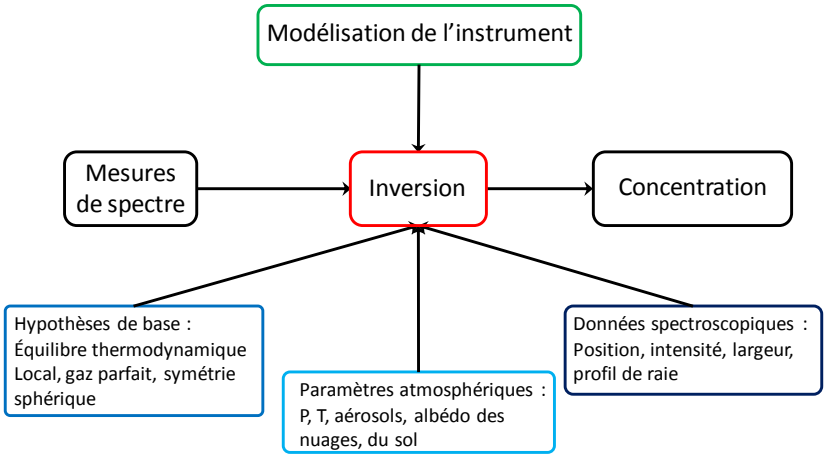


Figure 10 : Organigramme de principe de la méthode d'inversion de spectre

Des bases de données comme par exemple HITRAN et/ou GEISA permettent d'accéder à ces divers paramètres à température et pression standards. Cependant, les valeurs des sections efficaces d'absorption dépendent de la température et de la pression pouvant conduire à des inexactitudes lors de l'inversion du spectre. Généralement, la température et la pression sont des grandeurs dont la valeur est ajustée par le code d'inversion afin que le modèle atmosphérique ressemble le plus à la mesure de spectre. Par ailleurs, il est nécessaire de modéliser l'instrument utilisé pour les mesures de spectre afin de tenir compte de toutes les caractéristiques instrumentales pouvant modifier la forme de la transmission atmosphérique. Ce qui signifie que chaque code d'inversion est dédié à un type d'instrument voire un instrument unique.

C'est une technique d'analyse multi-spectrale de la transmission ou de l'absorption mesurée qui a été mise en œuvre au cours de travaux de cette thèse. Dans le cadre de la thèse, deux

outils d'inversion disponibles à l'Onera basés sur une méthode différente ont été utilisés afin d'inverser des mesures de spectres multi-longueurs d'onde et multi-espèces. Pour plus de clarté du manuscrit, ces deux outils sont présentés en Annexe A même s'ils n'ont pas fait l'objet de ce travail de thèse.

A.2. Récapitulatif des besoins instrumentaux

Les applications potentielles des techniques de mesure LIDAR sont diverses et variées allant du suivi de polluants industriel depuis le sol à la quantification en gaz à effet de serre depuis une plate-forme satellite. Le *Tableau 4* résume les besoins instrumentaux liés aux applications ainsi que les spécifications émetteur associées aux deux applications auxquelles ma thèse se rapporte.

				Spécifications émetteur		
Applications	**Technique**	**Portée**	**Porteur**	**Espèces**	**Gamme spectrale**	**Energie**
Sondage atmosphérique	IP-DiAL	500 km	Satellite	CO_2, CH_4, NO_2, H_2O ...	1,5 - 1,6 µm 2 µm	> 50 mJ
	DiAL	10 km	Sol ou aéroporté	CO_2, CH_4, NO_2, H_2O ...	1,5 - 1,6 µm 2 µm	> 10 mJ
Surveillance de sites industriels	IP-DiAL	> 100 m	Sol	SO_2, N_2O, CO, HCl, COVs (formaldéhyde, éthylène ...) ...	1,5 - 1,6 µm 3 - 4 µm	> µJ
	DiAL	> km	Sol	SO_2, N_2O, CO, HCl, COVs (formaldéhyde, éthylène ...) ...	1,5 - 1,6 µm 3 - 4 µm	> 10 mJ
Détection de gaz de combats et d'explosifs	IP-DiAL	> 100 m	Sol	Gaz de combat et explosifs	8 - 12 µm	> µJ
	DiAL	> km	Sol	Gaz de combat et explosifs	8 - 12 µm	> 10 mJ

Tableau 4 : Spécification instruments et spécifications sources liées aux deux techniques de mesures LIDAR.

Les spécifications émetteurs sont intimement liées aux applications visées et à la technique de mesure mise en œuvre que nous allons illustrer par différents exemples de scénarios. Par exemple, pour les applications liées au sondage atmosphérique permettant la détection et la quantification des gaz à effet de serre, les deux techniques de mesure LIDAR sont utilisées pour deux types d'applications différentes :

- les mesures LIDAR depuis une plateforme satellite nécessitent d'utiliser la technique IP-DiAL afin d'atteindre la portée souhaitée d'environ 500 km en imposant une énergie nécessaire à la mesure raisonnable.
- des mesures LIDAR au sol ou aéroportées ont pour objectifs de valider et de calibrer les mesures LIDAR spatiales. Celles-ci nécessitent une portée de l'ordre du kilomètre.

Avec une énergie suffisante, il est alors possible de réaliser une mesure résolue spatialement de la concentration en espèce.

Pour ce qui concerne les applications liées à la surveillance des sites industriels, la gamme spectrale de mesure est comprise de 1,5 à 1,6 µm et de 3 à 4 µm. Mais, selon la technique de mesure LIDAR employée les applications visées ne sont pas identiques :

- par exemple, la technique de mesure IP-DiAL est utilisée pour la détection de polluants industriels pour des fuites mineures ou du suivi de concentration. Dans ce cas, les portées nécessaires à la mesure sont de l'ordre de la centaine de mètres. Il s'agit alors de développer un émetteur compact délivrant des impulsions avec une énergie supérieure au µJ.
- la technique de mesure DiAL résolue spatialement peut être préférentiellement utilisée dans un cas où il y a danger pour l'homme par exemple lors d'un accident industriel ou pour la surveillance de sites très étendus. Alors, cette technique permettrait de localiser les zones de danger. Pour cela, l'instrument développé devra délivrer typiquement des énergies supérieures au mJ voire 10 mJ pour atteindre des portées kilométriques.

A.3. Les apports de l'optique non linéaire pour le développement de nouveaux émetteurs

Dans l'introduction générale, une analyse des besoins applicatifs a été présentée et des évolutions de briques technologiques ont été proposées. L'émetteur est au cœur de ces évolutions. En effet, c'est un élément critique pour les mesures lidar dans l'infrarouge proche et moyen au regard des espèces visées. L'objectif est alors de disposer de sources émettrices pouvant être :

- ✓ accordables sur un large domaine spectral permettant la détection multi-espèces et la génération multi-longueurs d'onde ;
- ✓ de grande pureté et finesse spectrale (< ~ 100 MHz) qui permet le sondage des raies des gaz à pression atmosphérique avec une bonne sélectivité ;
- ✓ dans l'infrarouge moyen afin de sonder des principaux gaz à effet de serre et polluants industriels ;
- ✓ impulsionnelles en régime nanoseconde afin de conserver une résolution spatiale métrique ou déca-métrique tout en gardant une largeur de raie relativement fine ;
- ✓ de forte puissance crête pour obtenir des mesures avec une portée adaptée aux scenarios de mesure (DiAL, IP-DiAL) ;
- ✓ avec un potentiel de miniaturisation important pour pouvoir disposer de systèmes compacts et embarquables.

Au cours des dix dernières années, des développements de sources innovantes ont été menés à l'Onera, basés sur l'utilisation de l'optique non linéaire d'ordre deux, pour convertir l'onde émise par un laser de pompe vers l'infrarouge moyen. Ces développements, menés au cours de plusieurs thèses précédentes à celle-ci, ont montré l'apport de l'optique non linéaire pour le développement de sources optiques adaptées à la spectrométrie infrarouge.

Les développements instrumentaux menés au cours de cette thèse sont basés sur l'utilisation de l'optique non linéaire au sein de l'émetteur. Dans ce paragraphe, après quelques rappels d'optique non linéaire, le principe de fonctionnement de cette source optique, appelée le NesCOPO [pour *Nested Cavities OPO*], est détaillé. Contrairement aux sources dont l'accord est limité par une source d'injection, les multiples possibilités d'accordabilité en fréquence fournies par l'architecture NesCOPO sont intéressantes pour plusieurs applications :

- ✓ la détection LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces ;
- ✓ l'émission des longueurs d'onde optimales permettant d'optimiser la mesure de concentration d'une espèce ou plusieurs espèces ;
- ✓ la conception d'instrument d'une dynamique optimale permettant de changer la longueur d'onde en fonction de la quantité de gaz sondé afin de sonder les raies d'absorption les mieux adaptées.

A.3.1. Rappels théoriques d'optique non linéaire

Dans cette partie, quelques rappels théoriques d'optique non linéaire d'ordre 2 sont présentés afin de bien comprendre le fonctionnement de la brique technologique de nos émetteurs à savoir le NesCOPO [*Nested Cavities OPO*].

Le phénomène de conversion de fréquence optique et gain paramétrique

Le principe de la conversion paramétrique optique au sein d'un milieu non linéaire est schématisé sur la *Figure 11*. Le cristal non linéaire permet de convertir la longueur d'onde d'un faisceau laser de pompe noté λ_p vers deux longueurs d'onde filles signal et complémentaire notées respectivement λ_s et λ_c. Dans le cadre des développements effectués au cours de cette thèse le laser de pompe est un laser Nd:YAG émettant autour 1,064 µm et les ondes filles sont situées dans le moyen infrarouge entre 1,5 et 4 µm.

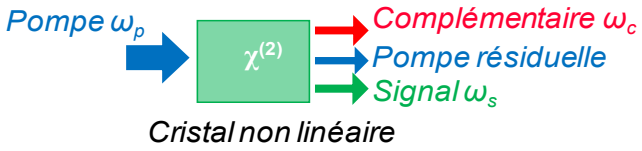


Figure 11 : Schéma de principe de la conversion paramétrique optique dans un cristal non linéaire

Deux conditions sont à vérifier pour que le phénomène de conversion de fréquence optique de la pompe vers les ondes filles soit efficace [Boyd - 1992].
Ces conditions sont les suivantes :

(1) La conservation de l'énergie

$$h\omega_p = h\omega_c + h\omega_s \qquad \textit{(Eq. 24)}$$

où h = 6,67.10^{-34} m^2.kg.s^{-1} est la constante de Planck.

La somme des pulsations des ondes générées ω_s et ω_c est égale à la pulsation de l'onde pompe ω_p. Par conséquent, les ondes filles sont produites à des fréquences plus faibles que celle de la pompe. Et les valeurs de ces pulsations sont symétriques par rapport à la dégénérescence en $\omega_p/2$. La génération des deux ondes complémentaire et signal situées dans deux gammes spectrales est intéressante car il est peut être possible d'utiliser ces deux ondes simultanément pour réaliser des mesures lidar. Cette possibilité est étudiée dans le chapitre C dans la gamme spectrale située autour de 2 µm.

(2) La condition d'accord de phase

$$\Delta k = 0 = k_p - k_c - k_s \qquad \textit{(Eq. 25)}$$

où k_s, k_c et k_p représentent respectivement la quantité de mouvement des ondes signal, complémentaire et pompe.

Le gain paramétrique existe dans deux zones centrées pour l'une sur la fréquence signal et la seconde sur la fréquence complémentaire. Ces deux fréquences sont à l'accord de phase, c'est-à-dire $\Delta k = 0$. Dans le cas d'un simple passage de pompe, le gain petit signal pour l'onde signal est donné par le rapport entre l'intensité en sortie du cristal $I_s(L)$ et l'intensité en entrée du cristal I_{s0} par l'équation suivante :

$$Gain_{petit\ signal} = \frac{I_s(L) - I_{s0}}{I_{s0}} \propto sinc^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right) \qquad (Eq.\ 26)$$

avec L la longueur du cristal.

Cette équation fournit la forme du gain dans le cas d'un aller simple dans le cristal non linéaire. Il est composé d'un lobe principal centré sur les fréquences optiques correspondant à l'accord de phase. Le gain du processus paramétrique est maximal pour une condition d'accord de phase $\Delta k = 0$. L'efficacité de conversion de fréquence est déterminée par la condition d'accord de phase.

Nous verrons ci-après que cette condition peut être relâchée en une condition dite de quasi accord de phase dans des cristaux spécifiques.

Le rôle de la phase relative

Il est intéressant de tenir compte de la phase relative entre les ondes générées et l'onde de pompe car celle détermine le sens de transfert de l'énergie : soit de l'onde de pompe vers les ondes filles soit des ondes filles vers l'onde de pompe. La phase relative s'exprime de la manière suivante :

$$\Delta\varphi = \varphi_p - \varphi_c - \varphi_s \qquad (Eq.\ 27)$$

où φ_p, φ_s et φ_c représentent la phase des ondes pompe, signal et complémentaire respectivement et $\Delta\varphi$ la phase relative entre les trois ondes.

En effet, si la phase relative est comprise entre $-\pi < \Delta\varphi < 0$ [2π], alors le transfert d'énergie a lieu de l'onde de pompe vers les ondes signal et complémentaire. L'efficacité de ce transfert est maximale pour $\Delta\varphi = -\pi/2$ [2π]. Au contraire, si la phase relative est comprise entre $0 < \Delta\varphi < \pi$ [2π] alors le transfert d'énergie se produit des ondes signal et complémentaire vers l'onde de pompe avec une efficacité maximum pour $\Delta\varphi = \pi/2$ [2π] [Hardy - 2011 a].

Les cristaux non linéaire utilisés au cours de cette thèse

Les développements réalisés au cours de cette thèse se sont appuyés sur deux types de cristaux non linéaire :

- Le KTP : $KTiOPO_4$ ou Phosphate de potassium titanyl

Le KTP est un matériau biréfringent pour lequel deux indices de réfraction sont définis selon la polarisation de la lumière : l'indice ordinaire et l'indice extraordinaire. Cette propriété de biréfringence permet de rendre la condition d'accord de phase *(Eq. 25)* possible pour certaines configurations de polarisation et de direction angulaire. De manière générale, pour ce genre de matériau, deux types d'accord de phase par biréfringence sont distingués :

- ✓ l'accord de phase de type I où les ondes signal et complémentaire sont de polarisations identiques ;
- ✓ l'accord de phase de type II où les ondes signal et complémentaire sont de polarisations croisées.

La présence de *walk-off* détériore l'efficacité de conversion du KTP. En effet, lors de la propagation dans le cristal, les ondes de polarisation croisée se séparent spatialement diminuant le recouvrement spatial des ondes donc le gain non linéaire [Boyd - 1992]. Par ailleurs, le KTP présente un faible coefficient non linéaire, d_{eff} = 2 pm/V [Pack - 2004]. Mais, il peut être pompé avec de très grandes intensités pour réaliser de l'amplification. Le KTP présente plusieurs avantages :

- ✓ une grande couverture spectrale de la bande II de l'atmosphère [MWIR] entre 1,5 et 3 µm ;
- ✓ un seuil de dommage élevé de l'ordre de 23 à 33 J/cm^2 [Amhed - 1989] permettant de réaliser de l'amplification de sources optiques haute énergie ;

➢ Le PPLN : le niobate de lithium périodiquement polarisé

Dans ce cas, la condition d'accord de phase exacte n'est pas respectée. On utilise une situation dite de quasi-accord de phase.

Le quasi accord de phase consiste à inverser périodiquement le signe de la polarisation non linéaire du matériau [Fejer - 1992]. Une des méthodes de fabrication des cristaux périodiquement orientés consiste à appliquer un fort champ électrique sur un matériau ferroélectrique conduisant à la création des domaines d'inversion. La période d'inversion des domaines ferroélectriques Λ correspond à deux fois la longueur de cohérence du matériau définie comme $L_c = \pi/\Delta k$. La condition d'accord de phase pour un matériau à retournement périodique devient alors une condition de quasi-accord de phase :

$$\Delta k = k_p - k_c - k_s - \frac{2\pi}{\Lambda} = 0 \qquad \textit{(Eq. 28)}$$

Dans le cadre de cette thèse le matériau principalement utilisé au cours des développements est le niobate de lithium périodiquement polarisé.

Ce cristal présente plusieurs avantages :

- ✓ un fort coefficient non linéaire, d_{eff} = 21,6 pm/V [Fejer - 1992], permettant d'obtenir un gain très important ;
- ✓ une grande couverture spectrale de la bande II de transparence de l'atmosphère [MWIR] permettant le développement de sources optiques émettant entre 1,5 et 4 µm ;
- ✓ des possibilités d'ingénierie de la condition de quasi-accord de phase pour réaliser des cristaux de types multi-pistes avec des pas en éventail ou non réguliers ...

L'oscillateur paramétrique optique en régime nanoseconde : principe et contenu spectral

Un oscillateur paramétrique optique (OPO) est composé d'un cristal non linéaire mis en cavité permettant de mettre en résonance une ou plusieurs ondes générées par le processus de conversion de fréquence. La conversion paramétrique met en jeu trois ondes différentes. Il est alors possible de faire résonner une, deux ou trois ondes correspondant à trois types d'architecture : les OPOs simplement résonant (SROPO), les OPOs doublement résonant (DROPO) et les OPOs triplement résonant (TROPO). Les deux premières architectures sont rapidement présentées en mettant en avant leurs avantages et leurs limitations.

Dans un OPO simplement résonant une seule onde est résonante dans la cavité. La *Figure 12* schématise un SROPO pour l'onde signal. En régime continu, cette architecture est intéressante car elle permet d'obtenir une émission monofréquence grâce à la compétition de modes [Drag - 2001].

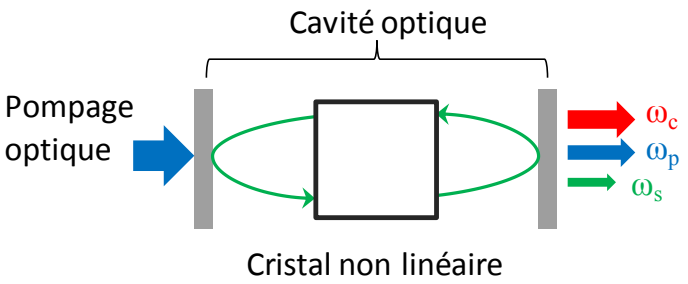


Figure 12 : Schéma de principe d'un OPO simplement résonant pour l'onde signal

Cependant il s'avère qu'en régime nanoseconde cette compétition de modes n'a pas le temps d'aboutir à une situation de régime stationnaire monofréquence. En effet, dans ce régime temporel la configuration SROPO émet spontanément plusieurs modes dont le nombre dépend de l'intervalle spectral libre (ISL) de la cavité et de la bande de gain de l'OPO. Cependant, il existe différentes méthodes permettant de rendre l'émission d'un SROPO en régime nanoseconde monofréquence, afin de rendre cette architecture compatible avec les exigences de l'application de spectrométrie tel que le LIDAR gaz.

La première, une des méthodes les plus utilisées, consiste à insérer un étalon Fabry-Pérot dans la cavité [Kreuzer - 1969]. L'introduction d'un étalon dans la cavité créée des pertes supplémentaires au sein de la bande de gain. En choisissant de manière adéquate son intervalle spectrale libre et sa finesse, il est possible de sélectionner un unique mode. Il est possible de réaliser des balayages par saut de modes sur de larges plages spectrales [Stothard - 2004 ; van Herpen - 2003]. Cependant, la résolution en fréquence de ce balayage dépend de l'ISL de la cavité et reste fixe pour une architecture donnée. L'insertion d'un étalon Fabry-Pérot dans la cavité permet également à l'aide d'un accord en fréquence de la source de pompe de réaliser un balayage en fréquence continu mais dont l'accordabilité est limitée à quelques centaines de GHz [Henderson - 2006 ; Andrieux - 2011]. Enfin, à l'aide d'un accord par la température du cristal, l'accordabilité en fréquence de ce type de source peut atteindre plusieurs centaines de cm^{-1}.

Il est possible également d'utiliser un élément dispersif. Cet élément dispersif peut être soit un réseau de diffraction [Yu - 1999 ; Schlup - 2000] placé à l'intérieur de la cavité soit un réseau de Bragg en volume (VBG pour *volume bragg grating*) pour remplacer le miroir de sortie de la cavité OPO [Jacobsson - 2005 ; Blau - 2008 ; Jacobsson - 2009]. Les VBG permettent de réfléchir une gamme spectrale centrée sur la longueur d'onde de Bragg correspondant au pas du réseau photo-inscrit [Kogelnik - 1969].

La dernière technique permettant d'obtenir une émission monofréquence avec un SROPO consiste à l'associer à un laser d'injection fin spectralement [Bjorkholm - 1969]. L'accord en longueur d'onde de l'OPO se trouve alors limitée à la plage d'accord de ce laser d'injection. D'une manière générale, l'inconvénient de ces diverses techniques d'affinement spectral est leur faible gamme spectrale d'accord.

Le premier OPO doublement résonant à été réalisé par Giordmaine et Miller [Giordmaine - 1965]. Pour ce premier DROPO, les miroirs ont été directement déposés sur les faces du cristal non linéaire comme illustré sur la *Figure 13*.

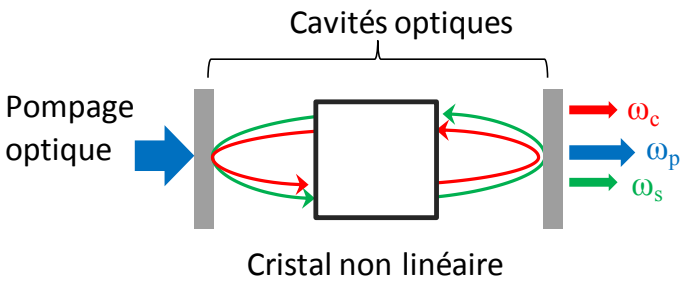


Figure 13 : Schéma de principe d'un OPO doublement résonant pour les ondes signal et complémentaire

De manière classique, les OPO doublement résonnant ou DROPO sont basés sur la résonance conjointe des ondes signal et complémentaire dans une même cavité. Cette architecture permet d'obtenir des seuils d'oscillations très bas, permettant le développement de systèmes très compacts. Par ailleurs, la condition de double résonnance des modes signal et complémentaire dans une même cavité est difficile à remplir et rend ainsi le comportement ces DROPOs classiques spectralement instables. Par ailleurs, les miroirs étant communs aux deux cavités, les longueurs optiques de chaque onde fille ne diffèrent que du fait de la dispersion dans le cristal.

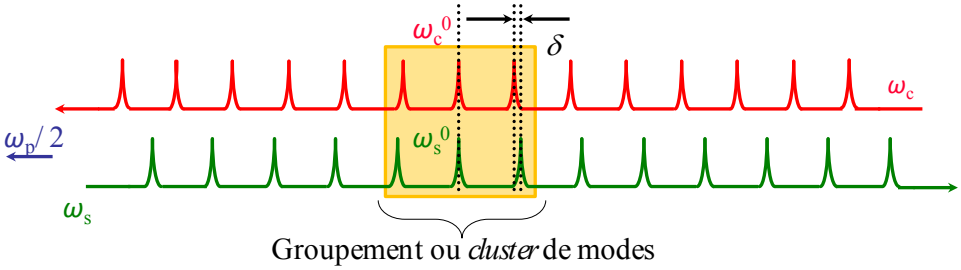


Figure 14 : Groupement (ou clusters) de modes dans un OPO doublement résonant. Les axes fréquentiels sont opposés (et se rejoignent à la dégénérescence en $\omega_p/2$), permettant de respecter la conservation de l'énergie tout le long des axes pour les modes en vis-à-vis [Giordmaine - 1966].

Les intervalles spectraux libres sont très peu différenciés. Cette situation est représentée sur un diagramme introduit par Giordmaine et Miller [Giordmaine - 1966] sur la *Figure 14*. Autour d'une coïncidence exacte aux pulsations ω_s^0 et ω_c^0, les modes voisins se recouvrent suffisamment afin de pouvoir osciller. En dehors de cette zone, les modes des peignes complémentaire et signal ne se recouvrent pas suffisamment sur de grandes plages spectrales. Ainsi, l'OPO n'oscille pas sur ces plages spectrales [Lee - 1998]. Dans ces conditions, l'OPO fonctionne uniquement sur certaines plages fréquentielles par groupes de modes ou "clusters". Afin de s'affranchir de cette limitation, une solution astucieuse consiste à réaliser un DROPO basé sur deux cavités différentes, une pour le signal et une pour le complémentaire.

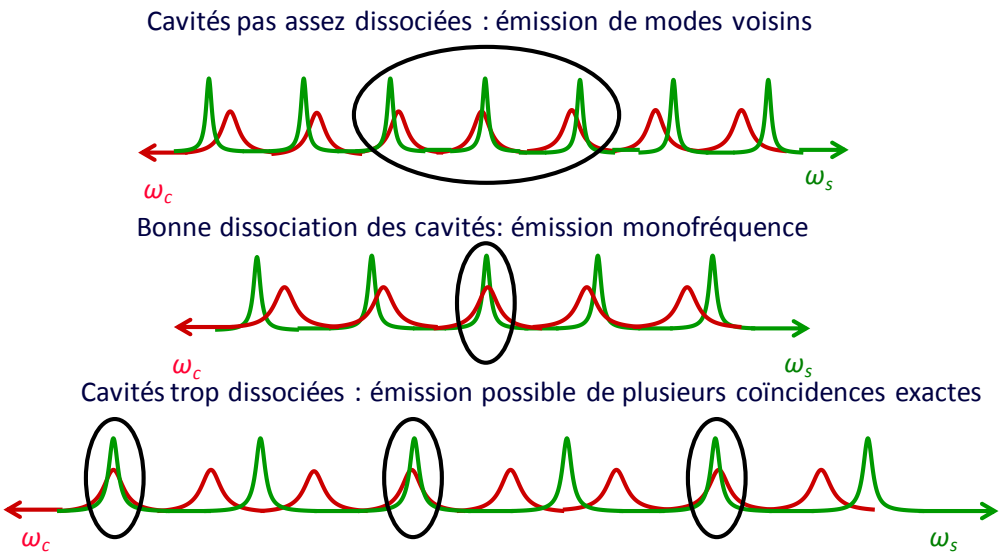


Figure 15 : Diagrammes de Giordmaine et Miller associé à chaque configuration de dissociation des cavités signal et complémentaire

En différenciant les longueurs des cavités signal et complémentaire, il devient alors possible d'obtenir une émission monomode longitudinale lorsqu'une seule paire de modes signal et complémentaire satisfait la condition de coïncidence exacte sous la bande de gain paramétrique : il s'agit de la condition de filtrage spectral de manière analogue à l'effet Vernier (*Figure 15*) [Scherrer - 2000 ; Drag - 2001 ; Berrou - 2010 ; Hardy - 2011 a].

Cette architecture présente de nombreux avantages :

- ✓ Il s'agit d'une configuration DROPO, pour laquelle les seuils d'oscillations sont très bas, rendant possible le développement de systèmes très compacts ;
- ✓ Une émission monofréquence sur une très large bande spectrale est possible ;
- ✓ Des schémas d'accord en longueur d'onde spécifiques à l'utilisation de deux cavités optiques imbriquées sont possibles. Il est notamment possible de produire un grand nombre de fréquences optiques, ce qui est particulièrement intéressant dans la perspective de mesures LIDAR multi-longueurs d'onde et multi-espèces.

Par conséquent, c'est sur cette architecture qu'ont été basés les développements menés à l'Onera au cours des dernières années.

A.3.2. Le NesCOPO : The Nested Cavity Optical Parametric Oscillator

Dans un premier, un bilan est dressé au sujet des différents développements menés à l'Onera ces quinze dernières années qui ont permis d'obtenir l'architecture nommée NesCOPO utilisée au cours de ma thèse. Ce bilan est suivi par la description de l'architecture NesCOPO et de ses propriétés d'émission dont notamment la procédure d'accordabilité.

Historique des développements

A l'Onera, les premiers DROPO à cavités séparés avec un simple passage de pompe dans la cavité ont été développés pendant les thèses B. Scherrer et I. Ribet (*Figure 16*) [Scherrer - 1998 ; Ribet - 2001]. Dans cette architecture, l'onde signal résonne entre les miroirs M_1 et M_4 et l'onde complémentaire entre les miroirs M_1 et M_3. Les miroirs M_1 et M_3 sont montés sur des transducteurs piézoélectriques (PZT) permettant d'ajuster la longueur des deux cavités séparément. Cette première génération d'OPO a permis de mettre en évidence l'intérêt de la double résonance les rendant monofréquence en régime nanoseconde.

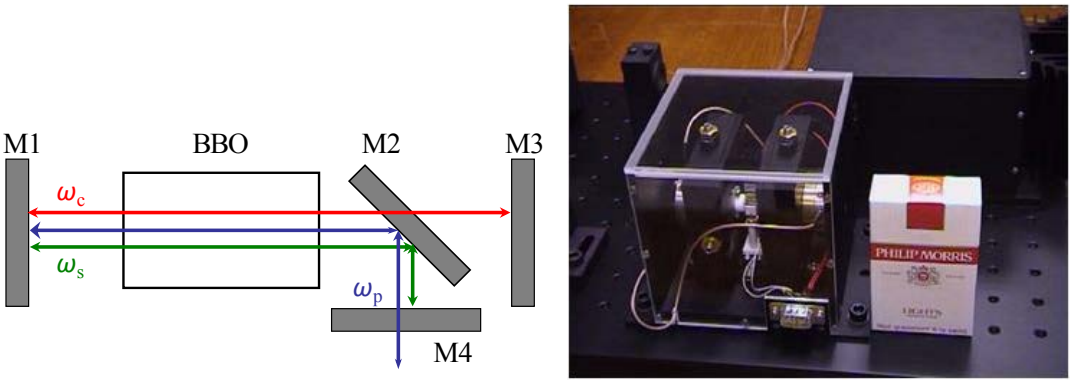


Figure 16 : Schéma de principe d'un OPO doublement résonant à cavités séparées en L

Par la suite l'architecture des DROPO a évolué afin de permettre un double passage de la pompe dans la cavité permettant d'abaisser le seuil d'oscillation. Cependant pour ce type d'architecture, il faut tenir compte de la phase relative des trois ondes notamment sur le retour de pompe. En effet, nous avons vu l'influence de la phase relative sur le sens de transfert de l'énergie dans la partie A.3.1. Si la phase relative n'est pas contrôlée au retour de la pompe, cela peut conduire à un transfert des ondes filles vers la pompe. La solution originale mise en œuvre par l'Onera à l'époque est représentée sur la *Figure 17*. La technique développée pour ces OPO de seconde génération consiste à adapter la phase de l'onde de pompe au retour dans le cristal afin d'assurer un transfert d'énergie vers les ondes filles [Desormeaux - 2005 ; Berrou - 2008]. Un nouveau miroir, le miroir M_5, a été mis en place permettant de renvoyer la pompe dans le cristal. Par ailleurs, en ajustant finement la position de ce miroir M_5 à l'aide d'une cale piézoélectrique (dite PZT dans la suite du manuscrit), la phase relative entre les trois ondes est maintenue de manière à conduire à un transfert d'énergie de l'onde de pompe vers les ondes filles au retour.

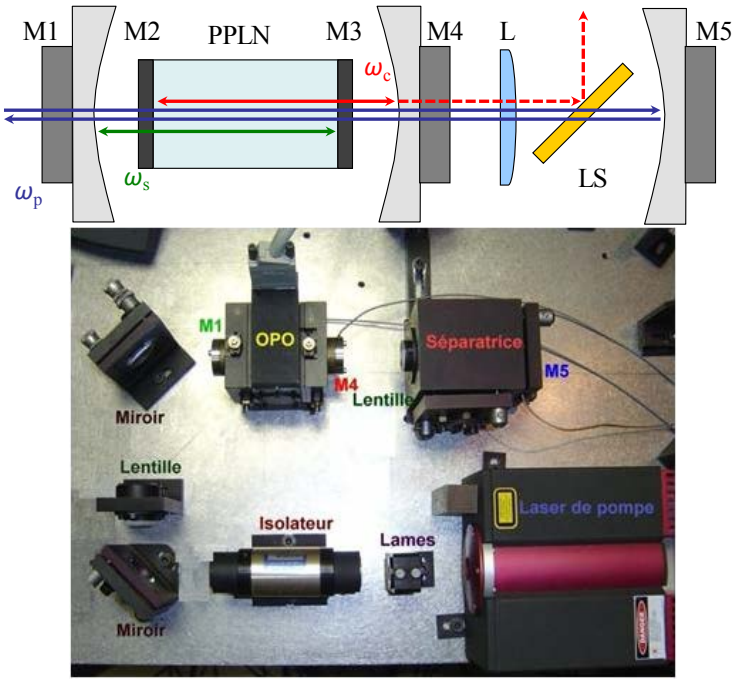


Figure 17 : Schéma du DROPO de deuxième génération. L : lentille de collimation pour le renvoi de pompe, LS : lame séparatrice permettant d'extraire le faisceau complémentaire.

Dans cette configuration, l'onde signal résonne entre les miroirs M_1 et M_3 et l'onde complémentaire entre les miroirs M_2 et M_4. Les miroirs M_2 et M_3 sont directement déposés sur les d'entrée et de sortie du cristal non linéaire. Les miroirs M_1 et M_4 sont montés sur des PZT permettant d'ajuster la longueur des deux cavités séparément. Cet OPO est nommé ECOPO pour "*Entangled Cavity doubly resonant Optical Parametric Oscillator*". Par ailleurs, il a été démontré la nécessité d'avoir un miroir M_5 hautement réfléchissant permettant ainsi d'atténuer les fluctuations en intensité de l'émission [Desormeaux - 2005 ; Berrou - 2008]. Ce DROPO de seconde génération a été automatisé et utilisé pour des mesures de spectrométrie d'absorption en cellule de différents gaz [Berrou - 2010]. Par ailleurs, ce type d'architecture des OPO a ouvert la voie vers un pompage par microlaser, donc vers des instruments compacts avec un seuil de quelques µJ.

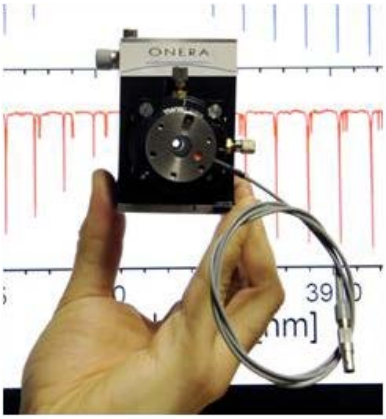


Figure 18 : Photographie du DROPO avec son opto-mécanique

La dernière génération de DROPO représentée sur la *Figure 18* et développée au cours de la thèse de B. Hardy est basée sur une architecture innovante permettant un contrôle achromatique de la phase relative sur toute la bande de gain [Hardy - 2011 b]. Elle fait

également l'objet d'un brevet [EP 2 503 387 (B1)]. Cette architecture est présentée dans le paragraphe suivant. Des travaux de miniaturisation de cette architecture sont en cours actuellement afin d'améliorer la robustesse et la stabilité spectrale de l'émission.

Architecture du NesCOPO

L'architecture de la source optique de base de nos émetteurs a été développée au cours de la thèse de Bertrand Hardy [Hardy – 2011 a]. L'architecture optique du NesCOPO est représentée sur la *Figure 19*. Il se compose de deux cavités imbriquées : (1) les miroirs M_2 et M_3 définissent la première cavité pour l'onde signal et (2) les miroirs M_1 et M_3 définissent la seconde cavité pour l'onde complémentaire. Le miroir M_3 commun aux deux cavités constitue le miroir de fond du NesCOPO permettant de réfléchir l'ensemble des trois ondes présentes (le signal, le complémentaire et la pompe). Le double passage de pompe permet d'abaisser le seuil d'oscillation de l'OPO. Il est possible d'atteindre un seuil d'oscillation autour de l'ordre du µJ permettant un pompage par microlaser et ainsi le développement d'instrument très compact.

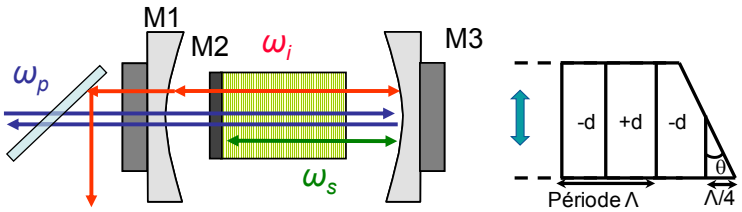


Figure 19 : Architecture de l'OPO nommé Nested Cavity Optical Parametric Oscillator [NesCOPO]

Le miroir M_2 est directement déposé sur la face d'entrée du cristal non linéaire. Par ailleurs, les miroirs M_1 et M_3 sont montés sur des cales piézoélectriques (PZT) permettant de réaliser un accord fin en fréquence dont le principe est détaillé dans le paragraphe suivant. Cette architecture assure un fonctionnement monofréquence sous certaines conditions qui sont développées dans le paragraphe suivant. Une dernière particularité associée à cette architecture provient du contrôle de la phase relative au retour autorisé par une coupe prismatique de la face arrière du cristal non linéaire (*Figure 19*). En effet, l'épaisseur du dernier domaine ferroélectrique varie en fonction de la position transverse du cristal non linéaire dans la cavité permettant le contrôle de la phase relative au retour. Cette face prismatique du cristal associée à un miroir de fond doré permet de contrôler cette phase indépendamment des longueurs d'onde émises [Hardy - 2011 b].

Les propriétés d'accordabilité du NesCOPO

L'avantage principal de l'architecture NesCOPO est d'obtenir une émission monofréquence sur plusieurs centaines de nanomètres en régime nanoseconde sans nécessité d'utilisation d'un laser d'injection contrairement à la plupart des OPOs en régime nanoseconde. Par ailleurs, cette architecture permet d'obtenir des seuils d'oscillation très bas autour de 1 µJ autorisant le pompage par microlaser [Hardy - 2011 a]. Ainsi le développement de sources très compactes et d'instruments transportables est envisageable.

Différentes techniques d'accordabilité du NesCOPO

Plusieurs moyens sont à notre disposition afin d'accorder l'émission du NesCOPO :

- ✓ la température ;
- ✓ le choix du réseau ;
- ✓ les longueurs de cavités pouvant être ajustées sur quelques µm à l'aide des cales PZT.

Le choix du moyen d'accord en fréquence détermine la largeur de la gamme spectrale d'accord et sa précision. Le choix du réseau est le premier moyen permettant d'accorder très grossièrement l'émission. En effet, le pas du réseau définit la longueur d'onde centrale d'accord de phase. Lors du changement de réseau, des sauts typiques de 100 nm sont observés avec les cristaux de PPLN utilisés pendant ma thèse. Un second moyen d'accord en fréquence moins grossier est disponible. En effet, pour un réseau il est possible d'accorder sur 100 nm en jouant sur la température du cristal de PPLN en changeant la température de 100 °C. Enfin, un accord en fréquence fin est réalisable à l'aide des miroirs montés sur PZT dans une bande de quelques nanomètres.

Par ailleurs, grâce aux deux miroirs montés sur des cales PZT, différentes méthodes de balayage ont été mises au point lors de la thèse de B. Hardy : le balayage par saut de mode, également appelé le « Vernier Sampling », et le balayage continu [Hardy - 2011 a]. Les miroirs M_1 et M_3 montés sur des cales piézoélectriques sont contrôlés par ordinateur grâce à un programme développé sous le logiciel LabVIEW lors de thèses précédentes. Ainsi, il est possible de modifier la longueur d'onde d'émission du NesCOPO à la demande afin de pouvoir adresser les raies d'absorption des différents gaz d'intérêt.

- ➢ *Accord en fréquence continu*

Afin de réaliser un balayage en fréquence continu, il s'agit de conserver la même coïncidence exacte entre le peigne de modes "signal" et le peigne de modes "complémentaire". Ainsi, une variation de la fréquence signal doit s'accompagner d'une variation opposée de la fréquence complémentaire afin de respecter la conservation de l'énergie au cours du balayage. Pour cela, les positions des miroirs M_1 et M_3 montés sur PZT sont ajustés simultanément. Il est possible de balayer jusqu'à 140 GHz continument [Hardy - 2011 a]. Cette accordabilité est limitée par l'amplitude de déplacement des cales PZT de 6 µm.

- ➢ *Accord en fréquence par saut de modes*

La première méthode d'accord en fréquence par saut de mode consiste à contrôler finement la position des miroirs de cavité M_1 et M_3 grâce aux PZTs permettant un échantillonnage fréquentiel d'un spectre comme illustré sur la *Figure 20*. Dans cet exemple, le miroir de cavité M_3 est fixe tandis qu'une consigne très lente est appliquée la cale PZT du miroir M_1 permettant d'observer la bande de d'émission du NesCOPO. Ce processus est illustré sur la *Figure 20(a)*. La *Figure 20(b)* représente l'évolution temporelle de l'onde signal émise autour de 1,5 µm lors du balayage de la cale PZT du miroir M_1. Le rayonnement signal est injecté dans un mesureur de longueur d'onde commercial High Finesse WS6 IR. Pour ce type d'accord en fréquence, des rampes de tension sont appliquées aux PZTs des miroirs de cavité M_1 et M_3. Le déplacement des miroirs n'est pas synchronisé contrairement au balayage continu. La première étape du balayage par saut de mode consiste à scanner les fréquences du peigne signal en déplaçant le peigne complémentaire. Pour cela, le miroir M_3 reste fixe tandis que le M_1 se déplace (*Figure 20(a)*). Ainsi, l'amplitude de déplacement du miroir M_1 détermine la gamme spectrale adressée c'est-à-dire le nombre de mode signal

échantillonnés. Ensuite, la seconde étape consiste à décaler le peigne signal, puis de déplacer de nouveau le peigne complémentaire afin de scanner de nouvelles fréquences. Ces deux étapes sont répétées jusqu'à ce que le peigne signal ait été décalé d'un ISL. Cette méthode permet de réaliser un balayage fréquentiel sur l'ensemble de la bande de gain paramétrique avec une résolution maximale de 0,2 MHz [Hardy - 2011 a].

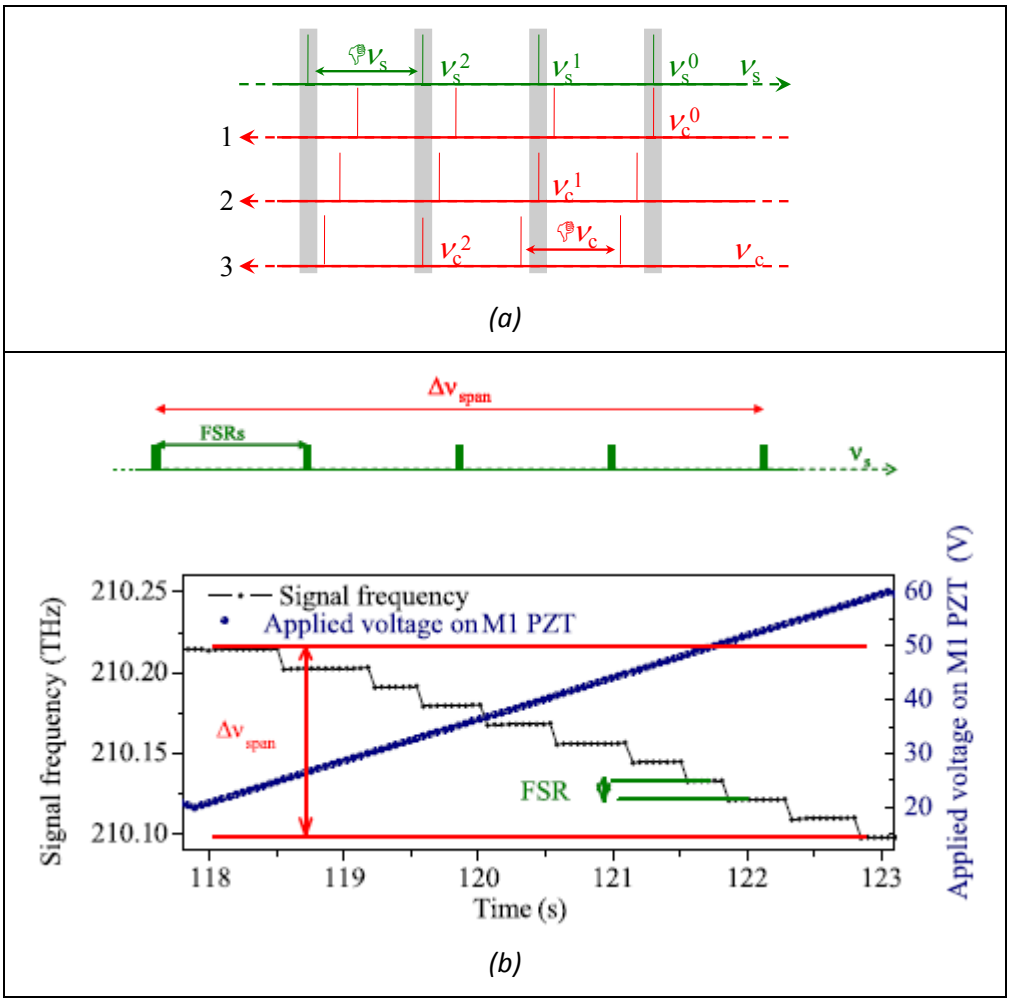


Figure 20 : Émission successive des modes du peigne signal par translation du peigne complémentaire (a) et accord en fréquence par saut de modes en contrôlant finement la position des miroirs de cavités M_1 et M_3 (b). La mesure a été faite en injectant l'onde signal dans un mesureur de longueur d'onde. [Hardy - 2012]

Cette méthode d'accord spécifique à l'architecture NesCOPO permet de définir la plage spectrale balayée par l'amplitude de mouvement du miroir M_1 et d'avoir une résolution spectrale totalement paramétrable grâce au déplacement du miroir M_3. Elle permet d'adapter le balayage fréquentiel en fonction de la mesure à réaliser (spectroscopie atmosphérique ou spectroscopie de haute résolution) en choisissant la résolution et la plage spectrale de mesure.

La dynamique de la méthode précédente est limitée à la bande de gain paramétrique du NesCOPO. Pour étendre la plage spectrale d'accord une seconde méthode d'accord en fréquence par saut de mode utilisant la température du cristal a été mise en place. Il est possible de faire varier la longueur optique des cavités en jouant sur la température du cristal. En effet, en augmentant la température du cristal, l'indice de réfraction du cristal change et le cristal se dilate. Cette technique permet de réaliser un balayage sur une plage

spectrale pouvant atteindre 3 THz [Hardy - 2011 a]. Ainsi, il est possible de décrire des raies d'absorption très larges de molécules complexes, plusieurs raies d'absorption d'une même espèce ou des raies d'absorption de plusieurs espèces. Par contre, la résolution du balayage est grossière et ne permet pas de réaliser de la spectroscopie de haute résolution.

Mise en œuvre de la source pour la spectrométrie

Le but de la thèse est de développer deux instruments pour la mesure de gaz DiAL longue portée et IP-DiAL pour des portées allant de quelques dizaines de mètres à quelques kilomètres. L'objectif est de s'appuyer sur les récents développements de cette brique technologique source NesCOPO, menés au cours des thèses précédentes, pour développer ces instruments.

Au cours des thèses précédentes, des tests en spectrométrie d'absorption ont été menés, afin de démontrer le potentiel de la source pour ces applications, notamment en termes de couverture spectrale.

Le premier exemple que l'on peut citer concerne les expériences de spectrométrie d'absorption en cellule simple passage menées au cours de la thèse de A. Berrou [Berrou - 2010]. Ce travail a permis de valider que la plage d'accord en longueur d'onde de ce DROPO couvre bien plusieurs gaz comme CO_2, CH_4, SO_2 et N_2O, montrant l'intérêt de cette source optique pour la conception de détecteurs multi-gaz.

Une perspective intéressante de ces travaux pour l'analyse de gaz locale est la mise en œuvre du NesCOPO pour la spectrométrie locale par une PME (Blue Industry and Science). L'Onera a effectué, en 2012, un transfert de technologie du NesCOPO vers cette PME donnant naissance à un analyseur multi-espèces (Blue X-FLR8 IAQ Monitoring) permettant de contrôler la qualité de l'air intérieur. Cet appareil offre la possibilité de détecter plusieurs gaz parmi les plus dangereux pour la santé (comme le formaldéhyde, le benzène, le toluène, le xylène, les esters, le dioxyde d'azote, le trichloroéthylène et bien d'autres) avec une sensibilité compatibles avec les réglementations en cours. Cet appareil couple un NesCOPO avec une cellule photo-acoustique pour l'analyse multi-gaz.

On peut noter que pour ces applications d'analyse de gaz locale par photo-acoustique, il est intéressant de disposer de sources NesCOPO de forte puissance moyenne. Dans ce cadre, en début de thèse, afin de me familiariser avec ces sources NesCOPO, j'ai pu valider le pompage en régime micro-seconde de ce NesCOPO. Il s'agit du premier OPO pompé par laser à fibre mono-fréquence, ces travaux sont reportés en Annexe F de ce manuscrit et ont fait l'objet d'une publication dans Optics Letters [Barrientos Barria - 2013].

Un second exemple de mise en œuvre de source NesCOPO pour la spectrométrie d'absorption consiste en de premiers tests du NesCOPO pour le DiAL intégré colonne très courte portée visant la mesure de la concentration en CO_2 atmosphérique autour de 4,2 µm [Hardy - 2012]. Dans cette expérience préliminaire, le NesCOPO était pompé par un microlaser (TeemPhotonics) délivrant des impulsions de 10 µJ à une cadence de 4,7 kHz [Hardy - 2011 b]. L'énergie disponible alors en sortie de l'émetteur est de l'ordre de 0,1 µJ permettant d'atteindre des portées réduites de l'ordre de la dizaine de mètres, insuffisant pour les applications adressées au cours de cette thèse. De plus, au cours de ce premier test, seule une espèce était mesurée : les problématiques de gestion des longueurs d'ondes à émettre en présence de plusieurs espèces n'ont pas été investiguées.

A.3.3. Synthèse

Dans le cadre du développement d'émetteurs et de leur intégration dans des instruments pour la détection de gaz par mesure DiAL ou IP-DiAL, le NesCOPO est donc une brique technologique qui présente plusieurs intérêts notables. En effet, cette source présente de nombreux avantages pour une intégration dans un instrument LIDAR :

- ✓ les seuils d'oscillations obtenus sont très bas permettant l'utilisation de laser de pompe de faible énergie et donc de faible encombrement et ainsi le développement de systèmes très compacts ;
- ✓ l'émission est de grande pureté spectrale : une émission monofréquence est possible, permettant une bonne sélectivité entre espèces ;
- ✓ l'émission est accordable sur une très large bande spectrale conduisant à la possibilité d'une détection multi-espèces avec un unique émetteur ;
- ✓ des schémas d'accord en longueur d'onde spécifiques à l'utilisation de deux cavités optiques imbriquées sont possibles qui permettent d'envisager des stratégies de mesures variées selon les besoins associés au système de détection.
- ✓ la possibilité d'utiliser les deux ondes signal et complémentaire pour réaliser des mesures lidar sur deux gammes spectrales simultanément.

Au cours de cette thèse, j'ai été amenée à mettre en œuvre cette brique technologique pour répondre aux besoins de deux familles applicatives à travers :

(1) Un premier instrument dédié au suivi de concentration de gaz pour des applications industrielles. L'utilisation du NesCOPO permet de disposer d'un émetteur compact et multi-espèces. Cet émetteur est intégré dans un instrument permettant d'effectuer des mesures IP-DiAL avec une portée de l'ordre de 100 m. La gamme spectrale accessible de cet instrument est comprise entre 3,3 et 3,7 µm. Elle permet de sonder de nombreux polluants industriels comme les COVs (l'acétone, le propylène ...), le dioxyde d'azote (NO_2) et certains gaz à effet de serre comme le méthane ou la vapeur d'eau. Ces développements sont détaillés dan le chapitre B de ce manuscrit.

(2) Un second instrument dédié au suivi des concentrations de gaz à effet de serre, multi-espèces dont le but est de répondre aux besoins des applications spatiales. La possibilité de réaliser un instrument tri-espèces (CO_2, CH_4, H_2O) autour de 2 µm, une des gammes de longueurs d'onde adaptées aux applications LIDAR depuis l'espace, à partir d'une seule architecture est démontrée. L'objectif de ce travail est de montrer le potentiel de l'architecture émetteur retenue pour cette application. Ces développements sont détaillés dans le chapitre C de ce manuscrit.

Il s'agit à présent, de décrire les développements instrumentaux menés au cours de cette thèse, pour le développement des deux instruments décrits ci-dessus.

Chapitre B : Développement d'un banc LIDAR moyenne portée (100 m) dans la gamme 3,3 – 3,7 µm

Objectif du chapitre :

Le développement et la caractérisation d'un instrument de mesure IP-DiAL multi-longueurs d'onde et multi-espèces sont décrits dans cette partie du manuscrit avec également la réalisation de mesure de spectre multi-espèces. Ensuite, une analyse critique des performances de l'instrument est réalisée.

Introduction

Comme nous l'avons vu, la détection d'espèces chimiques en faibles concentration dans l'atmosphère comme les gaz à effet de serre (H_2O, CO_2, CH_4 ...) ou les polluants industriels comme les composés organiques volatiles (COVs) ou les NOx est un enjeu pour de nombreuses applications : certaines liées à la sécurité ou au contrôle environnemental et d'autres encore liées au contrôle des fuites ou à la détection de contamination par les usines.

Pour répondre à la problématique du suivi de concentration des gaz à effet de serre et des émissions de polluants industriels, plusieurs instruments sont opérationnels (cf. paragraphe le suivi des polluants industriels ; dans l'introduction générale). Cependant, ces instruments LIDARs présentent plusieurs inconvénients. Pour adresser plusieurs espèces, ces émetteurs sont généralement basés sur des systèmes complexes multi-émetteurs ou sur des émetteurs multi-injecteurs, rendant l'instrument LIDAR encombrant et complexe. Dans cette partie, nous nous proposons de développer un instrument LIDAR de mesure intégrée colonne compact, multi-longueurs d'onde et multi-espèces pouvant adresser les polluants et gaz à effet de serre. Les spécifications recherchées sont résumées dans le *Tableau 5*.

Méthode de mesure	Mesure intégrée colonne (IP-DiAL)
Portée souhaitée	> 100 m
Gaz à adresser	Gaz à effet de serre (CO_2, CH_4)
	COVs (Formaldéhyde, propylène, acétone)
	Polluants industriels (SO_2, NOx (NO_2) ...)
	COGs
	H_2O l'interférant majoritaire

Tableau 5 : Spécifications de l'instrument LIDAR

Pour les développements instrumentaux présentés dans cette partie, la démarche entreprise pendant la thèse est la suivante :

- nous nous appuyons sur les essais LIDAR faits au cours de la thèse de B. Hardy sur le CO_2 uniquement à partir d'un NesCOPO sur de courtes portées allant de 10 m à 30 m pour réaliser un instrument LIDAR IP-DiAL [Hardy - 2012] ;
- cependant, plusieurs axes d'approfondissement sont étudiés pour le développement de cet instrument au cours de la thèse :
  - l'extension de la portée à une gamme supérieure c'est-à-dire atteindre des portées de l'ordre de la centaine de mètre tout en ayant un instrument transportable ;
  - sonder une autre gamme spectrale comprise entre 3,3 et 3,8 µm permettant de sonder l'ensemble des espèces gazeuses listées dans le *Tableau 5* présentant une section efficace d'absorption adaptée à la mesure lidar dans cette gamme spectrale ;
  - la réalisation d'un instrument multi-espèces ;
  - l'analyse approfondie des performances de mesure par l'analyse des bruits et de la sensibilité.
- pour finir, j'ai effectué de premières mesures LIDAR IP-DiAL multi-espèces sur le méthane et la vapeur d'eau atmosphériques.

Afin de démontrer le potentiel de l'instrument LIDAR, nous choisissons de réaliser les mesures de concentration sur des espèces facilement adressables c'est-à-dire présentes naturellement dans l'atmosphère : le méthane et la vapeur d'eau. Pour cela, nous réalisons les mesures de concentration autour de 3,3 µm car l'épaisseur optique associée au méthane atmosphérique est adaptée à la mesure LIDAR sur des portées de quelques dizaines de mètres.

Ainsi, les travaux réalisés pour cet instrument LIDAR sont décrits ci-après :

- l'émetteur est décrit en partie B.1.2 et B.1.3 ;
- l'instrument est présenté en partie B.1.4 ;
- la réalisation de mesures sur le méthane et la vapeur d'eau atmosphérique pour une portée de 30 m est présentée en partie B.1.5 ;
- l'analyse des performances et la proposition de perspectives.

B.1. Développement et caractérisation d'un instrument compact pour des mesures de concentration IP-DiAL multi-espèces dans la gamme 3,3 – 3,7 µm.

B.1.1. Architecture de l'instrument

L'architecture de base d'un instrument IP-DiAL constitué de trois blocs est représentée sur la *Figure 21*. Le bloc émission est constitué d'un laser de pompe et d'un bloc de conversion de fréquence présenté dans les parties B.1.2 et B.1.3. Ensuite, le bloc d'émission est couplé au bloc de détection et un bloc de pilotage et d'acquisition des données dans la partie B.1.4.

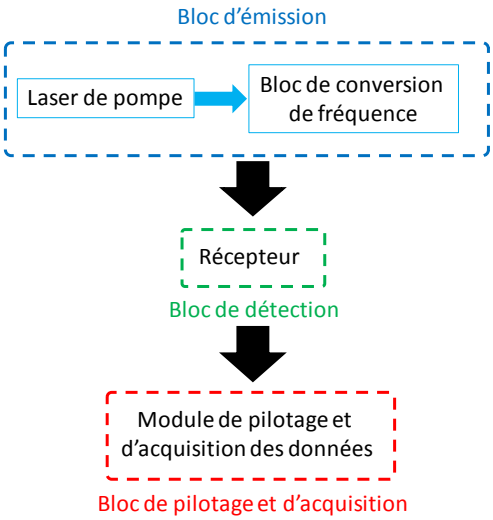


Figure 21 : Architecture basique de l'instrument IP-DiAL

Comme nous l'avons vu dans l'introduction générale, la technique de mesure IP-DiAL permet d'identifier et de quantifier en moyenne des gaz à l'état de trace présent sur la ligne de visée. Néanmoins, cette mesure ne permet pas de connaître le profil de concentration sur la ligne de visée. Il s'avère que cette technique est intéressante pour des applications telles que la détection et/ou la quantification de fuite de gaz, de certains polluants sur les sites industriels. Le principe général de la mesure de concentration de gaz à l'état de traces à l'aide de l'instrument IP-DiAL développé au cours de cette thèse est décrit sur la Figure 22.

A l'aide d'une lame prismatique en CaF_2, environ 1% de l'énergie complémentaire disponible en sortie d'émetteur est prélevée et dirigée vers le détecteur de référence. Le détecteur de référence est placé juste en sortie de l'émetteur et permet de corriger les fluctuations en intensité de la source optique tir à tir. Ces fluctuations en intensité sont une source d'erreurs systématique gênante pour la mesure car elles ne peuvent être réduites en moyennant le signal. Le reste de l'énergie complémentaire est envoyé au travers de l'atmosphère vers une cible située à une distance variable. Cette dernière, constituée soit d'une feuille de papier soit d'une cible lambertienne fixe ou en rotation, permet de rétrodiffuser le faisceau. Les irrégularités spatiales en surface de la cible illuminée par une lumière cohérente sont à l'origine du phénomène de speckle. Son impact sur la mesure LIDAR est évalué dans la section B.2.1.

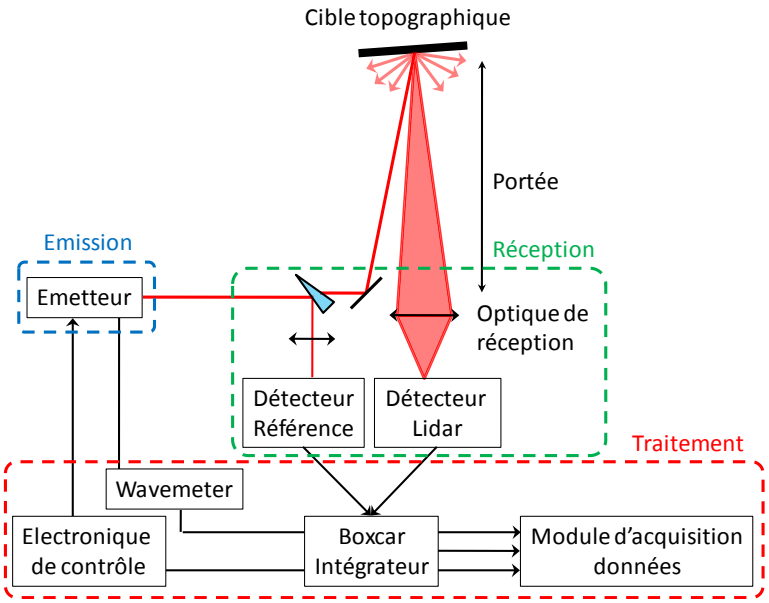


Figure 22 : Schéma de principe général de l'instrument IP-DiAL composé de trois blocs : l'émission (bleu), la réception (vert) et l'acquisition et le traitement du signal (rouge)

Une portion du faisceau rétrodiffusé est collectée à l'aide d'un système optique de grande ouverture et focalisé sur le détecteur LIDAR. Ensuite, les signaux référence et LIDAR sont intégrés et moyennés à l'aide d'un Boxcar. Par ailleurs, la longueur d'onde signal est mesurée à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde WS6 - IR HighFinesse. Ces trois données sont enregistrées simultanément à l'aide d'une carte d'acquisition et d'un programme LabView. Enfin, ce programme permet de contrôler les séquences de rampe appliquées aux PZTs associés aux miroirs d'entrée et de fond du NesCOPO générant ainsi des séquences de longueurs d'onde comme nous le verrons dans le paragraphe B.1.5.

Les spécifications de l'émetteur sont définies à partir des spécifications instrumentales décrites en introduction. Ainsi, la source optique développée doit :

- ✓ Pouvoir émettre dans une gamme spectrale comprise entre 3,3 et 3,8 µm. En effet, comme illustré sur la *Figure 23*, les espèces d'intérêt présentent de nombreuses raies d'absorption dans cette gamme spectrale.
- ✓ Délivrer des impulsions en régime nanoseconde d'au moins quelques µJ à une cadence de quelques kilohertz. Ces caractéristiques ont été déterminées à partir des expériences IP-DiAL menées au cours de la thèse de B. Hardy. En effet, ces travaux ont démontré qu'un émetteur délivrant des impulsions en régime nanoseconde de 100 nJ permettait d'atteindre des portées de quelques dizaines de mètres [Hardy – 2012].

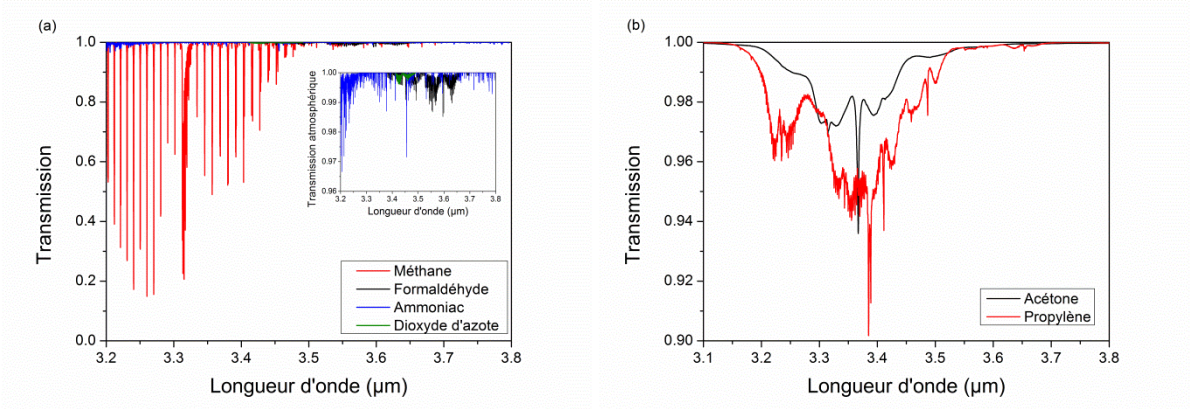


Figure 23 : Exemples de signatures spectrales de certains gaz à effet de serre, polluants industriels et COVs. Simulations réalisées à partir de la banque de données HITRAN sur une portée de 100 m à concentration atmosphérique (a) et Simulations réalisées à partir de la banque de données PNNL sur une portée de 50 m pour 10 ppm de l'espèce concernée (pression et température atmosphériques)

Comme nous réalisons des mesures IP-DiAL, il n'est pas nécessaire d'avoir un détecteur et un module d'acquisition rapides. Néanmoins, pour le bloc de réception il est nécessaire d'avoir des optiques de réception et un détecteur adaptés à notre gamme spectrale de mesure comprise entre 3,3 et 3,8 µm. Pour cela, l'instrument développé dans cette partie utilise un système de détection similaire à celui utilisé dans la thèse de B. Hardy [Hardy - 2011 a].

B.1.2. L'émetteur : laser de pompe

Le but de ces travaux est la mesure de concentration multi-longueurs d'onde et multi-espèces par mesure LIDAR intégrée colonne moyenne portée (typiquement, une portée > 100 m) à l'aide d'un instrument en détection directe. De plus, cet instrument doit être transportable afin de pouvoir réaliser des mesures sur sites industriels. Ce nouvel aspect contraint les choix technologiques faits pour le développement de l'émetteur notamment au niveau du choix du laser de pompe et de la source optique.

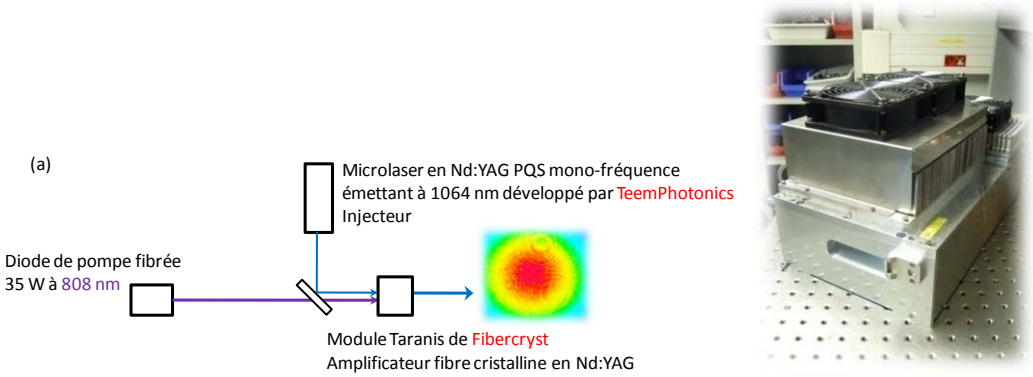


Figure 24 : Schéma de principe (a) et photographie (b) du microlaser amplifié de TeemPhotonics

Pour la réalisation de cette thèse, nous avons spécifié à TeemPhotonics la réalisation de ce laser de pompe. Avec la collaboration de Fybercryst, TeemPhotonics nous a ainsi spécifiquement développé un microlaser amplifié répondant à nos besoins. A partir des spécifications émetteur définies dans le paragraphe B.1.1, les spécifications du laser de pompe ont été définies. Ce dernier doit présenter une émission monofréquence stable et une bonne qualité spatiale du faisceau. De plus, le laser de pompe doit être suffisamment compact pour réaliser par la suite un instrument compact et transportable. Compte tenu des tests réalisés au cours de la thèse de B. Hardy, nous estimons que des impulsions de pompe de 200 µJ sont suffisantes pour atteindre la portée désirée (> 100 m).

Le schéma de principe de fonctionnement du microlaser amplifié est représenté sur la *Figure 24(a)*. Cette source, en configuration Master Oscillator - Fiber Amplifier [MOFA], est constituée d'un microlaser, développé par TeemPhotonics, délivrant des impulsions nanoseconde monofréquence de 10 µJ et d'un étage d'amplification pompé par diode. L'amplificateur bénéficie des dernières avancées technologiques des amplificateurs à base de fibres cristallines [Martial - 2012]. Il est basé sur le module Taranis, développé par Fibercryst, et est constitué d'une fibre cristalline en Nd:YAG. Ce module est pompé par une diode fibrée de 35 W émettant à 808 nm. La photographie du microlaser amplifié est présentée sur la *Figure 24(b)*. Son système de refroidissement à air permet d'envisager son intégration dans un instrument transportable. En effet, ce laser de pompe est compact avec une empreinte au sol de 24 x 44 cm², ce qui est encourageant pour les aspects de transportabilité.

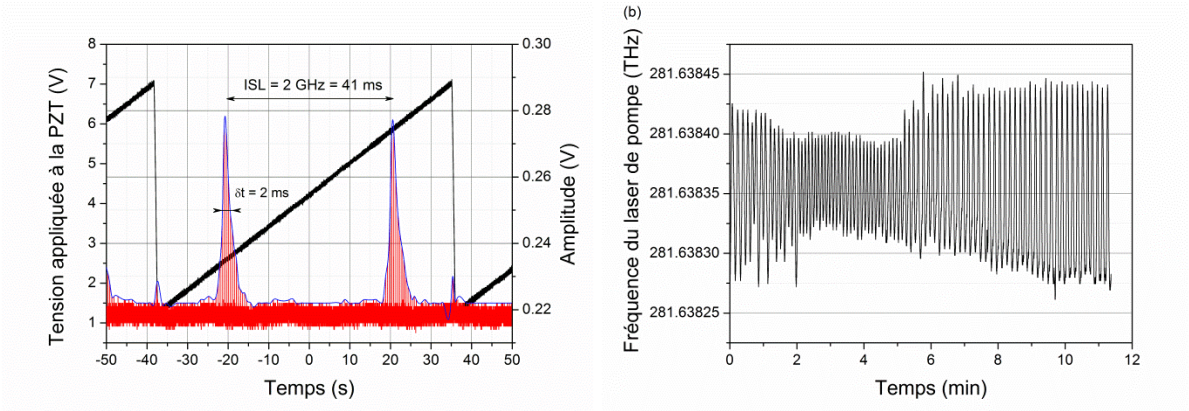


Figure 25 : Profil spectral de l'émission laser mesuré au Fabry-Pérot balayable (a) et évolution de la fréquence du laser de pompe sur le long terme (b)

En sortie directe du laser, le faisceau présente une très bonne qualité spatiale avec un M^2 = 1,08. Par ailleurs, ce laser présente une bonne qualité spectrale (*Figure 25*). La *Figure 25(a)* représente le profil spectral de l'émission laser mesuré au Fabry-Pérot. Cette mesure permet de vérifier le caractère monofréquence de l'émission laser. A l'aide d'un Fabry-Pérot dont l'ISL est de 2 GHz, une mesure de la largeur de raie du laser a été réalisée. On mesure une largeur de raie à mi-hauteur de 100 MHz environ. La *Figure 25(b)* illustre l'évolution de la fréquence laser émise au cours du temps mesurée à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde (WS6 - 200 HighFinesse) dont la résolution est de 50 MHz. La fréquence du laser varie lentement sur plusieurs secondes de $\Delta\nu_p$ = 150 MHz pic à pic. Ces fluctuations en fréquence sont dues aux oscillations de la régulation en température du laser de pompe. Cet aspect pourrait être amélioré en stabilisant sa température. L'émission laser est centrée autour de 281,638 THz sans pics secondaires séparés d'un intervalle spectral libre (ISL) valant environ 40 pm soit 10,6 GHz.

Grâce à cette architecture, le laser de pompe développé par TeemPhotonics est compact et délivre des impulsions de 200 µJ pour une durée d'impulsion de 8,6 ns à une cadence de 2 kHz avec une bonne qualité spatiale et spectrale. Il atteint les performances souhaitées permettant le développement de l'émetteur largement accordable de 3,3 - 3,7 µm présenté dans la partie B.1.3.

Ensuite, le but est de concevoir un émetteur basé sur le NesCOPO émettant dans l'infrarouge moyen, convertissant au mieux l'énergie de pompe, tout en conservant une bonne qualité spatiale et spectrale de l'émission et une large accordabilité.

B.1.3. Conception du bloc de conversion de fréquence et caractérisation de l'émetteur

Dans un premier temps l'idée a été de réaliser un NesCOPO permettant de délivrer quelques µJ en adaptant les cavités signal et complémentaire sans trop dégrader leur finesse. Il existe un compromis entre la finesse des cavités et l'énergie extraite. En effet, la finesse et l'énergie extraite dépendent tous deux des coefficients de réflexion d'une cavité optique. Ainsi, plus l'énergie extraite est grande plus la finesse est dégradée. Or, le caractère monofréquence de l'émission OPO est affecté par la finesse des cavités optiques. En effet, si la finesse est trop dégradée le filtrage par effet Vernier est moins efficace conduisant à une émission des modes voisins [Scherrer - 2000].

La solution alors envisagée a été de développer un émetteur constitué d'un NesCOPO avec un cristal en accord de phase de type 0 suivi d'un étage d'amplification, une configuration MOPA [*Master Oscillator - Power Amplifier*] en d'autres termes. Cette configuration plus souple permet de dissocier les problèmes liés à la qualité spectrale de l'émission et ceux liés à l'énergie extraite. A présent, l'objectif est de concevoir un émetteur compact et énergétique basé sur cette configuration.

Architecture de l'émetteur

L'émetteur est décrit en *Figure 26* est alors constitué d'un NesCOPO, l'oscillateur maître, et d'un étage d'amplification. Notons que le laser de pompe et le NesCOPO amplifié sont placés sur deux petits marbres isolés l'un de l'autre en vibration. En effet, des problèmes vibratoires dus au refroidissement des diodes de pompe du laser de pompe nous ont amenés à cette solution. En sortie du laser de pompe, le faisceau est collimaté sur un diamètre Φ de 4 mm correspondant à la largeur à mi-hauteur (FWHM). Après isolation, jusqu'à 10 µJ sont prélevés à l'aide d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur et focalisé sur un rayon de pompe au *waist* ω_p de 60 µm permettant de pomper le module NesCOPO. Ce module utilise un cristal non linéaire de PPLN dopé MgO de 4 mm en accord de phase de type 0. Ainsi, l'Intervalle Spectral Libre (ISL) de la cavité signal est d'environ 15 GHz.

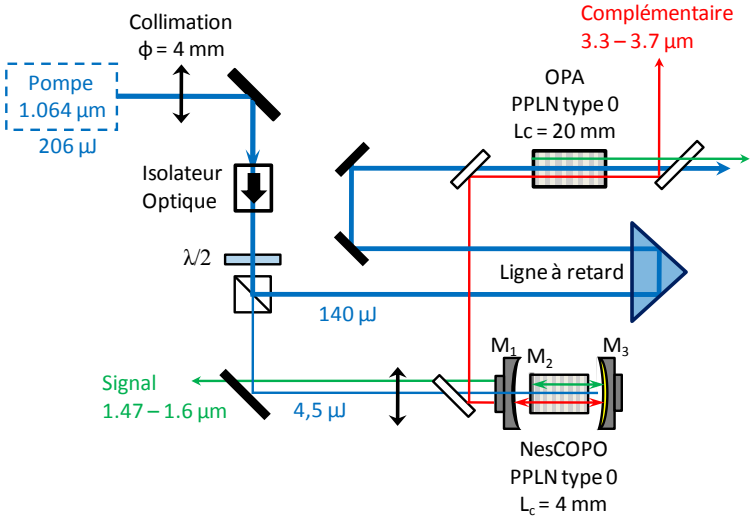


Figure 26 : Schéma expérimental de l'émetteur largement accordable de 3,3 à 3,8 µm

Trois réseaux de quasi-accord de phase sont disponibles conduisant à une accordabilité en température de 3,3 µm à 3,7 µm. Le cristal est inséré dans une cavité linéaire composée de deux miroirs externes. Le miroir d'entrée M_1 de 20 mm de rayon de courbure réfléchissant 80 % à 3,5 µm et le miroir de fond doré M_3 de 20 mm de rayon de courbure hautement réfléchissant pour les trois ondes (signal, complémentaire et pompe). Une lame dichroïque placée devant le NesCOPO permet de sélectionner uniquement le faisceau complémentaire en réflexion afin de l'amplifier. L'étage d'amplification est constitué d'un cristal de PPLN dopé MgO en quasi accord de phase de type 0 de 20 mm de long. Les faisceaux pompe et complémentaire sont focalisés au centre du cristal tels que leur rayon au waist soit de ω_p = 105 µm et ω_c = 125 µm respectivement. L'impulsion OPO est décalée temporellement par rapport à l'impulsion de pompe car la formation de l'impulsion OPO nécessite un temps de construction. Pour optimiser le recouvrement temporel entre la pompe et le complémentaire à amplifier, et ainsi maximiser le gain de l'étage d'amplification, les impulsions pompe sont retardées de 2,7 ns à l'aide d'une ligne à retard de 80 cm. De plus, à cause de pertes introduites par les optiques, jusqu'à 140 µJ de pompe sont disponibles pour l'étage d'amplification.

Caractérisation de l'émetteur

Caractérisation du NesCOPO

Les performances en puissance du NesCOPO sont résumées sur la *Figure 27(a)* représentant l'énergie extraite de l'OPO en fonction de l'énergie de pompe incidente. Le seuil d'oscillation se situe entre 1 µJ et 2 µJ. Des impulsions de 350 nJ sont émises entre 3,3 µm et 3,7 µm pour une énergie de pompe incidente de 9,5 µJ. Afin de limiter la dégradation de la qualité spatiale et spectrale du faisceau complémentaire due aux effets de saturation pour des taux de pompage élevés, nous choisissons de travailler avec une énergie de pompe de 4,5 µJ correspondant à la zone utile de la *Figure 27(a)*. Dans ces conditions, l'OPO délivre des impulsions de 100 à 150 nJ sur la plage d'accordabilité. Après plusieurs optiques de filtrage, le NesCOPO délivre 125 nJ accordables entre 3,3 µm et 3,8 µm.

Méthode d'accordabilité	Plage de fréquence d'accord
Réseau	3 réseaux permettant un accord entre 3,3 et 3,8 µm
Température	100 nm par réseau pour un ΔT de 100 °C
PZT	20 nm à réseau et température fixés

Tableau 6 : Gammes spectrales accessibles par le NesCOPO pour les trois méthodes d'accord en fréquence décrites dans la section A.3.2.

L'accordabilité de la source optique développée pour les trois méthodes d'accord en fréquence décrites au paragraphe A.3.2 est résumée dans le *Tableau 6*. Le NesCOPO peut notamment être accordé sur 20 nm à 3,3 µm en jouant uniquement sur la position des miroirs M_1 et M_3 montés sur des cales piézo-électriques (PZT).

La *Figure 27(b)* représente le spectre du signal émis autour de 1,5 µm en pompant l'OPO trois fois au dessus du seuil (correspondant à une énergie de pompe de 4,5 µJ) avec en insert le profil spatial du faisceau complémentaire après collimation. Le spectre émis par l'OPO est mesuré à l'aide de l'analyseur de spectre optique (ANDO AQ6317B) en prélevant une partie du faisceau signal émis autour de 1,5 µm. Cet analyseur de spectre optique permet de visualiser le caractère monofréquence du NesCOPO. En effet, la résolution de l'analyseur de spectre est suffisante pour visualiser l'apparition de modes voisins séparés de 15 GHz.

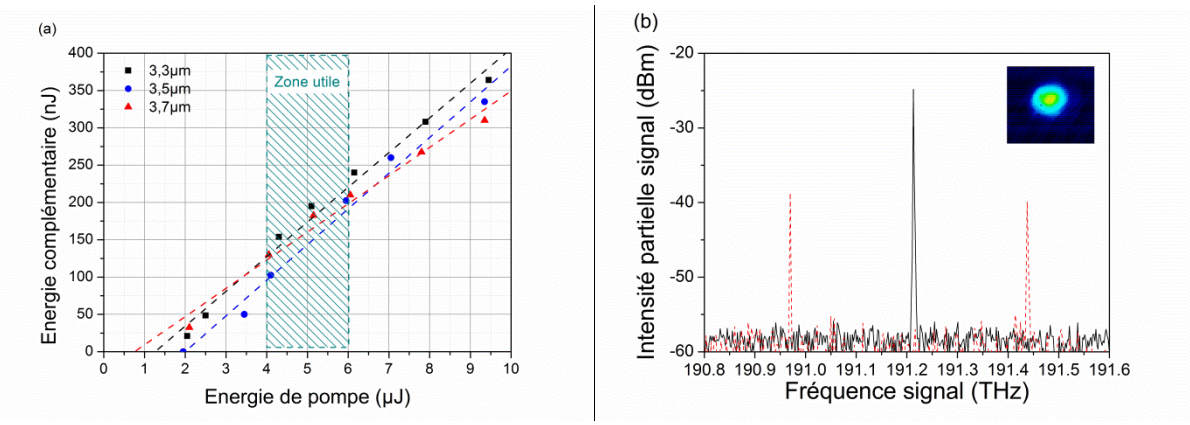


Figure 27 : Caractéristique en puissance de l'OPO seul à 3,3 µm (en noir) et 3,5 µm (en bleu) et 3,7 µm (en rouge) (a) et le spectre expérimental mesuré à l'OSA de l'OPO à 3,3 µm (insert : le profil spatial après collimation) en pompant à trois fois au dessus du seuil avec émission d'un mode unique au centre de la bande de gain (en noir) et de deux modes en bord de bande de gain représenté en tirets rouge.

Lors de ces caractérisations spectrale et spatiale le complémentaire est émis autour de 3,3 µm. L'émission OPO est monofréquence à 3,3 µm avec une très bonne extinction des modes secondaires (SMSR) supérieur à 30 dB excepté sur les bords de la bande de gain. Comme illustré sur la *Figure 27(b)*, en bord de bande de gain deux modes en coïncidence exacte sont émis simultanément. En effet, à 3,3 µm la bande de gain est trop large pour contenir qu'une seule coïncidence exacte rendant le compromis entre la dissociation et la largeur de la bande de gain difficile à réaliser. Si on souhaitait être monofréquence sur l'ensemble de la bande de gain du NesCOPO à 3,3 µm, on utiliserait un cristal de PPLN en accord de phase de type II [Hardy - 2011 a]. Dans le chapitre C, ce type de cristal est utilisé à 2 µm. L'émission simultanée de deux modes n'est pas souhaitable dans le cadre d'une mesure LIDAR. En effet, l'émission simultanée de deux modes provoquent lors d'une mesure LIDAR soit une mauvaise estimation de la quantité de lumière absorbée soit l'apparition de raies parasites comme nous l'expliquerons dans le paragraphe B.2.1. Nous verrons également qu'il est possible de s'affranchir de cette source d'erreur dans les paragraphes B.1.3 et B.1.5. Par ailleurs, le profil spatial, en insert dans le graphique, montre un profil gaussien du faisceau émis à 3,3 µm.

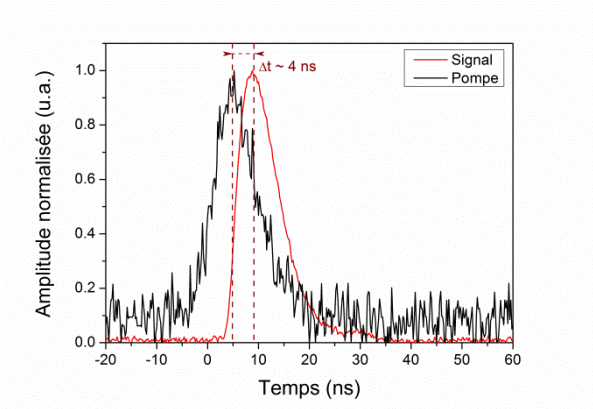


Figure 28 : Profils temporels normalisés de l'impulsion signal générée et de l'impulsion de pompe

La *Figure 28* représente le profil temporel de la pompe et du signal émis par l'OPO mesurés au même endroit avec une photodiode InGaAs. La formation de l'impulsion OPO nécessite

un temps de construction représentée sur la *Figure 28*. En effet, l'impulsion OPO est décalée temporellement d'environ 4 ns par rapport à l'impulsion de pompe. Ainsi, pour optimiser le recouvrement temporel entre l'onde de pompe et l'onde complémentaire à amplifier, les impulsions pompe sont retardées de 2,7 ns à l'aide d'une ligne à retard de 80 cm. Sur ce banc optique, il n'a pas été possible de retarder d'avantage les impulsions pompe par soucis de compacité.

Performances de l'émetteur : le NesCOPO amplifié

Les épaisseurs optiques du méthane et de la vapeur d'eau atmosphériques sont intéressantes autour de 3,3 µm dans le cadre d'une mesure IP-DiAL sur une portée de quelques dizaines de mètre. En effet, l'absorption de ces deux gaz dans cette gamme spectrale pour les portées désirées n'est ni trop forte ni trop faible. Par conséquent, les tests de validation seront effectués sur ces deux espèces et l'ensemble des caractérisations présentées sont réalisées pour une émission de l'onde complémentaire autour de 3,3 µm en utilisant le réseau de pas 30,7 µm.

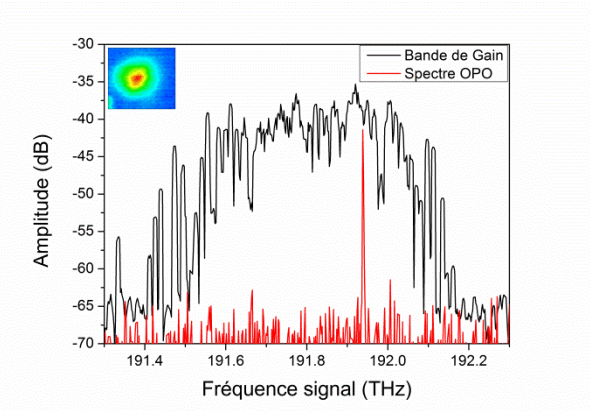


Figure 29 : Bande d'émission de l'OPO et le spectre de l'OPO amplifié mesuré par un analyseur de spectre optique (en insert : Profil spatial du faisceau complémentaire amplifié)

Tout d'abord, le faisceau complémentaire disponible en sortie de l'émetteur a une bonne qualité spatiale et spectrale. En effet, l'OPA ne dégrade pas la pureté spectrale des ondes signal et complémentaire. De plus le profil spatial, en insert de la *Figure 29*, montre une bonne qualité spatiale du faisceau complémentaire amplifié.

Les caractérisations concernant la bande de gain de l'OPO et le spectre du faisceau amplifié sont réalisées avec un analyseur de spectre optique (ANDO AQ6317B) en prélevant pour la première une partie du signal généré par le NesCOPO et pour la seconde une partie du signal généré après amplification. Le balayage des cales PZT pendant la mesure de spectre permet de visualiser expérimentalement la bande de gain du NesCOPO représentée en noir sur la *Figure 29*. La largeur totale de la bande de gain d'émission du NesCOPO est de l'ordre de 800 GHz soit environ 26 cm^{-1}. De plus, l'émission OPO amplifié est monofréquence à 3,3 µm avec une très bonne extinction des modes secondaires (SMSR) supérieur à 30 dB.

Néanmoins, la gamme spectrale accessible avec l'étage d'amplification ne correspond pas à la largeur d'émission du NesCOPO illustrée sur la *Figure 30(a)*. En considérant les longueurs de cristaux respectifs du NesCOPO et de l'OPA, à température fixée, la largeur spectrale de la bande d'émission du NesCOPO est environ deux fois plus large que celle de l'étage d'amplification. En effet, la largeur de la bande de gain est inversement proportionnelle à la

longueur du cristal traversé [Boyd - 1992]. La *Figure 30(a)* compare la largeur de la bande d'émission du NesCOPO, mesurée à l'analyseur de spectre optique (ANDO AQ6317B), avec celle de la bande de gain d'amplification. La bande de gain de l'étage d'amplification est mesurée au puissance-mètre en fonction de la fréquence émise. La largeur spectrale de l'étage d'amplification vaut approximativement 400 GHz. Ceci est en accord avec la valeur attendue de 320 GHz. En présence de l'étage d'amplification, nous observons :

- une réduction de la plage d'accordabilité utile à 13 cm^{-1} ;
- émission monofréquence sur la plage spectrale disponible

Par ailleurs, dans cette configuration, le faisceau complémentaire en sortie du NesCOPO est amplifié par un facteur 40. Ainsi, jusqu'à 5 µJ sont extraits à 3,3 µm conduisant à un rendement de conversion non linéaire optique - optique global assez faible de l'ordre de 7,5 %.

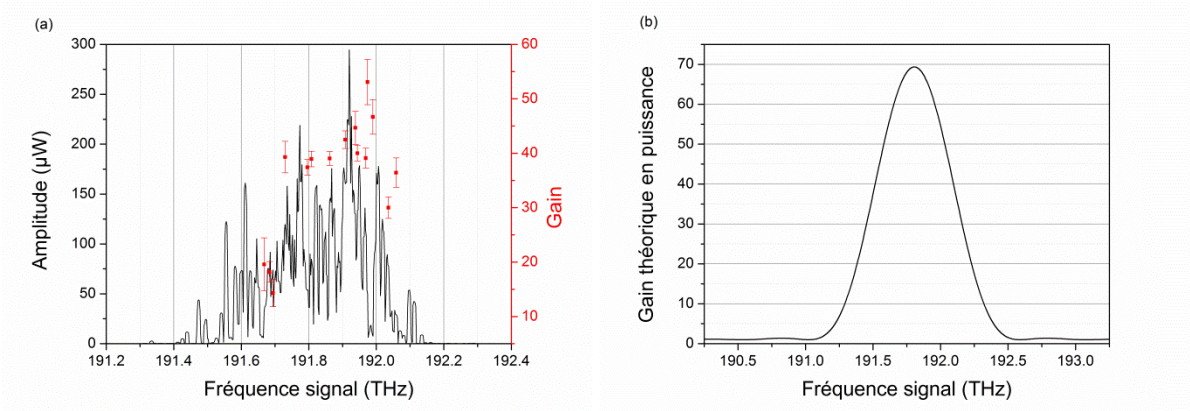


Figure 30 : Comparaison de la largeur d'émission de l'OPO (trait plein noir) et la largeur d'amplification de l'OPA (points rouge) à 3,3 µm (a) et simulation du gain en puissance de l'étage d'amplification constitué d'un cristal de PPLN de 20 mm de long (b)

La *Figure 30(b)* montre le gain théorique en puissance de l'étage d'amplification simulé pour un coefficient non linéaire d_{eff} de 14,8 pm/V [SNLO] et un cristal de PPLN de 20 mm de long. Le modèle utilisé est un modèle en onde plane réalisé pour les impulsions longues [SNLO]. Dans ces conditions, le gain en puissance théorique vaut environ 70. Plusieurs causes expérimentales peuvent expliquer ce facteur 2 entre le gain théorique et le gain expérimental :

- un mauvais recouvrement spatial expérimental entre le faisceau de pompe et le faisceau complémentaire ;
- une ligne à retard trop courte ;
- un coefficient non linéaire réel plus faible que la valeur théorique.

A partir de la simulation, nous estimons les pertes dues à l'ensemble de ces causes d'environ 40 %. La cause la plus probable de ce gain faible est le mauvais recouvrement spatial entre les ondes de pompe et complémentaire.

Avec cette configuration de l'émetteur, à température fixée sans ajustement d'autres paramètres que la position des PZTs, la gamme spectrale accessible pour les mesures IP-DiAL est limitée par la largeur du gain de l'étage d'amplification (*Figure 30(a)*). L'onde complémentaire, de bonne qualité spatiale et spectrale, est accordable sur 14 nm soit

environ 13 cm^{-1}. Le rayonnement complémentaire présente des qualités adaptées à la mesure LIDAR IP-DiAL multi-espèces.

En sortie de l'émetteur, le faisceau complémentaire amplifié est collimaté avec une lentille en CaF_2 de 25,4 mm de diamètre et 80 mm de focale. La divergence du faisceau est de l'ordre de 1 mrad.

Par ailleurs, la stabilité en position du faisceau complémentaire est caractérisée. La position du faisceau est repérée à l'aide d'une caméra Pyrocam III (dont les pixels font 100 µm de côté) placée à 215 cm de la sortie de l'émetteur. Une instabilité en position de +/- 100 µm à 215 cm est mesurée pour un faisceau de 9 mm de diamètre. De même, lorsque l'on passe d'une fréquence à une autre séparée d'un ISL, le faisceau complémentaire se déplace de +/- 100 µm à une distance de 215 cm de la sortie de l'émetteur. Ainsi, le dépointé du faisceau en sortie de l'émetteur est de 0,05 mrad.

De plus, les fluctuations en intensité du faisceau complémentaire sont caractérisées et de l'ordre de +/- 3 % sur 1 s en écart-type. Sans correction de ces fluctuations en intensité, un biais c'est-à-dire une erreur systématique corrélée à ces fluctuations est présente sur la mesure LIDAR. En effet, les variations en absorption du signal lidar sont alors dues aux fluctuations en intensité de l'émetteur. L'ajout du détecteur de référence permet de réduire ce biais comme nous le verrons dans le paragraphe B.2.1.

B.1.4. Couplage de l'émetteur et du bloc de réception de l'instrument IP-DiAL

Le bloc de réception et détection

Le bloc de réception est constitué de deux parties : (i) la voie référence et (ii) la voie Lidar. Comme il a été précisé auparavant, il est nécessaire d'avoir une voie de référence dans le cadre des mesures de concentration intégrées colonne. En effet, elle permet de corriger les fluctuations en intensité de la source optique tir à tir de la voie Lidar limitant ainsi une source d'erreurs systématiques pour la mesure LIDAR. Chaque voie est constituée d'un système optique et d'un détecteur.

La voie de référence

Caractéristiques	PVI-3TE-5
Résistance $R_{dét}$	10 MΩ
Bande Passante	35 MHz
Taille du détecteur	0,1 cm
Détectivité D*	10^{11} cm.Hz$^{1/2}$/W à 5 µm
NEP	5.10^{-13} W/Hz$^{1/2}$ à 5 µm
Sensibilité	0,5 A/W
Amplificateur	Non

Tableau 7 : Caractéristiques constructeur du détecteur utilisé sur la voie de référence

Le signal de référence est mesuré à l'aide d'un détecteur VIGO IR photovoltaïque refroidi thermo-électriquement (PVI-3TE-5) dont le maximum de sensibilité est situé à 5 µm. Ses caractéristiques sont résumées dans le *Tableau **7***. Pour augmenter son ouverture, il est optiquement immergé avec une lentille en GaAs de fort indice de réfraction. La taille équivalente du détecteur est de l'ordre de 0,1 cm de diamètre.

La voie Lidar

Caractéristiques	J15D14	J10D
Résistance $R_{dét}$	60 Ω	> 1 MΩ
Bande Passante	0,7 MHz	n.c.
Taille du détecteur	0,1 cm	0,05 cm
Détectivité D*	3.10^{10} cm.Hz$^{1/2}$/W à 13 µm	1.10^{11} cm.Hz$^{1/2}$/W à 5 µm
NEP	3.10^{-12} W/Hz$^{1/2}$ à 13 µm	$0,4.\ 10^{-12}$ W/Hz$^{1/2}$ à 5 µm
Sensibilité	1000 V/W	3 A/W
Amplificateur	Oui	Oui

Tableau 8 : Caractéristiques constructeur des deux détecteurs testés sur la voie LIDAR lors des expériences de mesure de concentration IP-DiAL

Afin d'obtenir une portée maximale de mesure, la détection du signal Lidar nécessite l'utilisation d'un détecteur très sensible dans l'infrarouge. Deux détecteurs développés par Teledyne Judson suivis d'un amplificateur électronique ont pu être testés dont les caractéristiques sont résumées dans le *Tableau **8***. Le premier détecteur est un détecteur HeCdTe (MCT) refroidi à l'azote liquide destiné à une utilisation dans l'infrarouge thermique avec un maximum de sensibilité situé à 13 µm (J15D14-M204-S01M-60). La surface sensible

de ce détecteur est de 1 mm^2. Teledyne Judson développe également des pré-amplicateurs dédiés à ce type de détecteur nécessitant des gains importants avec un bruit faible. On utilise le modèle PA-101 contenant deux étages d'amplification dont les caractéristiques sont résumées sur le *Tableau 9*. Deux valeurs gains sont disponibles (x 100 et x 1000) modifiant la bande passante de l'ensemble {détecteur + amplificateur}.

Caractéristiques	PA - 101	DHPCA - 100
Gain	100 1 000	10^2 à 10^8 V/W
Bande Passante	1 MHz 200 kHz	220 kHz à 200 MHz
Bruit à l'entrée	1,5 $nV.Hz^{1/2}$	200 $pA.Hz^{1/2}$ à 55 $fA.Hz^{1/2}$

Tableau 9 : Tableau de synthèse des caractéristiques constructeurs des deux amplificateurs électroniques associés aux détecteurs MCT

Le second détecteur sélectionné pour la voie Lidar est un détecteur InSb refroidi à l'azote liquide (J10D-M204-R500U-60) dont le maximum de sensibilité étant situé autour de 5 µm. Ce détecteur est adapté à la gamme spectrale de l'instrument. La surface sensible de ce détecteur est de 0,025 mm^2. Pour ce second détecteur, l'amplificateur électronique utilisé est un amplificateur femto (DHPCA-100). Le gain transimpédance de l'amplificateur est réglable de 10^2 à 10^8. La bande passante de l'appareil varie de 200 MHz pour le gain le plus faible jusqu'à 220 kHz. Ce détecteur nous a été prêté par DOTA/SLS lors d'une collaboration dans le cadre de la thèse d'A. Dobroc [Dobroc - 2013].
Pour la mesure LIDAR, le système de réception est choisi afin de collecter la totalité du flux rétrodiffusé par la cible. Ainsi, pour limiter les bruits de mesure dus aux effets du dépointé, la divergence du système de collection est choisie grande par rapport à la divergence du faisceau émis. En pratique, on essaiera d'avoir un champ de collection deux fois plus grand que le champ d'émission.

L'acquisition des signaux : la fréquence émise, les photo-courants des voies de référence et Lidar

La mesure de spectre d'absorption nécessite de connaître trois informations : (i) la fréquence émise, (ii) le photo-courant de la voie de référence et (iii) le photo-courant de la voie Lidar. Ces deux dernières informations permettent une mesure de la transmission moyenne sur la ligne de visée.

Le mesureur de longueur d'onde

La longueur d'onde complémentaire générée par l'émetteur n'est pas mesurée directement. En effet, au laboratoire nous ne disposons pas d'appareil capable de réaliser cette mesure dans la gamme spectrale du faisceau complémentaire (3,3 µm – 3,8 µm) avec une résolution suffisante. Au contraire, de nombreux appareils de mesure sont disponibles dans la gamme spectrale autour de 1,5 µm. Ainsi, la longueur d'onde signal est mesurée à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde WS6 (*HighFinesse*) dont la résolution est de 50 MHz. Par ailleurs, le balayage par saut de mode par balayage continu des cales PZT induit une dérive de la longueur d'onde signal dans le temps comme illustré dans le paragraphe B.1.5. Ce phénomène implique une erreur systématique pour la mesure de fréquence. Ainsi, la longueur d'onde du faisceau signal est connue avec une précision de 60 MHz. La longueur

d'onde complémentaire émise lors des mesures IP-DiAL est déduite de la relation de conservation de l'énergie vue dans la partie A et en considérant la longueur d'onde pompe constante et égale à sa valeur moyenne λ_p = 1064,415 nm. Cependant, comme nous l'avons vu précédemment dans la section B.1.1, du fait de fluctuations en température, la fréquence de pompe varie lentement sur 150 MHz pic à pic. L'estimation de la valeur de la longueur d'onde complémentaire est donc connue avec une précision de 160 MHz environ car les deux erreurs ne sont pas corrélées entre elles pendant une durée de mesure typique de 50 ms.

Le Boxcar

Le boxcar est un instrument permettant d'ouvrir une fenêtre temporelle au cours de laquelle le signal d'intérêt est intégré selon une moyenne glissante exponentielle sur un nombre de d'échantillons réglable. Une moyenne glissante "exponentielle" est une méthode de moyennage similaire à la moyenne glissante classique à la différence que les données sont pondérées selon une loi exponentielle avec le poids le plus fort attribué à la dernière donnée [Lawrance - 1977]. Le boxcar ouvre une fenêtre temporelle de durée ajustable comprise entre 2 ns et 15 µs qui peut être déclenchée à l'aide d'un signal interne ou externe. De plus, un délai temporel peut être appliqué à cette porte compris entre quelques ns et 100 ms. Ces deux fonctionnalités permettent de sélectionner précisément le signal d'intérêt tout en rejetant le bruit en dehors de la porte temporelle ce qui est adapté à notre configuration expérimentale en régime nanoseconde. Le signal contenu dans la porte est alors intégré sur toute la durée de la porte et divisé par la durée de cette porte.

Ainsi, le Boxcar fournit une tension proportionnelle à la valeur moyenne du signal d'entrée. Par ailleurs, cet appareil permet d'amplifier cette tension avec un gain compris entre 1 et 200. Le signal peut être ensuite moyenné entre 1 à 10 000 échantillons. Par conséquent, en moyennant 10 000 échantillons, le rapport signal sur bruit peut être amélioré d'un facteur 100.

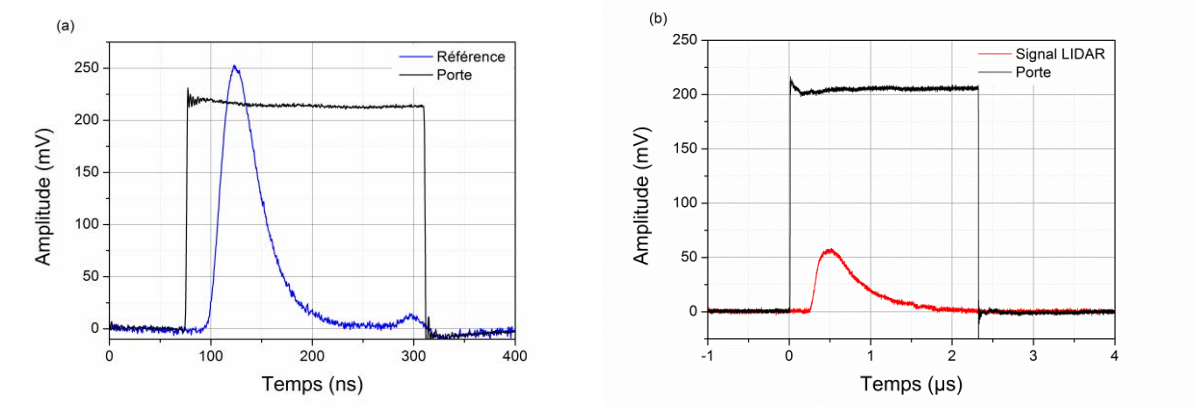


Figure 31 : Exemple de fenêtres temporelles ouvertes à l'aide du Boxcar mesurées à l'oscilloscope pour le détecteur de référence (a) et le détecteur signal (b)

La mesure IP-DiAL nécessite deux voies de mesure : la voie référence et la voie Lidar. Par conséquent, deux boxcars sont utilisés. La *Figure 31* illustre leur fonctionnement notamment l'ouverture des deux fenêtres temporelles d'intégration. Le détecteur de la voie Lidar utilisé lors de cet enregistrement est le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide. C'est un détecteur sensible mais lent avec un temps de réponse de l'ordre de 500 ns. Ainsi, la durée de l'impulsion rétrodiffusée par la cible topographique est d'environ 1 µs à mi-hauteur. Afin

d'intégrer l'ensemble du signal Lidar, la durée de la porte est de l'ordre de 2,3 µs. La totalité du signal de la voie de référence est intégré pour une porte de 250 ns de durée. Par ailleurs, ces deux appareils sont déclenchés par le laser de pompe. Au cours de la mesure IP-DiAL, le nombre d'impulsions moyennées à l'aide du Boxcar est adapté de sorte que le temps d'intégration du Boxcar soit égal au temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde.

La carte d'acquisition

Le signal intégré et moyenné par le Boxcar des voies référence et lidar est acquis à l'aide d'une carte d'acquisition National Instrument (PCI-MIO-16XE-50). Sa bande passante est de 20 000 échantillon/s. Cette carte est reliée à l'ordinateur de contrôle.

Le pilotage de la source NesCOPO et l'acquisition des données

L'ensemble de l'expérience est piloté par un programme LabView développé au cours de la thèse d'A. Berrou pour de la spectrométrie de gaz par photoacoustique [Berrou - 2008]. Le principe de fonctionnement du programme est représenté sur la *Figure 32*. Ce programme, associé à la carte d'acquisition permet l'acquisition des données suivantes :

- la longueur d'onde signal émise ;
- le niveau de signal de la voie de référence ;
- le niveau de signal de la voie lidar.

Le balayage en fréquence de l'émetteur est contrôlé par le programme d'acquisition. Un balayage par saut de modes est réalisé [Hardy – 2012 ; A.3.2]. En effet, une consigne est appliquée à chacune des deux cales PZTs dont les paramètres sont déterminés et fixés avant de réaliser la mesure.

Ces paramètres sont :

- la fréquence du balayage ;
- la tension initiale appliquée à la cale PZT du miroir d'entrée M_1 ;
- les tensions finales appliquées aux deux cales PZTs ;
- l'incrément en tension.

Le contrôle fin de la position des miroirs de cavités M_1 et M_3 permet de réaliser un accord en fréquence par saut de mode (A.3.2). Les consignes appliquées aux cales PZTs permettent d'émettre des séquences de longueurs d'onde adaptées à la mesure de concentration du méthane et de la vapeur d'eau atmosphériques. En effet, l'architecture spécifique du NesCOPO permet de choisir la résolution fréquentielle et la plage spectrale sondée. Les séquences de longueurs d'onde émises sont explicitées au paragraphe B.1.5.

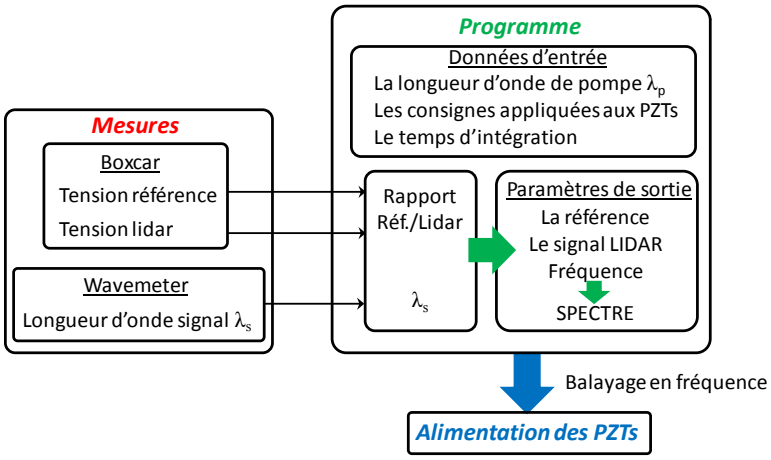


Figure 32 : Organigramme du principe de fonctionnement du programme de pilotage

Le temps d'intégration du programme est lui aussi adapté au temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde. Par ailleurs, l'interface Labview permet un affichage en temps réel du spectre d'absorption mesuré. De plus, les consignes appliquées aux PZTs, l'évolution de la longueur d'onde en fonction du temps et le spectre sont enregistrés à la fin de chaque mesure. Cet instrument permet de réaliser des mesures de spectre automatisées.

Mise en évidence des difficultés expérimentales rencontrées

La difficulté majeure rencontrée lors de la mise en œuvre de ces expériences provient des bruits et des biais de mesure observés sur la ligne de base. En effet, pour réaliser une mesure de concentration précise, il est nécessaire d'avoir une ligne de base affectée ni par les bruits de mesure ni par les biais. Ces sources d'erreurs se trouvent sous plusieurs formes dont notamment les fluctuations en puissance de l'émetteur, les effets associés aux instabilités en direction du faisceau ou encore les effets du chatoiement appelé également "*speckle*".

Dans les conditions expérimentales de la mesure, la voie Lidar IP-DiAL et la voie référence sont deux voies distinctes et indépendantes. Face aux effets d'instabilités en direction du faisceau et au "*speckle*", elles ne subissent pas les mêmes effets apportant un bruit aléatoire lors de la mesure de spectre. Afin de réduire voire de supprimer cette source de bruit, deux configurations du système optique de collection de la voie de référence ont été testées. Si aucune source de bruit n'est présente lors de la mesure, les deux voies IP-DiAL et référence évoluent proportionnellement aux fluctuations en puissance de l'émetteur. Par conséquent, aucun bruit ou biais n'est présent sur la ligne de base.

Les performances des deux configurations de collection de la voie de référence sont évaluées en mesurant les variations de la ligne de base en fonction de la longueur d'onde complémentaire émise ainsi qu'en mesurant l'évolution temporelle de l'amplitude IP-DiAL et référence à longueur d'onde fixée.

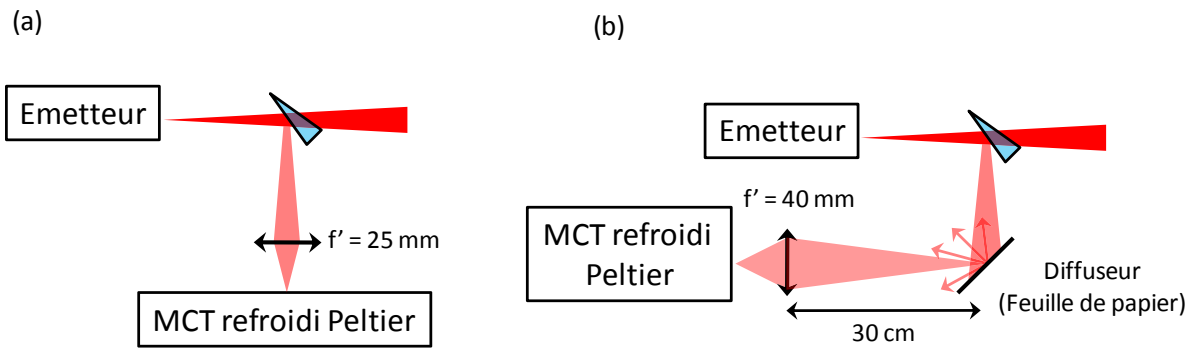


Figure 33 : Schéma des deux configurations de la voie de référence testées : focaliser directement le faisceau complémentaire prélevé sur le détecteur [configuration A] (a) et réaliser une collection du flux sur la voie de référence similaire à la voie IP-DiAL [configuration B] (b)

La première configuration de collection du flux est décrite sur la *Figure 33(a)*. Elle consiste à focaliser le faisceau complémentaire extrait par la lame en CaF_2 prismatique directement sur le détecteur de référence. Dans cette configuration, il est très difficile d'obtenir expérimentalement une évolution temporelle identique des amplitudes normalisées de la voie IP-DiAL et de la voie référence à longueur d'onde fixée. En effet, dans le cas de la configuration A, le faisceau sort plus facilement de la zone sensible du détecteur de la voie de référence. Cette configuration est alors plus sensible aux instabilités en direction du faisceau. Cette observation implique que la voie IP-DiAL et la voie référence présentent des sources de variations indépendante l'une de l'autre. Ainsi l'erreur de transmission mesurée est de l'ordre de 2 à 3 % à longueur d'onde fixée.

La seconde caractérisation effectuée consiste à mesurer les variations du niveau de la ligne de base en fonction de la longueur d'onde émise à température fixée. Les variations du niveau de la ligne de base, observées au cours de cette mesure, sont assez importantes de l'ordre de 8 à 10 % sachant que l'on souhaite mesurer une absorption de l'ordre de 20 à 30 % sur le méthane atmosphérique pour une porté de 30 m. Ces différentes observations nous ont conduits à rechercher un système de collection de flux sur la voie de référence permettant de réduire les effets dus aux instabilités en direction du faisceau.

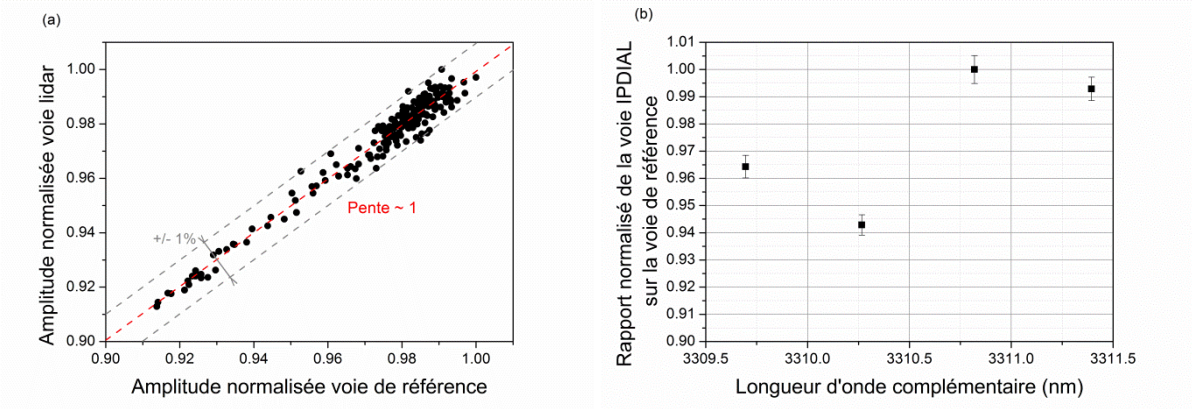


Figure 34 : Evolution temporelle de l'amplitude du signal de la voie IP-DiAL par rapport à la voie de référence sur une longueur d'onde émise sur 30 s (en dehors de toute absorption) (a) et variation du niveau de la ligne de base en fonction de la longueur d'onde complémentaire (b) pour la configuration B.

Ce nouveau système de collection consiste à recréer sur la voie de référence un système de collection similaire au système de la voie IP-DiAL. La *Figure 33(b)* illustre le principe de la configuration B pour la voie de référence. La partie du faisceau complémentaire prélevée par la lame prismatique en CaF_2 est dirigée vers une feuille de papier, notre cible, placée à 45° du système optique de collection. Le flux diffusé par la cible est collecté à l'aide d'une lentille de 40 mm de focale et focalisé sur le détecteur refroidi par effet Peltier. L'évolution temporelle sur 30 s de l'amplitude du signal IP-DiAL normalisé par rapport à celui de référence pour cette seconde configuration est représentée sur la *Figure 34(a)*. Ainsi, les amplitudes normalisées des voies IP-DiAL et référence suivent exactement les mêmes variations au cours du temps. Les fluctuations en intensité de l'émetteur sont corrigées de manière optimale. En effet, à longueur d'onde fixe le rapport des deux voies varie d'environ +/- 1 %.

De plus, la *Figure 34(b)* illustre la variation du niveau de la ligne de base lorsque l'on réalise un accord en longueur d'onde à l'aide du miroir de fond avec la nouvelle configuration de la voie de référence. Cette mesure montre que les variations du niveau de la ligne de base sont réduites par rapport à la configuration précédente de la voie de référence à une valeur maximum de 6 %. A la lumière de ces résultats, le système de collection de flux de la voie de référence choisi est la configuration B. En effet, elle permet de limiter les effets dus au dépointé à chaque changement de longueur d'onde et de très bien corriger les fluctuations en intensité de l'émetteur à chaque longueur d'onde.

Par ailleurs, une mauvaise adaptation du champ de collection par rapport au champ d'émission sur l'une des deux voies (lidar ou référence) induit des variations en intensité du signal différentes sur les deux voies de mesure. La mesure de concentration par la technique IP-DiAL est plus ou moins sensible au bruit dû au dépointé du faisceau. La *Figure 35* illustre l'effet du dépointé sur la mesure de puissance rétrodiffusée. Elle représente le champ de réception en vert et le champ d'émission en rouge projetés sur la cible topographique. Un champ de réception du même ordre de grandeur que le champ d'émission induit une mesure de la transmission très sensible aux instabilités en direction du faisceau (*Figure 35(a)*).

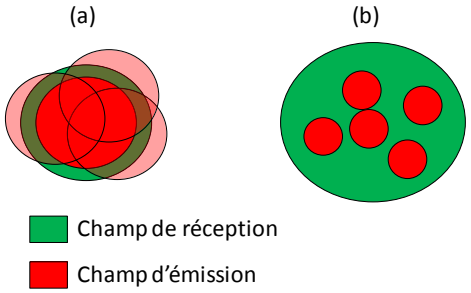


Figure 35 : Effet des instabilités en direction du faisceau complémentaire fonction de la configuration émission / réception

Par contre, si le champ de réception est suffisamment grand afin de contenir le dépointé du faisceau comme illustré sur la *Figure 35(b)*. La mesure de spectre est alors moins sensible au dépointé du faisceau complémentaire. Néanmoins, il est très difficile d'obtenir deux voies signal IP-DiAL et référence parfaitement identique du point de vue de la collection du flux. Les variations en intensité dues au dépointé ou au speckle sont minimisées par le choix du système de collection mais elles sont tout de même présentes car le réglage des deux

systèmes de collection est indépendant. En pratique, nous ferons en sorte de nous placer dans la configuration (b).

B.1.5. Réalisation de spectres multi-espèces et mesures de concentration avec l'émetteur moyenne énergie

Dans ce paragraphe, les mesures de concentration multi-espèces réalisées sur une portée de 30 m à l'aide de l'instrument IP-DiAL décrit dans la section B.1.4 sont présentées. Une première étude de l'évolution de la concentration en méthane et vapeur d'eau atmosphériques a été réalisée sur plusieurs jours montrant la fiabilité des mesures obtenues. Ce travail a fait l'objet d'une publication dans Applied Physics B reportée en Annexe G.

Conditions expérimentales

Dans le cadre des ces mesures IP-DiAL, on se place dans un scenario opérationnel de type monitoring d'un site industriel où, par exemple, le méthane est stocké. Par conséquent, les espèces à adresser sont connues, ici le méthane en présence d'interférents (la vapeur d'eau). De plus, la concentration en méthane est connue sur ce site.

Pour rappel, l'émetteur délivre des impulsions en régime nanoseconde de 5 µJ à une cadence de 2 kHz. La gamme spectrale la plus adaptée permettant de mesurer le méthane atmosphérique est comprise entre 3305 nm et 3320 nm. En effet, les épaisseurs optiques des raies du méthane dans cette gamme spectrale sont adaptées à une mesure IP-DiAL. Les épaisseurs optiques associées au méthane et à la vapeur d'eau atmosphériques sont adaptées à la mesure LIDAR sur des portées de quelques dizaines de mètres dans cette gamme spectrale.

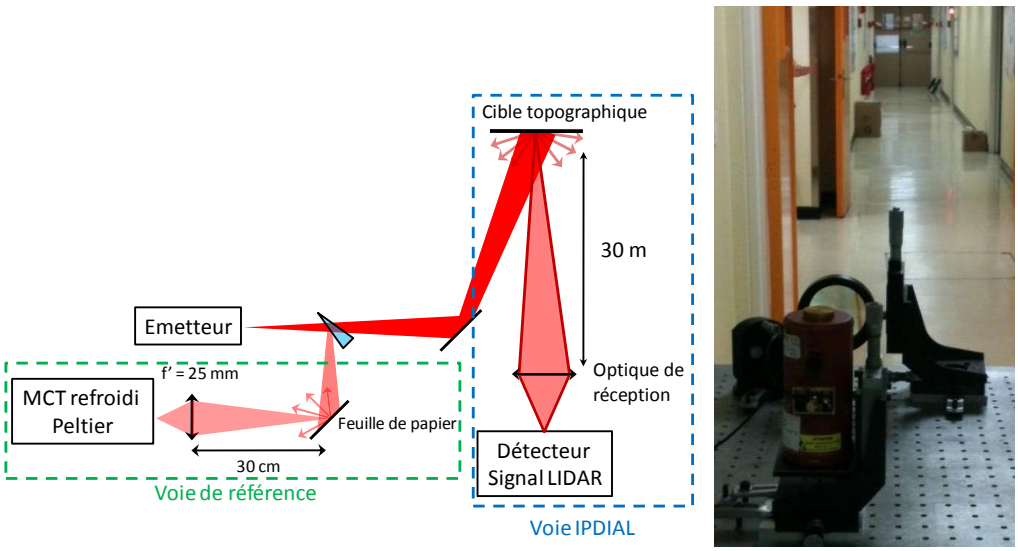


Figure 36 : Schéma simplifié de la mesure de concentration IP-DiAL mettant en avant les systèmes optiques de la voie de référence et de la voie lidar

L'architecture générale de l'instrument IP-DiAL est représentée sur le schéma de la *Figure 36*. La cible de la voie de référence est constituée d'une feuille de papier. Pour la voie LIDAR, plusieurs natures de cibles sont utilisées : une feuille de papier, une cible lambertienne ou la peinture de la porte. Cette cible est placée dans le couloir jouxtant la salle à une portée de

30 m comme le montre la photographie de la *Figure 36*. La portée de la mesure IP-DiAL est limitée à 30 m la longueur totale du couloir. De plus, deux type de détecteurs ont été testés sur la voie LIDAR : (i) le détecteur HgCdTe (MCT) refroidi à l'azote liquide et (ii) le détecteur InSb refroidi à l'azote liquide. L'optique de collection est composée de deux lentilles permettant d'adapter la divergence du système de collection à la divergence de l'émission de manière à collecter l'ensemble du flux émis tout en limitant les effets dus aux instabilités en direction du faisceau complémentaire. Pour la voie de référence, le champ de réception est environ 5 fois plus grand que le champ d'émission sur la cible. Pour la voie de LIDAR, le champ de collection est environ 3 fois plus grand que le champ d'émission sur la cible. Une mesure de la divergence du faisceau en sortie de l'instrument a été réalisée pour s'en assurer.

Séquence de longueurs d'onde émises et temps de mesure

A température fixée, une accordabilité fine en fréquence par saut de modes sur une plage spectrale de 20 nm à 3,3 µm est obtenue par translation longitudinale des deux miroirs M_1 et M_3 montés sur les cales PZT. Grâce à la méthode d'accord en fréquence présentée dans la partie A.3.2, la résolution en fréquence de la mesure de spectre est ajustable et peut être bien plus petite que l'ISL des cavités signal ou complémentaire. Afin d'obtenir un maximum d'informations pour la mesure de la concentration, une séquence de longueurs d'onde la plus complète possible est générée sur l'ensemble de la plage d'accordabilité de l'instrument. Ce jeu de données est utilisé afin de réaliser à postériori une étude des séquences expérimentales réalisant le meilleur compromis temps de mesure et précision de mesure et pour l'étude de la sensibilité. Cette étude est réalisée en collaboration avec A. Dobroc (DOTA/SLS) au cours de sa thèse.

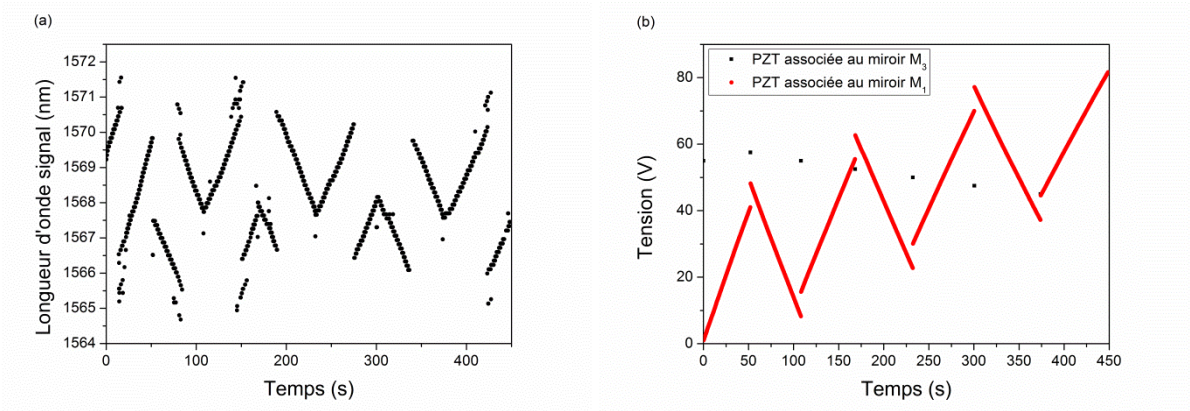


Figure 37 : Séquence de longueurs d'onde générées par translation longitudinale des miroirs de cavités (a) associée aux rampes de tension appliquées aux deux miroirs (b)

Un exemple de séquence de longueurs d'onde générée par la technique d'accord en fréquence par saut de mode (A.3.2) est illustré sur la *Figure 37(a)* avec les rampes de tension appliquées au deux PZT présentées sur la *Figure 37(b)*. Dans l'exemple présenté ci-dessus, six positions du miroir de fond M_3 sont utilisées tandis que le mouvement du miroir d'entrée M_1 est continu par rampe. Un saut en tension sur la consigne de la cale PZT du miroir M_1 est appliqué toutes les 55 s environ. Les paramètres de balayage choisis dans cet exemple permettent de parcourir l'ensemble de la bande de gain de l'émetteur. Des instabilités en fréquence sont observées en bord de bande de gain. Un post-traitement numérique permet de supprimer ces points de mesures aberrants (cf. section B.2.1).

Dans un premier temps, les conditions temporelles d'intégration de la mesure d'un point à une seule longueur d'onde sont résumées dans le *Tableau 10*. La mesure de la longueur d'onde signal est intégrée sur une durée de 50 ms à l'aide du mesureur de longueur d'onde. Pour que les temps d'acquisitions des données soient équivalents, le boxcar intègre et moyenne 100 impulsions. Ceci correspond à un temps d'intégration de 50 ms du signal provenant des voies de référence et LIDAR.

Paramètres	Temps d'acquisition
Temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde + Boucle	50 ms
Nombre d'impulsions moyennées	100
Temps d'intégration du Boxcar	50 ms

Tableau 10 : Caractéristiques temporelles d'acquisition d'un point de mesure à une longueur d'onde fixée associés au mesureur de longueurs d'onde et au Boxcar

Ensuite, pour une valeur de la longueur d'onde en moyenne 20 mesures sont réalisées correspondant un temps d'acquisition de 1 s. Pendant cet enregistrement, les cales PZTs continuent leur mouvement. Ce mouvement provoque un décalage fréquentiel progressif de la longueur d'onde émise de 0,5 pm/s comme illustrer sur la *Figure 38*.

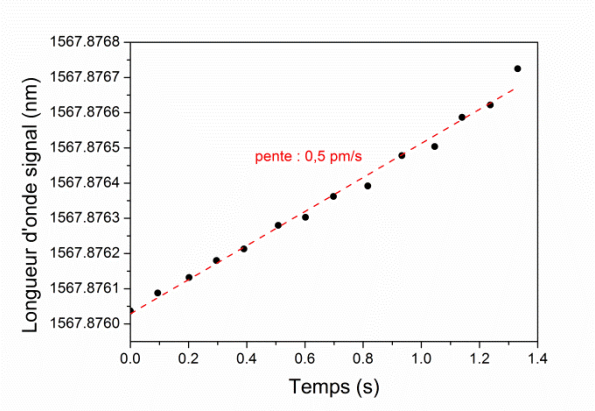


Figure 38 : Mise en évidence du shift en longueur d'onde d'un mode lors du balayage par saut de mode par modulation continue de la cale PZT supportant le miroir M_1.

Suite à l'acquisition des 20 mesures comme le mouvement du miroir M_1 se poursuit, un saut de mode se produit. Pour cette nouvelle fréquence, 20 mesures sont également réalisées. A la fin de la rampe de tension appliquée à la PZT du miroir M_1, le miroir M_3 est décalé en position et une nouvelle rampe de tension est appliquée au miroir M_1 comme représenté sur la *Figure 37(b)*. Cette opération est reproduite jusqu'à obtention de l'enregistrement complet. A postériori, un traitement de la séquence de longueurs d'onde générée est réalisé afin de retirer trois mesures de part et d'autres d'un saut de mode. Comme nous le verrons dans la section B.2.1, retirer les mesures de part et d'autre d'un saut de mode permet de supprimer des raies parasites.

Chacun des points de mesure représentés sur un spectre correspond à valeur moyenne des 14 mesures de longueurs d'onde après traitement. Ainsi chaque valeur de la transmission nécessite un temps d'acquisition de 1 s. Un spectre est constitué d'environ deux cents points de mesures. Ainsi, la mesure complète d'un spectre nécessite environ 7 min dans ces conditions de description d'un spectre complet.

Plusieurs mesures de spectre ont été réalisées pour des conditions expérimentales différentes afin d'évaluer les sources de bruit de la mesure. Cette étude sur le bruit de mesure fait l'objet de la section suivante B.2.1.

Mesures de la concentration en méthane et vapeur d'eau atmosphériques simultanément

L'instrument développé, ainsi que l'acquisition et le traitement du signal présentés dans ce chapitre, ont permis d'effectuer des mesures simultanées de concentration en vapeur d'eau et en méthane régulièrement pendant plusieurs jours. Un exemple de mesure de spectre multi-espèces, présenté sur la *Figure 39*, est réalisé avec cet instrument sur une portée de 30 m, soit 60 m aller-retour. Pour cet exemple, une cible lambertienne fixe est utilisée comme cible spécifique. Sur la voie lidar, le détecteur utilisé pour cette mesure est le détecteur InSb refroidi à l'azote liquide. L'accord en fréquence par saut de mode permet d'obtenir un échantillonnage spectral moyen du spectre de 3,6 GHz soit environ 48 pm correspondant à l'écart moyen entre deux points consécutifs.

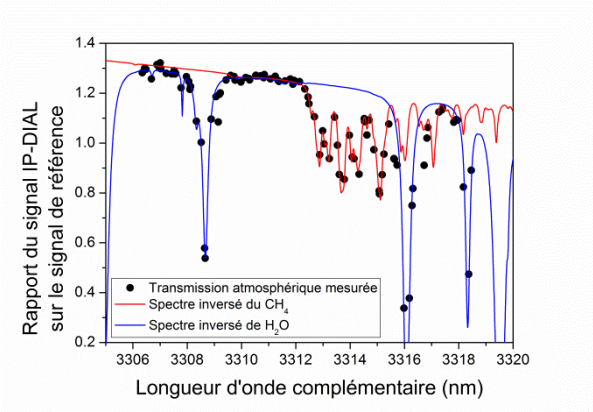


Figure 39 : Exemple de spectre multi-espèces mesuré à l'aide de l'instrument sur une portée de 30 m avec pour cible topographique une feuille de papier (points noirs : la mesure expérimentale ; courbe en trait plein : les spectres inversés du méthane (rouge) et de la vapeur d'eau (bleu))

Ces mesures ont fait l'objet d'une collaboration avec l'équipe Onera/DOTA/SLS : le spectre obtenu est inversé grâce à l'outil d'inversion réalisé par A. Dobroc au cours de sa thèse [Dobroc - 2013], dont le principe est résumé en Annexe A.2. Ce code d'inversion est basé sur la méthode du maximum de vraisemblance. Il permet de minimiser l'écart entre un modèle atmosphérique te le spectre mesuré en maximisant une grandeur appelée la vraisemblance du signal.

Dans le cas de l'exemple présenté ci-dessus, la concentration en méthane est estimée à 1,77 ppm +/- 0,09 ppm soit une incertitude de mesure de +/- 5 %. Cette valeur est cohérente avec la valeur attendue de 1,9 ppm [Bergamaschi - 2013]. Par ailleurs la concentration en vapeur d'eau est estimée à 9,4 ‰ +/- 0,4 ‰, soit une humidité relative de 38 % +/- 4 %. Cette estimation de la concentration en vapeur d'eau est cohérente avec la mesure à l'hygromètre qui donne une humidité relative de 39 % +/- 5 %.

Par ailleurs, ces conditions de mesures permettent de démontrer le potentiel d'une mesure de concentration IP-DiAL multi-longueurs d'onde et multi-espèces. En effet, la vapeur d'eau est généralement considérée comme un interférent perturbant la mesure de concentration

de l'espèce d'intérêt, ici le méthane. Or la technique IP-DiAL multi-longueurs d'onde et multi-espèces permet de sonder simultanément les raies d'absorption de l'interférent, la vapeur d'eau, et de l'espèce d'intérêt, le méthane. Le principal intérêt de notre instrument est qu'en principe, la vapeur d'eau n'est plus considérée comme un interférent mais comme un paramètre à mesurer. Néanmoins, il faut quand même éviter les raies trop fortes de la vapeur d'eau où l'absorption est de 100 %. En effet, cette configuration est source d'erreur lors de l'inversion, notamment si on utilise un code d'inversion basé sur la méthode de minimisation des moindres carrés.

Evolution de la concentration en vapeur d'eau et méthane sur plusieurs jours

Nous présentons en *Figure 40* par exemple, les mesures de concentration multi-espèces sur le méthane et la vapeur d'eau ont été effectuées les 14 et 18 juin 2013 à l'ONERA dans les mêmes conditions expérimentales. Le temps d'acquisition correspondant à une estimation de la concentration en méthane et en vapeur d'eau est d'environ 8 min, le temps d'acquisition d'un spectre complet contenant une centaine de longueurs d'onde émises. Chaque mesure de concentration est estimée à partir d'un spectre complet comme l'exemple donné sur la *Figure 39*. Les spectres obtenus sont inversés grâce à l'outil d'inversion réalisé par A. Dobroc au cours de sa thèse [Dobroc - 2013].

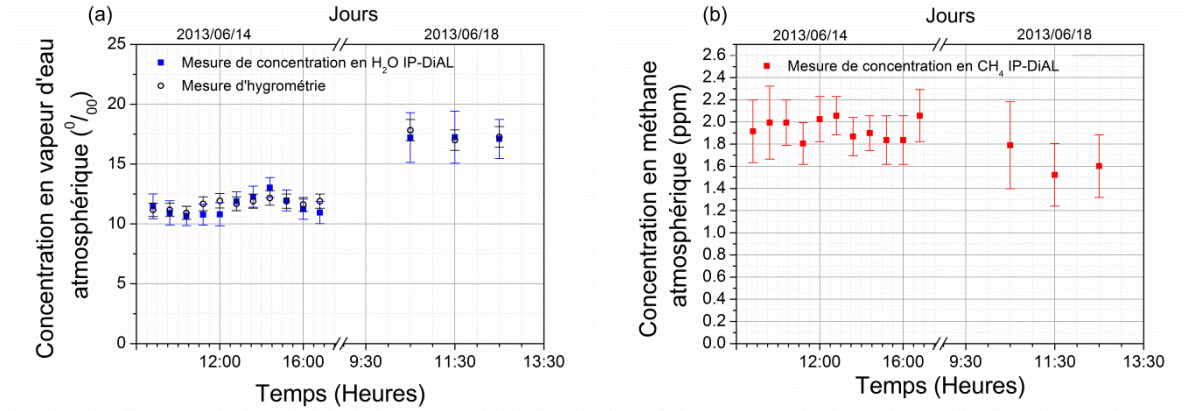


Figure 40 : Evolution de la concentration en vapeur d'eau atmosphérique (a) et en méthane atmosphérique (b) au cours de deux jours (14/06/2014 et 18/06/2014) dans les mêmes conditions expérimentales sur une portée de 30 m à l'intérieur des locaux de l'Onera

Sur la voie Lidar, le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide est utilisé. En ce qui concerne la concentration en vapeur d'eau, elle varie d'un jour à l'autre suivant les conditions météorologiques. Au cours de ces deux jours, l'estimation de la concentration en vapeur d'eau est comparée à une mesure de l'humidité relative réalisée par un hygromètre commercial dont la précision de mesure est de +/- 5 %. Les deux valeurs du contenu en vapeur d'eau de l'atmosphère sont cohérentes (*Figure 40(a)*). Les valeurs moyennes des estimations en concentration de méthane varient entre 1,5 ppm et 2 ppm (*Figure 40(b)*). La moyenne des estimations de la concentration en méthane atmosphérique sur ces deux journées est de 1,87 ppm +/- 0,16 ppm. Cette valeur est cohérente avec la concentration en méthane atmosphérique attendue hors sources [Bergamaschi - 2013].

Au cours du premier jour de mesure, l'erreur d'estimation de la concentration fournie par le code d'inversion basé sur le maximum de vraisemblance est inférieure à 6 % pour le méthane et la vapeur d'eau. Par contre au cours du second jour de mesure, l'erreur

d'estimation de la concentration pour les deux gaz est moins bonne. En effet, le signal de synchronisation des deux boxcars fournissant les amplitudes IP-DiAL et référence n'était pas toujours, dans ce cas, suffisamment intenses pour permettre la synchronisation des boxcars ajoutant un bruit supplémentaire sur la mesure. Cependant, l'erreur reste inférieure à 9 %.

Malgré la forte variation du contenu en vapeur d'eau de l'atmosphère au cours de ces deux jours de mesure, l'estimation de la concentration en méthane n'est pas perturbée. Cela constitue une bonne indication concernant l'un instrument IP-DiAL multi-espèces à large couverture spectrale. Il doit permettre de s'affranchir des biais introduit par les interférents dans l'estimation des concentrations des espèces d'intérêt.

B.1.6. Récapitulatif

Dans cette section, l'instrument a été présenté dans son ensemble en décrivant chaque élément le composant :

- l'émetteur,
- la réception et
- le module de pilotage et d'acquisition des données.

L'émetteur délivrant des impulsions en régime nanoseconde d'environ 5 µJ à 3,3 µm a permis de réaliser des mesures IP-DiAL multi-espèces atmosphériques sur une portée de 30 m. La large accordabilité de l'instrument permet d'adresser le méthane atmosphérique mais également l'interférant majoritaire de l'atmosphère, la vapeur d'eau. Ainsi, malgré de fortes variations du contenu en vapeur d'eau de l'atmosphère, l'estimation de la concentration en méthane reste bonne avec une erreur inférieure à 9 %.

Nous allons maintenant réaliser une analyse critique des performances de cet instrument.

B.2. Analyse critique des performances de l'instrument

B.2.1. Analyse du bruit de mesure

L'analyse des sources de bruit lors de la mesure et leur évaluation peuvent se scinder en deux grandes contributions : (i) d'une part le bruit dû aux erreurs dites « statistiques » et (ii) d'autre part le bruit provoqué par les erreurs systématiques. Les premières correspondent aux erreurs provoquées par la source et/ou le système de détection. Quant aux secondes, elles correspondent aux incertitudes sur les paramètres atmosphériques, les paramètres spectroscopiques et/ou les biais instrumentaux.

La contribution des erreurs systématiques

Dans cette partie consacrée aux sources d'erreurs systématiques, trois points sont abordés :

- l'erreur due à l'incertitude sur la connaissance de la section efficace d'absorption ;
- l'erreur due à l'incertitude sur la longueur d'onde complémentaire émise par la source ;
- l'erreur due à un défaut de la qualité spectrale de la source.

Par ailleurs, il est intéressant dans le cadre d'une mesure intégrée colonne sur cible topographique de tenir compte de la variation de l'albédo de la cible utilisée en fonction de la longueur d'onde. Néanmoins, les mesures ont été réalisées sur une gamme spectrale limitée de 14 nm. De plus, les deux types de cibles utilisés sont des cibles (cible dure ou feuille de papier) dont l'albédo dépend peu de la longueur d'onde incidente.

Section efficace d'absorption

La connaissance de la section efficace d'absorption des différentes raies peut induire des erreurs sur l'estimation de la concentration. En effet, trois sources sont à l'origine d'incertitudes sur la section efficace d'absorption :

- la largeur spectrale de l'émission laser ;
- la dépendance à la pression de la section efficace ;
- la dépendance à la température de la section efficace.

La largeur spectrale de l'émission laser

La section efficace d'absorption réelle lors d'une mesure Lidar est définie par une section efficace équivalente. Cette dernière prend en compte les caractéristiques spectrales de l'émission laser ainsi que les modifications des profils laser et de la raie d'absorption lors de la propagation dans l'atmosphère. Cette section efficace équivalente s'exprime comme le produit de convolution entre la largeur de raie de l'émission laser $g_L(\lambda,r)$ et le profil de la raie d'absorption $\Phi(\lambda - \lambda_{on}, r)$.

$$\bar{\sigma}(r) = \int_{-\infty}^{+\infty} g_L(\lambda,r)\sigma(\lambda,r)d\lambda = S(r)\int_{-\infty}^{+\infty} g_L(\lambda,r)\phi(\lambda-\lambda_{on},r)d\lambda \qquad \text{(Eq. 29)}$$

Le laser est considéré comme monochromatique si le rapport entre la largeur de raie du laser $\Delta\nu_L$ et la largeur de la raie d'absorption $\Delta\nu_{Raie}$ est inférieur à 0,2 [Cahen - 1981]. Trois caractéristiques sont à connaître afin d'évaluer ce rapport :

(1) – Largeur « naturelle » de l'émission laser
(2) – Elargissement par effet Doppler dû à la turbulence de vitesse de l'ordre de 1 à 2 MHz
(3) – Largeur des raies d'absorption à température et pression atmosphériques

Dans le cadre de nos expériences à pression et température atmosphériques en laboratoire, la largeur typique des raies d'absorption pour les gaz considérés (la vapeur d'eau et le méthane) est comprise entre 8 et 12 GHz. Sachant que la largeur de raie naturelle de l'émission OPO est de l'ordre de 100 MHz. Par ailleurs, l'élargissement par effet Doppler est de l'ordre de 1 à 2 MHz. Ce phénomène est totalement négligeable dans des conditions de mesure à pression et température atmosphériques. Ainsi, le rapport de la largeur de raie laser et la largeur de la raie d'absorption vaut au maximum 0,01.
L'influence de la largeur de raie de l'émission OPO sur la section efficace d'absorption des raies du méthane et de la vapeur d'eau est négligeable. En effet, la section efficace d'absorption des raies les plus fines s'élargit d'environ 0,01 %. Il n'est pas nécessaire de réaliser la déconvolution du spectre par la largeur de raie laser.

La dépendance à la pression de la section efficace d'absorption

La position du sommet de la raie ainsi que sa largeur dépendent de la pression. En effet, le profil de la raie est de plus en plus étroit en fonction de l'altitude c'est-à-dire pour une pression atmosphérique de plus en plus faible. Ainsi, une incertitude sur la valeur de cette pression conduit à une incertitude sur la valeur de la section efficace d'absorption de l'espèce concernée à une longueur d'onde fixée donc à une erreur sur sa concentration. Dans ce chapitre, la pression atmosphérique est considérée comme connue et ne varie pas le long de la ligne de visée.

La dépendance en température de la section efficace d'absorption

La valeur de la section efficace d'absorption dépend de la température et de la pression. Ainsi cette valeur varie avec l'altitude. Cependant, dans le cadre de nos expériences en laboratoire avec visée horizontale sur une portée de 30 m, la température du couloir est mesurée en parallèle des mesures de spectre. Ainsi, cette dernière est considérée constante sur l'ensemble du parcours du faisceau ainsi que la pression. La section efficace d'absorption est alors supposée constante et connue.

Finalement, dans le cadre des expériences réalisées précédemment, les sections efficaces d'absorption des diverses raies présentes dans le spectre sont supposées connues et constantes. L'élargissement de la raie d'absorption par la largeur spectrale de l'émission OPO est négligeable. Ainsi, l'inversion de spectre utilise uniquement les valeurs fournies par la base de données HITRAN.

Positionnement spectral

De manière générale, un faible décalage entre la longueur d'onde mesurée et celle réellement émise au niveau d'une raie d'absorption implique des erreurs sur l'estimation de la concentration. Il est important de connaître de manière absolue la longueur d'onde utile pour la mesure de spectre.

L'instrument développé au cours de cette thèse permet de réaliser des mesures de concentration sur le méthane et la vapeur d'eau atmosphérique autour de 3,3 µm. Néanmoins, lors de ces expériences, la longueur d'onde complémentaire n'est pas mesurée

directement. En effet, elle est calculée à partir de l'équation de conservation de l'énergie où l'on suppose que la longueur de pompe est connue et constante au cours du temps. Or cette hypothèse n'est pas vraie sur le temps caractéristique de mesure de la fréquence émise au mesureur de longueur d'onde. De plus, la longueur d'onde signal est mesurée avec une précision de 50 MHz à l'aide du mesureur de longueur d'onde WS6.

Et la valeur de la fréquence signal émise sur un mode varie pendant l'enregistrement du fait de la méthode d'accord en fréquence par effet Vernier par balayage continu de la cale PZT du miroir M_1. En fait, comme illustré sur la *Figure 41(a)* à cause de la numérisation de la consigne appliquée à la cale PZT, la fréquence signal mesurée varie par palier sur environ 20 MHz pic à pic sur une durée d'une seconde correspondant à la durée d'enregistrement d'un point de mesure lors de l'acquisition d'un spectre. De ce fait, l'incertitude de mesure sur la longueur d'onde signal est d'environ 60 MHz.

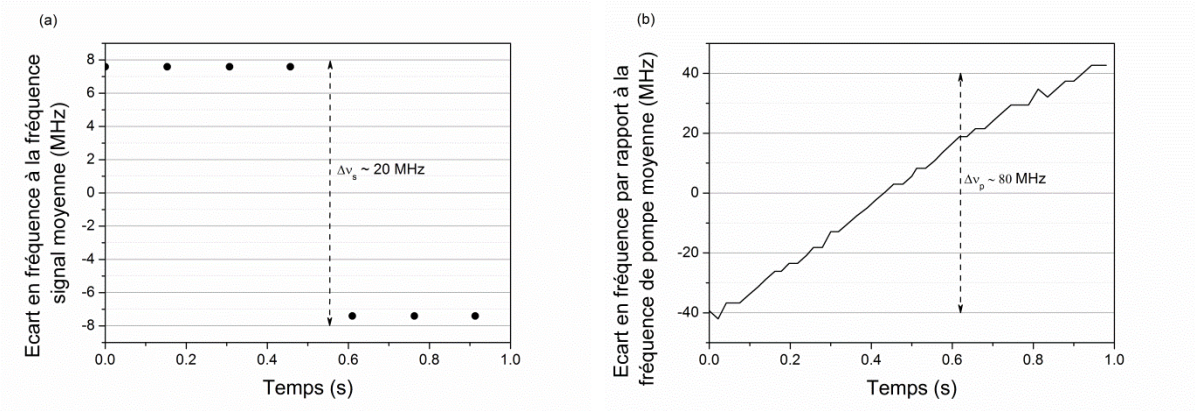


Figure 41 : Evolution temporelle de l'écart en fréquence signal (a) et pompe (b) par rapport à leur valeur moyenne respectives sur un mode pendant 1s

Si on regarde l'évolution de la fréquence de pompe sur un temps caractéristique d'une seconde correspond au temps d'acquisition d'un point, une dérive en fréquence de la pompe est observée sur environ 80 MHz pic à pic comme le montre la *Figure 41(b)*. Par ailleurs, le laser de pompe présente des variations lentes en fréquence, sur plusieurs secondes voire sur plusieurs minutes, qui ont été caractérisées dans la section B.1. Ces variations sont de l'ordre de 150 MHz crête à crête.

En considérant les variations très lentes comme limitantes, alors l'incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire d'un point de mesure du spectre est de l'ordre de 160 MHz. Cette incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire conduit à une incertitude sur la valeur de la transmission notamment sur les flancs de raie du méthane ou de la vapeur d'eau comme illustré sur la *Figure 42*.

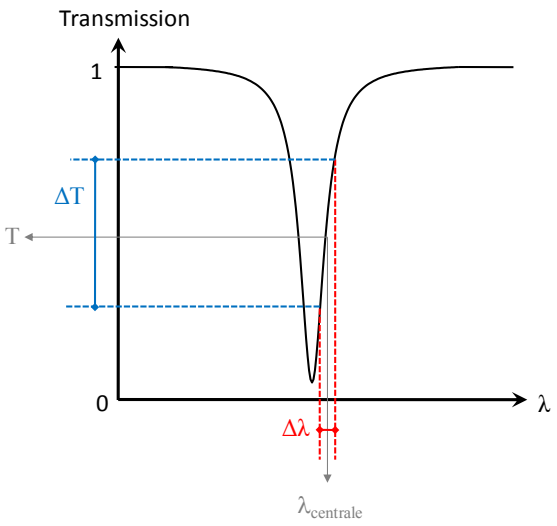


Figure 42 : Schéma illustrant l'effet d'une incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire émise $\Delta\lambda$ sur la transmission mesurée sur un flanc de raie.

Le *Tableau 11* montre l'évaluation de cette dernière pour les flancs de raie du méthane et de la vapeur d'eau à concentration atmosphérique. L'incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire peut induire des erreurs importantes sur la transmission mesurée.

	Longueur d'onde	ΔT/T
Vapeur d'eau	3314,07 nm	+/- 12 %
Méthane	3316,22 nm	+/- 4 %

Tableau 11 : Evaluation de l'incertitude sur la transmission en flanc de raie de chaque espèce dans les conditions expérimentales pour une incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire de 160 MHz

Une première solution permettant de diminuer cette source d'erreur, consiste à mesurer simultanément au cours de l'acquisition du spectre la longueur d'onde pompe et la longueur d'onde signal. La seconde consiste à mesurer directement la longueur d'onde complémentaire avec une meilleure précision que celle actuelle de 160 MHz par exemple à l'aide d'une cellule de gaz de référence.

L'effet d'une impureté spectrale sur la mesure

Abordons la notion de pureté spectrale et ses conséquences sur une mesure de spectre. Le taux de suppression des modes secondaires représente la portion d'énergie émise dans un mode secondaire par rapport à l'énergie émise dans le mode principal d'émission. Il est important de conserver une bonne qualité spectrale de l'émetteur car comme nous allons le voir l'apparition d'un mode secondaire parasite conduit à une erreur d'estimation de la section efficace d'absorption de la raie sondée. Par conséquent, l'estimation sur la concentration est faussée.

Par exemple, dans le cas où le spectre d'émission est composé de deux modes : un mode principale dans la raie d'absorption et un mode secondaire en dehors de la raie dont l'énergie correspond à 5 % de l'énergie du mode principal. Cette configuration maximise l'erreur sur la mesure de transmission. La transmission à la longueur d'onde correspondant au mode principal s'exprime de la manière suivante :

$$T_{on} \propto \frac{E_{on}}{E_{on} + E_{off}} \; avec \; E_{off} = 0{,}05 E_{on} \qquad (Eq.\ 30)$$

La présence d'un mode secondaire en dehors de la raie d'absorption induit une sous-estimation de la section efficace d'absorption de la raie adressée d'un facteur 1/1,05 comme illustré sur la *Figure 43*. De la même manière ce second mode spectral a une influence sur le niveau de la ligne de base. Cet effet est visible sur le schéma de la *Figure 43* également où la transmission de la ligne de base est plus faible qu'en réalité. Cette variation du niveau de la ligne de base conduit également à une sous-estimation de la section efficace d'absorption de la raie considérée.

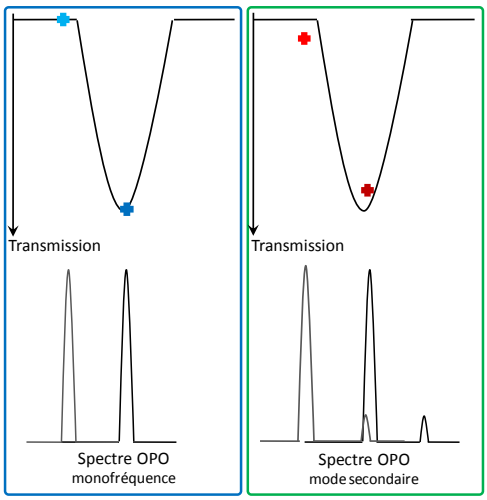


Figure 43 : Schéma de principe de l'effet sur la transmission de la présence d'un second mode dans le spectre d'émission de l'émetteur sur la section efficace (a) et sur la ligne de base (b).

La *Figure 44* montre l'effet d'une impureté spectrale lors d'une mesure de spectre dans nos conditions expérimentales où l'on superpose la mesure expérimentale brute sans filtrage des sauts de mode représentée par les carrés noirs et la mesure expérimentale post-traitée avec filtrage de trois points de part et d'autre des sauts de mode représentée par les ronds vert. Le mouvement des cales piézoélectriques étant continu, il peut conduire à l'apparition d'un second mode lorsque les deux peignes signal et complémentaire ne sont pas exactement en coïncidence.

Dans ce cas, sans filtrage, certains points de mesures sont moyennés avec les contributions provenant de deux modes différentes au moment du saut de modes. Des raies d'absorptions "fantômes" apparaissent alors sur le spectre mesuré. Sur la *Figure 44*, elles sont entourées par un rectangle gris. Le post traitement de la mesure, en supprimant les points de mesure de part et d'autre des sauts de mode permet de filtrer ces raies parasites et de les faire disparaître de la mesure de spectre.

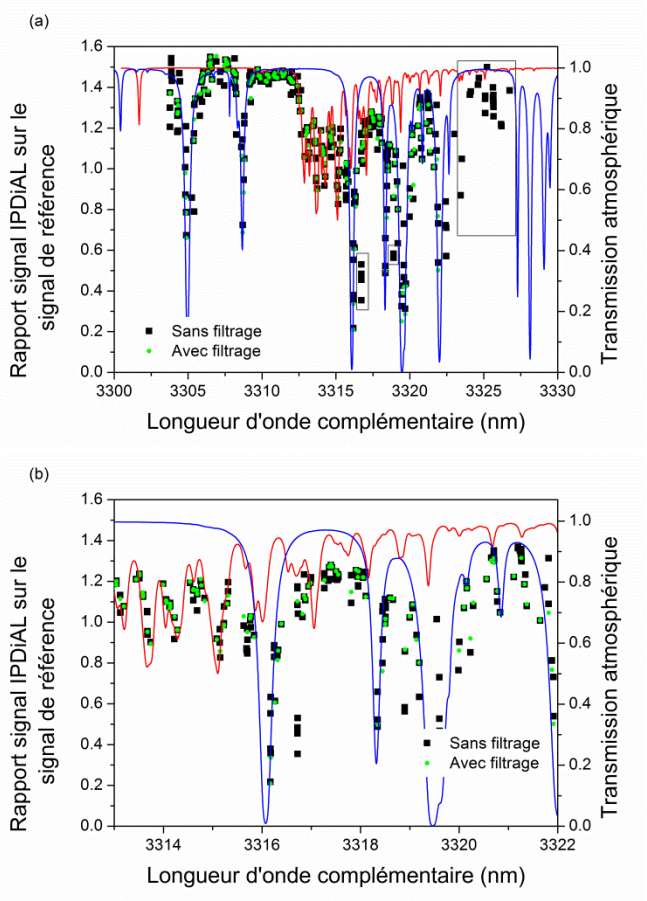


Figure 44 : Mise en évidence de l'effet d'une impureté spectrale de l'émetteur sur la mesure de spectre complet (a) et zoom entre 3313 et 3322 nm (b) (points : la mesure expérimentale sans filtrage des sauts de mode (noir) et avec filtrage de 3 points de part et d'autre du saut de mode (vert) ; courbe en trait plein : les spectres inversés du méthane (rouge) et de la vapeur d'eau (bleu))

Par ailleurs, les modes émis en bord de bande de gain restent gênants pour la mesure de spectre malgré la sélection par le gain d'amplification. Par conséquent, des raies parasites peuvent apparaître sur les bords de la mesure de spectre. Les points situés en bord de la bande de gain sont également supprimés. Pour le réseau émettant à 3,3 µm où la bande de gain ne permet pas un filtrage spectral suffisant sur les bords de celle-ci [cf. section B.1.3], ce filtrage est nécessaire. Pour s'affranchir de ces limitations qui apparaissent avec un cristal de PPLN en type 0 pour des longueurs d'onde inférieures à 3,3 µm, il s'agit de développer des systèmes basés avec des cristaux de PPLN en type II [Raybaut - 2009]. Nous serons amenés à utiliser ce dernier type de cristal dans le chapitre C où nous nous intéresserons à la plage spectrale autour de 2 µm.

Contributions au bruit dus aux erreurs statistiques

Rappelons que le bruit statistique provient de deux sources d'erreur : (1) les fluctuations des signaux rétrodiffusés et (2) la précision et le bruit des appareils de mesure.

Bruit de détection

Cette étude du bruit de détection vise à caractériser le bruit propre à chaque instrument composant la chaîne de détection (les détecteurs, le boxcar et la carte d'acquisition) dans la mesure du possible et enfin de caractériser le bruit et le rapport signal sur bruit [RSB] de l'ensemble de la chaîne de détection. Le détecteur de la voie lidar est un détecteur refroidi par azote liquide. Par conséquent, toutes les séquences de caractérisation de bruit ont été faites le même jour pour conserver un niveau de bruit à peu près constant.

Bruit des détecteurs

Cette analyse du bruit de mesure commence par la caractérisation des détecteurs utilisés sur les voies de référence et lidar et notamment une évaluation du RSB de chacune des deux voies en dehors de toute absorption. La *Figure 31* montre les signaux typiques mesurés par les détecteurs de référence et lidar après rétrodiffusion par les cibles. En dehors de toute absorption, l'impulsion rétrodiffusée par la cible et collectée par le système de détection n'est pas noyée dans le bruit intrinsèque des deux détecteurs.

Ainsi, le bruit intrinsèque des deux détecteurs sans flux incident a été caractérisé. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un oscilloscope standard dont la bande passante est de 1 GHz pour une résistance de charge de 50 Ω. L'échantillonnage temporel typique lors d'une mesure de spectre vaut 50 ms. Ainsi, la mesure de bruit est réalisée avec un échantillonnage temporel de 40 ms afin d'obtenir des conditions expérimentales similaires. Comme le montre la *Figure 45*, les deux détecteurs ont des niveaux de bruit différents. En effet, le détecteur de la voie lidar (MCT refroidi à l'azote liquide) présente un bruit 3,5 fois plus élevé que le détecteur de la voie référence (VIGO refroidi par effet Peltier).

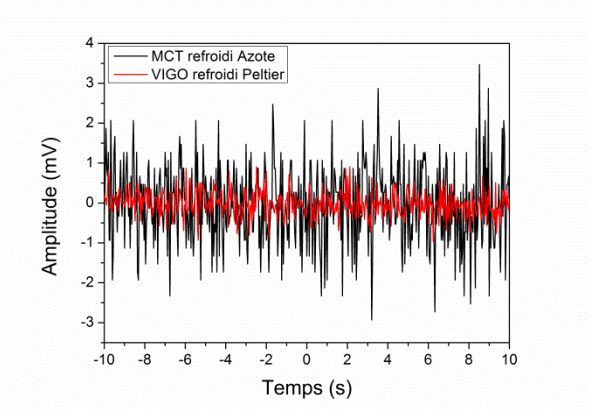


Figure 45 : Mesure du bruit intrinsèque des deux détecteurs à l'oscilloscope pour une résistance de charge de 50 Ω et un échantillonnage de 40 ms.

Cette mesure est comparée aux données du constructeur par l'intermédiaire du NEP. Or, la bande passante du détecteur limite la bande passante de mesure. Dans ces conditions, le NEP expérimental associé aux deux détecteurs vaut 4,7 nW/Hz$^{1/2}$ pour le détecteur VIGO refroidi par effet Peltier et 23 pW/Hz$^{1/2}$ pour le détecteur MCT refroidi par azote liquide avec un amplificateur x 100. En comparant aux données constructeur, on remarque que le bruit

du détecteur MCT refroidi à l'azote liquide mesuré est huit fois plus important. La différence peut s'expliquer par le fait que la donnée constructeur est fournie à 13 µm correspondant au pic de sensibilité du détecteur. Par contre, pour le détecteur VIGO refroidi par effet Peltier, il y a un facteur 1 000 entre le bruit mesuré et la donnée constructeur. Cette différence de performance semble provenir de l'alimentation du détecteur très bruitée.

Bruit de la carte d'acquisition

Au niveau de la carte d'acquisition, les voies Lidar et Référence sont en pratique toujours les mêmes. Le bruit associé à chacune de ces deux voies a été caractérisé. Pour cela, chacune des deux voies utilisées pour réaliser la mesure est reliée à la masse. L'évolution temporelle du signal en sortie de la carte d'acquisition est représentée sur la *Figure 46*. Le niveau de bruit sur les deux voies de mesure est identique avec un d'écart-type de +/- 0,1 mV. De plus la résolution expérimentale de la carte d'acquisition utilisée est égale à 0,3 mV.

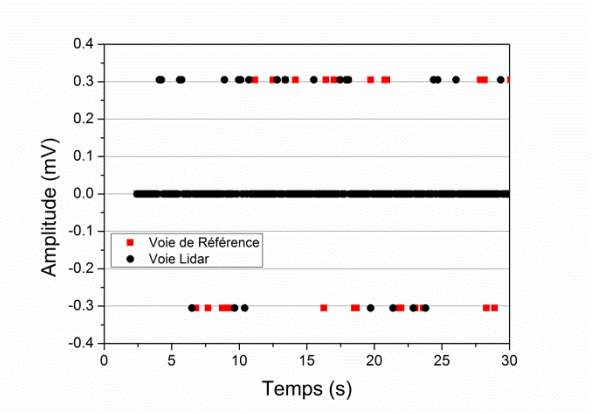


Figure 46 : Bruit de la carte d'acquisition sur la voie de Référence et la voie Lidar pour un temps d'acquisition de 150 ms

Par ailleurs, une étude du niveau de bruit en fonction du temps d'acquisition a été faite. Aucunes variations du niveau de bruit n'ont été observées. Le bruit intrinsèque de la carte d'acquisition est très faible et ne dépend pas du temps d'acquisition. Par la suite, le bruit de la carte d'acquisition est considéré comme négligeable.

Bruit du système {boxcar + carte d'acquisition}

L'entrée au niveau du boxcar est reliée à la masse pour nos deux voies référence et lidar. Le bruit de ce système a été étudié en fonction de deux paramètres pour chacune des deux voies de mesure :

- le temps d'intégration de la mesure c'est-à-dire le nombre d'impulsions moyennées par le boxcar et ;
- la valeur du gain du boxcar.

Pour 100 coups moyennés, nous nous sommes placés dans les conditions de mesures expérimentales de spectre. En effet, l'écart-type du bruit est mesuré pendant 10 s correspondant à un enregistrement contenant 250 points environ. Par ailleurs, les mesures de bruit pour des conditions de moyennage différentes ont été effectuées avec le même nombre de points pour chaque temps d'intégration, à savoir 250 points.

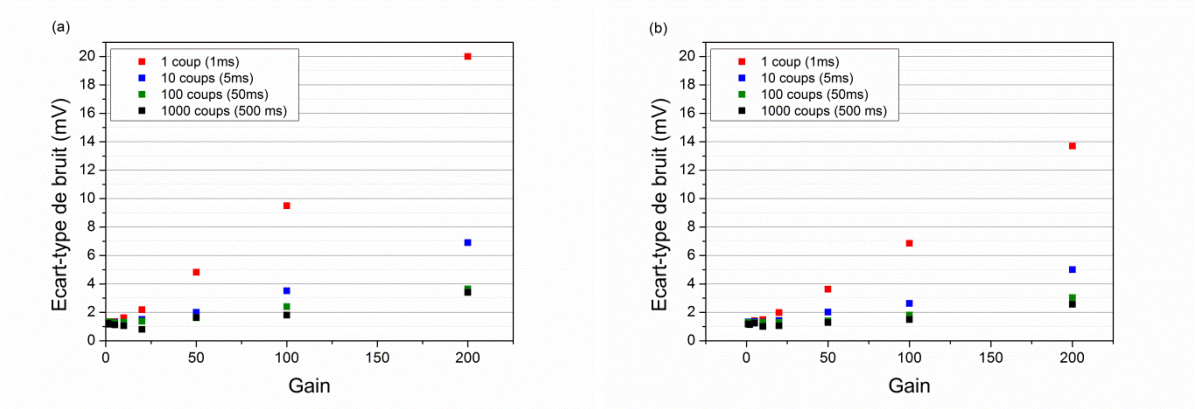


Figure 47 : Bruit du système {boxcar + carte d'acquisition} branché à la masse sur la voie référence (a) et la voie lidar (b) en fonction de la valeur du gain du Boxcar et du temps d'intégration

La *Figure 47* montre l'évolution de l'écart-type du bruit pour nos deux voies de mesure en fonction du gain du boxcar et du temps d'intégration. Une première remarque concerne le niveau de bruit sur chacune des deux voies. En effet, le niveau de bruit sur la voie référence (*Figure 47(a)*) est plus important que le niveau de bruit sur la voie lidar (*Figure 47(b)*). Cette différence provient du fait que deux blocs différents sont utilisés pour acquérir les signaux de la voie de référence et de la voie lidar. Ensuite, le comportement des deux voies de mesure vis à vis du temps d'intégration et de la valeur du gain du boxcar est identique. En effet, plus le temps d'intégration est important plus le niveau de bruit est faible jusqu'à atteindre sa valeur minimale. Cette valeur limite dépend du gain du boxcar et elle est de l'ordre de 1,1 mV pour les faibles valeurs de gain. Par ailleurs, l'effet du moyennage est visible pour les fortes valeurs de gain. En effet, plus le nombre d'impulsions moyennées est grand plus le niveau de bruit est faible. De plus, notons que plus la valeur du gain du boxcar est grande plus le bruit est important sur chacune des deux voies.

Rapport Signal sur Bruit de la chaîne de détection dans son ensemble

Le bruit du système {boxcar + carte d'acquisition} et le bruit du détecteur seul ont été caractérisés mais le niveau de bruit de la chaine de détection complète avec le détecteur, le boxcar et la carte d'acquisition n'est pas connu et fait l'objet de ce paragraphe. La chaîne de détection complète est caractérisée dans un premier temps sans flux incident au niveau des détecteurs. De la même manière que précédemment le bruit de la chaine de détection est étudié en fonction (1) du temps d'intégration de la mesure et (2) de la valeur du gain du boxcar. Cette caractérisation du niveau de bruit sur les deux voies d'acquisition de la chaine de détection est présentée sur la *Figure 48*. Les mêmes évolutions du niveau de bruit sont observées sur les deux voies de mesure en fonction de la valeur du gain du boxcar et le temps d'intégration que précédemment.

De la même manière que pour la caractérisation du boxcar, les mesures de bruit ont été effectuées avec le même nombre de points pour chaque temps d'intégration, à savoir 250 points. Ainsi, nous sommes dans les conditions expérimentales de mesure des spectres d'absorption pour 100 coups moyennés.

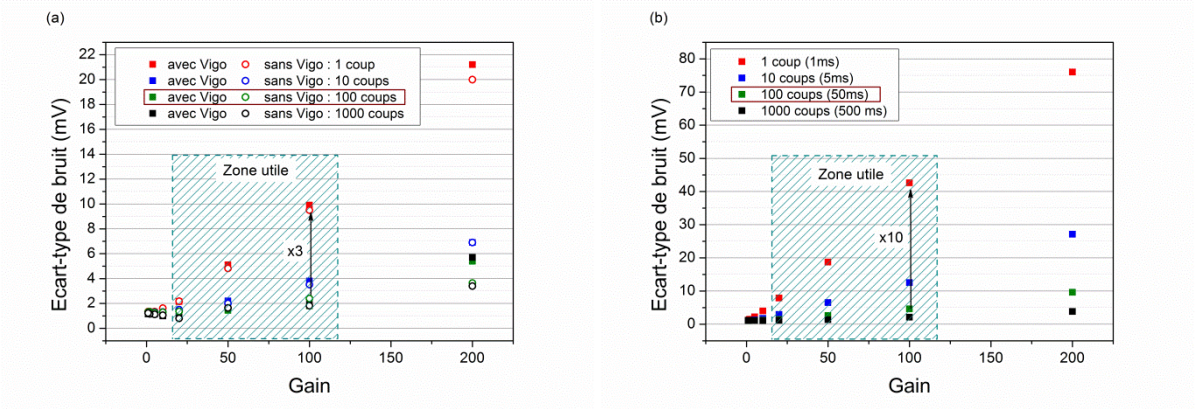


Figure 48 : Bruit de la chaine de détection {Détecteur + Boxcar + Carte d'acquisition} sans flux incident sur la voie référence (a) et la voie lidar [MCT + amplificateur x100] (b) en fonction de la valeur du gain du Boxcar et du temps d'intégration

La *Figure 48(a)* compare les niveaux de bruit de la voie de référence avec et sans la présence du détecteur. L'ensemble de ces mesures montre que le niveau de bruit sur la voie de référence est limité par le bruit du boxcar excepté pour un gain du boxcar de 200. Cependant le gain utilisé sur la voie de référence est compris entre 20 et 100 en pratique. La *Figure 48(b)* montre quant à elle l'évolution du niveau de bruit pour la voie lidar avec le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide avec un amplificateur x 100. Le niveau de bruit de la voie lidar n'est pas limité par le bruit du boxcar contrairement à la voie de référence. En effet, les deux détecteurs n'ayant pas le même niveau de bruit intrinsèque l'effet du boxcar diffère d'une voie de mesure à l'autre. En effet, le bruit du détecteur (MCT refroidi à l'azote liquide) de la voie lidar est amplifié par le boxcar. Par ailleurs, sur la voie lidar le niveau de bruit se réduit proportionnellement à la racine carrée du nombre d'impulsions moyennées par le boxcar pour une valeur de gain fixée.

Lors de nos expériences de mesure lidar, les écarts-types de bruit sur la voie référence et la voie lidar sont respectivement de +/- 1,6 mV et +/- 2,5 mV sans flux incident sur les détecteurs. Or les niveaux de signaux typiques lors d'une mesure de spectre sont d'environ 1,6 V sur la voie de référence et d'environ 2 V sur la voie lidar sans absorption sur une portée de 30 m. Ceci donne une dynamique de 1000 environ permettant une bonne sensibilité de mesure sans absorption. Les résultats de cette évaluation du RSB sur une portée de 30 m sont fournis dans le *Tableau 12*. Le boxcar améliore le RSB de l'ensemble de la chaine de détection sur les deux voies de mesure référence et lidar.

	RSB	
	En dehors d'une raie d'absorption	Sur la raie d'absorption
Voie de référence (VIGO)	1000 +/- 50	1000 +/- 50
Voie lidar (MCT)	800 +/- 40	100 +/- 10

Tableau 12 : Valeur du rapport signal sur bruit en sortie de la chaîne de détection pour le détecteur de référence (VIGO refroidi par effet Peltier) et le détecteur lidar (MCT refroidi à l'azote) avec et sans absorption sur une portée de 30 m

Pour conclure sur cette première partie, les bruits liés à la chaine de détection présents sur chacune des deux voies sont différents. Le bruit de détection présent sur la voie de référence est limité par le bruit du boxcar. En effet, le boxcar introduit un bruit supérieur au bruit du détecteur de référence. Tandis que le bruit de détection présent sur la voie lidar est limité quant à lui par le bruit du détecteur. Néanmoins la fonction de moyennage du boxcar

permet d'améliorer le rapport signal sur bruit de la chaine de détection sur les deux voies de mesure référence et LIDAR d'un facteur 3 et 10 respectivement en dehors de toute absorption.

Bruit sur la ligne de base

Dans les paragraphes précédents, nous nous sommes intéressés aux différentes sources de bruit de détection introduites sur les voies référence et lidar séparément sans flux incident. Cependant, la grandeur intéressante lors de la mesure de spectre est l'absorption c'est-à-dire, d'un point de vue expérimental, le rapport entre le niveau de signal de la voie lidar et le niveau de signal de la voie référence lorsque ces deux voies sont éclairées. Dans ce paragraphe, le but est d'évaluer le bruit présent sur la ligne de base en présence de flux. Comme illustré sur la *Figure 49(a)*, à longueur d'onde fixée et en dehors de toute absorption, le rapport des signaux entre les voies de varie en fonction du temps. Ce rapport varie de +/- 2 % en écart-type sur une durée d'environ 1 s, durée typique d'acquisition utile d'un point de mesure (cf. B.1.5). Par ailleurs, les fluctuations en puissance de l'émetteur étant de +/- 3 % sur 1 s également, la voie de référence permet effectivement de les atténuer.

De plus, la valeur de la ligne de base varie en fonction de la longueur d'onde de mesure comme le montre la *Figure 49(b)*. Elle varie d'environ 1,8 % en fonction de la longueur d'onde émise. Cette variation de la ligne de base peut être due à plusieurs phénomènes : (i) un dépointé affectant différemment les voies référence et lidar, (ii) la présence d'un fabry-perot parasite sur une ou les deux voies de mesure (optiques non traitées ...) et/ou (iii) une valeur de transmission des optiques dépendante de la voie de mesure. Ces phénomènes sont très difficiles à mettre en évidence et à caractériser. En effet, en principe il faudrait supprimer les gaz présents sur le trajet optique du faisceau pour réaliser une calibration de cette ligne de base. Si cette variation est systématique, elle peut être corrigée par un post-traitement. En effet, l'algorithme d'inversion (cf. Annexe A) intègre une détermination de la ligne de base par un polynôme d'ordre 2.

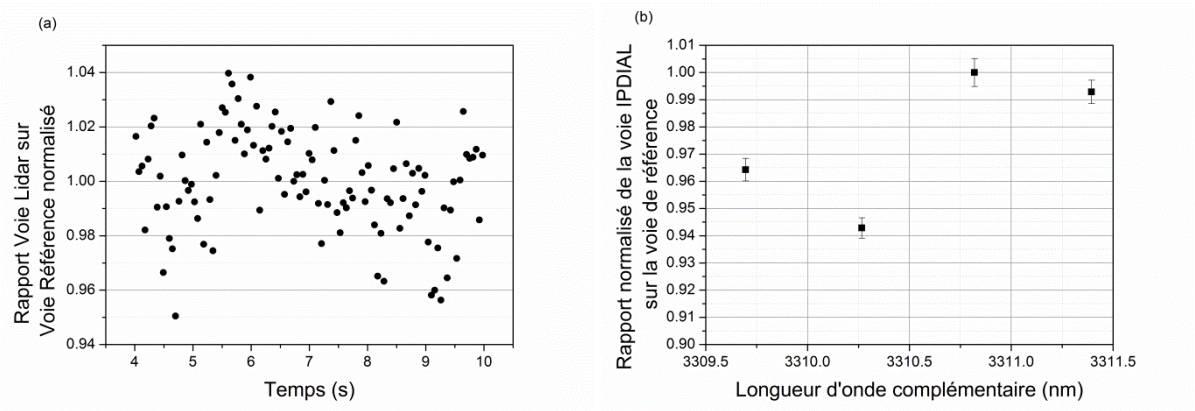


Figure 49 : Evolution temporelle du rapport de signal sur la voie Lidar sur la voie de référence à longueur d'onde fixée sans absorption (a) et évolution du rapport de signal sur la voie Lidar sur la voie de référence sur la ligne de base en fonction de la longueur d'onde (b)

A présent que l'erreur sur la ligne de base a été évaluée, il est possible d'évaluer l'erreur en concentration dans le cas d'une mesure DiAL à deux longueurs d'onde classique à partir de l'équation *(Eq. **19**)*. L'intérêt de ce calcul est d'estimer les performances de notre instrument dans une configuration de mesure en IP-DiAL classique. En effet, cette erreur est réduite

dans le cas d'une mesure multi-longueurs d'onde. L'erreur relative en concentration dans le cas d'une mesure DiAL classique s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{1}{2\sigma NL}\sqrt{2\left(\frac{\Delta T}{T}\right)_{on}^{2} + 2\left(\frac{\Delta T}{T}\right)_{off}^{2}} \qquad \textit{(Eq. 31)}$$

avec N la concentration en espèce, σ la section efficace d'absorption, L la portée et $\Delta T/T$ l'erreur relative en transmission pour la longueur d'onde « ON » et la longueur d'onde « OFF ».

La première longueur d'onde est située dans la ligne de base et la seconde est située sur le flanc d'une raie d'absorption soit de méthane soit de la vapeur d'eau. A partir, des différentes mesures de spectre réalisées au cours de ces expériences Lidar les variations expérimentales de transmission sont typiquement de l'ordre de +/- 20 % pour la vapeur d'eau et de +/- 4 % pour le méthane. Connaissant l'erreur en transmission sur la ligne de base, on en déduit l'erreur en concentration d'une mesure DIAL sur une portée de 30 m dont les résultats sont reportés dans le *Tableau 13*.

	ΔT/T	σ (molécules^{-1}·cm^{2})	Δn/n
Vapeur d'eau	+/- 20 %	5e-22	+/- 0,9 %
Méthane	+/- 4 %	5e-19	+/- 15 %

Tableau 13 : Bilan des calculs d'erreur de concentration en mesure DiAL classique pour une longueur d'onde ON située sur un flanc de raie pour le méthane et la vapeur d'eau et en considérant une erreur sur la ligne de base de +/- 2 %

L'erreur relative en concentration obtenue pour le méthane est de l'ordre de +/- 15 % et pour la vapeur d'eau de l'ordre de +/- 1 %. On remarque que pour les raies d'absorption dont la section efficace d'absorption est faible comme la vapeur d'eau dans la gamme spectrale étudiée, la mesure tolère des fluctuations importantes en transmission de l'ordre de +/- 20 % en conservant une bonne estimation de la concentration. Au contraire, si la section efficace d'absorption de la raie adressée est grande alors la mesure ne tolère que de faibles variations en transmission. En effet, des variations en transmission de seulement +/- 4 % implique une incertitude d'estimation de la concentration de l'ordre de +/- 15 %.

Bruit de speckle

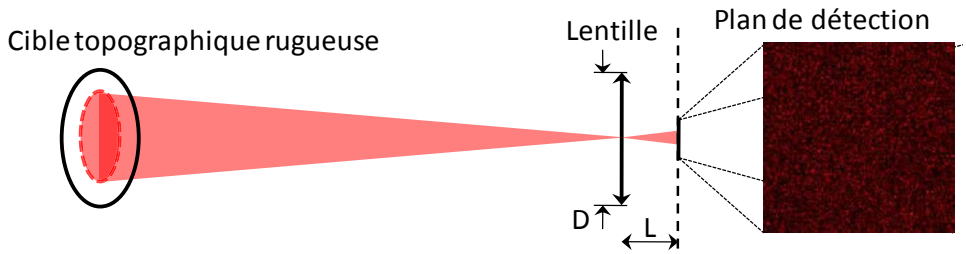


Figure 50 : Schéma de principe du phénomène de speckle

La figure de speckle caractérise la rugosité d'une surface lorsqu'elle est éclairée par une lumière cohérente. Toutes les surfaces, au niveau microscopique, présentent des défauts ou des irrégularités de surface dont l'amplitude est supérieure ou égale à la longueur d'onde utilisée pour les illuminer. Quand ce genre de surface est illuminé par un faisceau cohérent alors l'onde diffusée subit un déphasage aléatoire dû à la différence de chemin optique aléatoire liée à la micro-rugosité de la surface. Alors l'image de cette surface éclairée par un

faisceau cohérent est constituée de grains de speckle comme illustré sur la *Figure 50*. La taille typique des grains de la figure de speckle ε dans le plan de détection dépend de trois paramètres et s'exprime de la manière suivante :

$$\varepsilon = \frac{\lambda L}{D} \qquad \text{(Eq. 32)}$$

avec λ la longueur d'onde d'illumination de la surface, L la distance entre le plan de détection et la pupille d'entrée du système de collection et D le diamètre de la pupille d'entrée du système de collection.

Ainsi au niveau de la voie de mesure LIDAR, la taille typique d'un grain de speckle est de l'ordre de 0,1 mm sur le plan de détection. Sur la voie de référence, la taille typique du grain de speckle dans le plan de détection vaut 0,4 µm. Sur nos deux voies de mesure le grain de speckle est au moins 10 fois plus petit que la taille des détecteurs utilisés.

Dans l'optique d'évaluer la portion de bruit dû au phénomène de speckle pour notre instrument, l'estimation de la concentration en méthane et en vapeur d'eau a été réalisée avec la cible lambertienne dans deux configurations :

- une mesure de spectre avec la cible lambertienne fixe et
- une mesure de spectre avec la cible lambertienne en rotation.

Le mouvement de rotation imposé à la cible lambertienne permet de moyenner temporellement plusieurs figures de speckle dans le plan de détection. La rotation de la cible lambertienne supprime la cohérence spatiale de la lumière laser [Lowenthal - 1971]. Ainsi, le phénomène de speckle est réduit. Les spectres obtenus sont inversés grâce à l'outil d'inversion réalisé par A. Dobroc au cours de sa thèse [Dobroc - 2013]. Les résultats de ces mesures de spectre sont résumés dans le *Tableau 14*.

Cible spécifique	Concentration en méthane	Concentration en vapeur d'eau
Cible lambertienne fixe	1,90 +/- 0,19 ppm	9467 +/- 820 ppm
Cible lambertienne en rotation	1,81 +/- 0,17 ppm	9473 +/- 652 ppm

Tableau 14 : Comparaison des précisions des mesures de concentration avec et sans rotation de la cible lambertienne à une portée de 30 m

Ces résultats montrent que l'erreur sur l'estimation de la concentration s'améliore légèrement pour les deux espèces lorsque la cible lambertienne est en rotation. En effet, l'erreur d'estimation de la concentration en méthane passe de 10 % à 9,4 % et l'erreur sur l'estimation de la concentration en vapeur passe de 8,7 % à 6,8 %. Ces expériences menées sur cible lambertienne avec ou sans rotation de celle-ci montrent que l'erreur d'estimation de la concentration en espèces due à un phénomène de speckle est négligeable dans notre configuration expérimentale. En effet, d'une part le grain de speckle est bien plus petit que la zone sensible des détecteurs utilisés, et d'autre part chaque point de mesure composant un spectre résulte de l'intégration temporelle sur plusieurs centaines de tirs. La figure de speckle présente sur les deux plans de détection est alors suffisamment moyennée temporellement permettant de limiter les effets spatiaux. En effet, une somme de différentes figures de speckle décorrélées entre elles est réalisée conduisant vers un éclairement quasi-homogène des plans de détection.

Bruit dû aux instabilités en direction du faisceau

Les champs d'émission et de réception de la voie de référence sont représentés sur la *Figure 51(a)* en fonction de la distance entre la cible et l'optique de réception. Le modèle réduit de la voie de référence, utilisant une lentille de 25 mm de focale, permet d'obtenir un champ de réception environ 5 fois plus grand que le champ d'émission à 25 cm (distance de la cible). Une mesure de la divergence du faisceau en sortie de l'instrument a été faite dans la section B.1.3. La divergence du faisceau complémentaire est de l'ordre de 2,4 mrad. Si les deux champs sont bien placés l'un par rapport à l'autre, alors le dépointé du faisceau complémentaire est contenu dans le champ de réception de la voie de référence. Par ailleurs, la divergence du champ de réception de la voie IP-DiAL est difficile à déterminer. En effet, le système de collection de la voie Lidar étant composé de deux lentilles, il est nécessaire de calculer la focale équivalente de ce système. Pour les deux détecteurs utilisés sur la voie IP-DiAL, le champ de réception a été maximisé. En effet, représenté sur la *Figure 51(b)*, le champ de réception de la voie IP-DiAL est environ 3 fois plus grand que le champ d'émission à 30 m (distance de la cible). De même que pour la voie de référence, a priori pour un système bien réglé avec les deux champs centrés l'un par rapport à l'autre, la voie IP-DiAL est insensible aux instabilités en direction du faisceau.

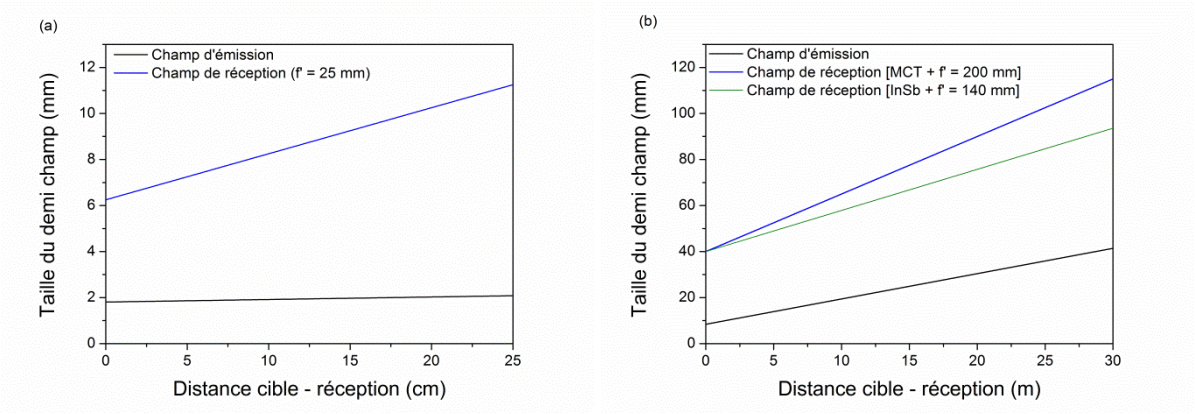


Figure 51 : Configuration émission réception permettant de minimiser les effets du dépointé pour la voie de référence (a) et la voie IP-DiAL (b).

Le bruit de mesure dû aux instabilités en direction du faisceau devient gênant pour la mesure de concentration pour deux conditions de recouvrement des champs d'émission et des champs de réception : (1) un champ d'émission de même dimension que le champ de réception et (2) un mauvais réglage initial de la superposition des deux champs. Le dépointé pour cet émetteur de l'ordre de 0,05 mrad a été évalué dans la section B.1.3. Ainsi, le dépointé du faisceau n'est pas une source de bruit lors de la mesure sauf si les champs émission et réception ne sont pas bien positionnés l'un par rapport à l'autre sur chaque voie.

Néanmoins, occasionnellement il est possible d'observer des variations d'intensité sur les voies référence et lidar non corrélées. Par exemple dans les pires cas, la *Figure 52* montre l'évolution temporelle simultanée du niveau de signal sur la voie de référence et la voie lidar à une longueur d'onde fixée. Comme le montre la *Figure 52(a)*, montre deux régimes de fonctionnement sont identifiables sur le long terme. En effet, le niveau de signal de la voie lidar varie ponctuellement de plus de 10 % en moins d'une seconde. Un premier régime de fonctionnement noté (1) où les deux voies de mesures varient de la même manière aux fluctuations en puissance de l'émetteur symbolisé par le carré en pointillés noirs. Et un second régime de fonctionnement noté (2) symbolisé par le carré en pointillés bleus où les

deux voies se séparent alors que les conditions de mesure n'ont pas changées à priori. Ces différences d'évolution des niveaux de signaux de chacune des deux voies peuvent s'expliquer par des effets thermiques différents sur chaque voie de mesure, des effets de turbulence sur la voie lidar bien que l'instrument soit à l'intérieur d'un bâtiment. Ce phénomène conduit à des variations brusques du niveau de la ligne de base sur un temps caractéristique court.

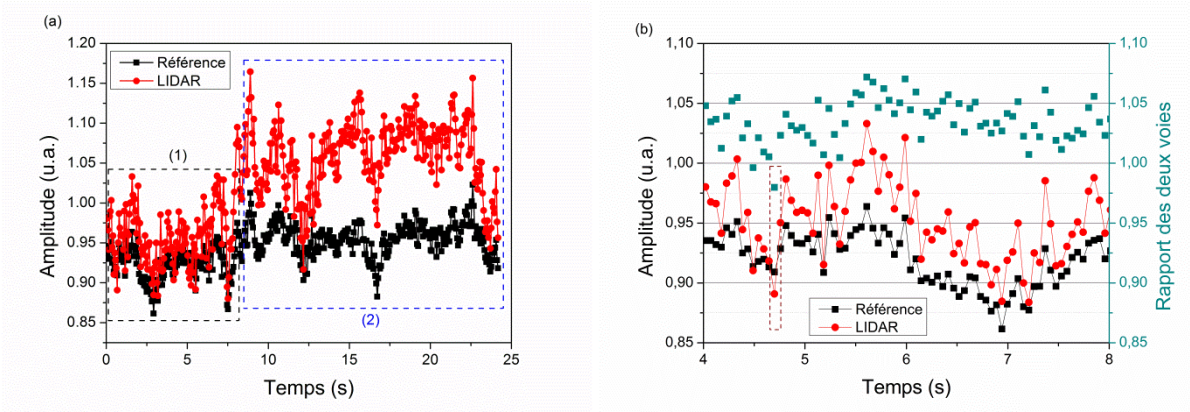


Figure 52 : Evolution temporelle du niveau de signal sur les voies de référence et lidar sur le long terme (a) et sur le court terme (b)

Par ailleurs, cette évolution temporelle sur le court terme représentée sur la *Figure 52(b)*, montre que les variations du niveau de signal de la voie lidar ne coïncident pas toujours aux variations observées sur la voie référence. Ces décrochages symbolisés sur la figure par des rectangles en pointillés marron. Ces mesures montrent que la réponse des deux détecteurs diffère l'un de l'autre de manière ponctuelle. Il a été montré que même en utilisant deux détecteurs identiques pour les voies référence et lidar, la correction apportée par la voie de référence n'est pas parfaite [Sigrist - 2008]. Par conséquent, les fluctuations en puissance de l'émetteur ne sont pas totalement corrigées voire même un bruit supplémentaire est introduit lors de la mesure. C'est pour cette raison que l'erreur sur la ligne de base reste importante en dépit de la normalisation par la voie de référence. Comme nous ne connaissons pas l'origine de cette source de bruit, nous n'avons pas de solution à proposer permettant de réduire voire de supprimer cette source d'erreur sur la ligne de base.

Bilan

Pour conclure sur cette étude des sources de bruit de mesure, le *Tableau 15* résume l'ensemble des résultats décrits dans les paragraphes sur les sources de bruits statistiques et et les sources de bruits systématiques. Plusieurs sources de d'erreurs sont négligeables par rapport aux autres sources. Les bruits limitants lors d'une mesure de spectre à l'aide de notre instrument sont :

- l'incertitude sur le positionnement spectral de la longueur d'onde complémentaire et ;
- le bruit de détection (incluant le bruit sur la ligne de base).

Ces deux sources d'erreurs peuvent être réduites.

Sources d'erreur	Types	Conséquences	Incertitudes sur T
Section efficace	Systématique	Négligeable	< 0,01 %
Positionnement spectral	Systématique	L'incertitude de mesure propre au mesureur de longueur d'onde et le déplacement de la cale PZT pendant l'acquisition des données conduisant à une incertitude totale de mesure sur l'onde signal de 60 MHz .	1 à 5 %
	Statistique	Les variations de longueur d'onde du laser de pompe au cours de la mesure de spectre apportant une incertitude maximale de 150 MHz.	4 à 12 %
Effet des modes secondaires	Systématique	Il n'est pas limitant car un post-traitement est réalisé afin de supprimer les points aberrants	< 0,1 %
Détection	Statistique	C'est un bruit aléatoire qui se traduit par un bruit sur la ligne de base et sur la transmission d'une manière générale.	> 1,8 %
Speckle	Statistique	Négligeable	< 0,01 %
Dépointé	Statistique	Négligeable	< 0,01 %

Tableau 15 : Tableau récapitulatif des sources d'erreur de la mesure IP-DiAL

La limitation majeure lors de ces expériences reste l'incertitude sur la fréquence complémentaire émise connu avec une précision de 160 MHz. Il est possible de réduire cette source d'incertitude de deux manières :

- en mesurant simultanément au cours de l'acquisition du spectre la longueur d'onde pompe et la longueur d'onde signal ;
- en mesurant directement la longueur d'onde complémentaire avec une bonne précision par exemple à l'aide d'une cellule de gaz de référence.

Pour le bruit de détection, il est possible de le diminuer en intégrant plus longtemps chacune des deux voies.

B.2.2. Analyse de l'apport de séquences multi-longueur d'ondes dans les mesures

Analyse de la séquence optimale parmi les séquences de longueurs d'onde consécutives générées

De manière générale, de nombreux points (une centaine) composent les spectres mesurés lors des expériences IP-DiAL réalisées au cours des sections précédentes. Dans cette section du manuscrit, la mesure de spectre de la section B.1.5 est utilisée afin d'évaluer la séquence expérimentale de fréquence successives maximisant la précision d'estimation des concentrations de méthane et de la vapeur d'eau. Pour cette mesure expérimentale, le spectre contient N = 93 longueurs d'onde. Ces travaux d'analyse ont été réalisés en collaboration avec N. Cezard et A. Dobroc de l'Onera/DOTA/SLS, dans le cadre de la thèse de ce dernier, et s'appuie sur le code d'inversion développée par A. Dobroc présenté en Annexe A.2 et basé sur la méthode du maximum de vraisemblance. Il permet de minimiser l'écart entre un modèle atmosphérique te le spectre mesuré en maximisant une grandeur appelée la vraisemblance du signal. Aujourd'hui, ce code est maintenue et utilisé par N. Cézard du DOTA/SLS. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans Applied Physics B [Barrientos Barria - 2014]. La démarche suivie pour cette étude est la suivante :

- le traitement de la ligne de base c'est-à-dire à partir de la mesure expérimentale réalisée dans la section B.1.5, la ligne de base est déterminée pour cette mesure ;
- la mise en évidence du compromis précision et temps de mesure ;
- la détermination de la séquence expérimentale optimisant ce compromis ;
- la comparaison du temps d'intégration par longueur d'onde par rapport au nombre de longueurs d'onde émises.

Ainsi, deux paramètres d'optimisation sont à notre disposition le nombre de longueurs d'onde émises N et le temps d'intégration de chaque longueur d'onde t'.

La séquence de longueurs d'onde émises au cours de la mesure est représentée sur la *Figure 53(a)*. Les longueurs d'onde composant cette séquence sont placées dans l'ordre croissant pour chaque rampe de tension appliquée au miroir M_1. Sur la *Figure 53 (b)* représente le spectre mesuré dans la section B.1.5 dont la ligne de base a été estimée et soustraite. Ce spectre est composé de 93 points de mesure correspondant à un temps de mesure total T de 7,3 minutes. Lors de l'inversion de spectre réalisée précédemment, cinq coefficients sont estimés :

- la concentration en méthane ;
- la concentration en vapeur d'eau ;
- trois coefficients déterminant la ligne de base ;

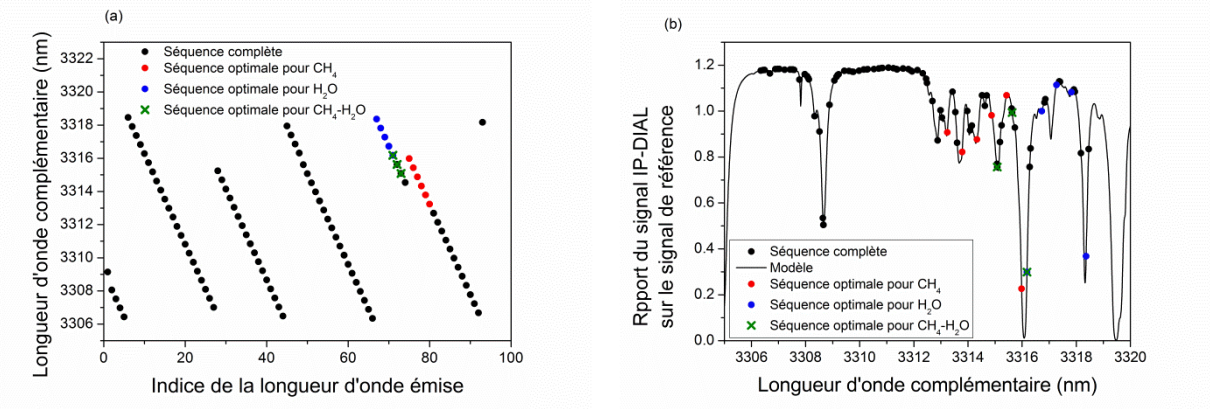


Figure 53 : Séquence complète de longueur d'onde émises par l'émetteur (points noirs) (a) ; Mesure du spectre d'absorption de la vapeur d'eau et du méthane atmosphérique à l'aide de l'instrument IP-DiAL sur une portée de 30 m (points noirs) (b) ; la séquence minimisant la RRE pour le méthane composée de 6 longueurs d'onde (points rouges) ; la séquence minimisant la RRE pour la vapeur d'eau composée de 5 longueurs d'onde (points bleus) ; la séquence minimisant la RRE pour le mélange méthane-vapeur d'eau composée de 3 longueurs d'onde (croix verts). La ligne de base a été pré-déterminée pour ce calcul.

La détermination de la ligne de base avant traitement associé à une mesure expérimentale

Dans un premier temps, la ligne de base est déterminée à partir de la mesure réalisée en section B.1.5. Le spectre d'absorption de cette même mesure est alors corrigé par la ligne de base permettant de réduire le nombre d'inconnues à estimer à trois : la concentration en méthane, la concentration en vapeur d'eau et un coefficient d'offset de ligne de base. En diminuant le nombre de paramètres à estimer, l'estimation de la concentration en vapeur d'eau et en méthane est plus précise. Afin d'estimer le coefficient de la ligne de base, les concentrations en méthane et en vapeur d'eau, il est nécessaire d'avoir des séquences contenant au minimum trois longueurs d'onde.

Le calcul de l'erreur relative (RRE pour Random Relative Error)

La RRE de chaque paramètre estimé est égale à deux fois les bornes de Cramer-Rao[1] [Harry – 1997 ; Dobroc - 2013]. La fonction de la RRE est une fonction bi-dimensionnelle dépendant du nombre de longueurs d'onde successive composant la séquence N et de l'indice de départ k de la séquence contenant les N longueurs d'onde. Les paramètres de la séquence de longueurs d'onde successives [N, k] minimisant la RRE de chaque espèce gazeuse sont identifiés grâce au code d'inversion développé par A. Dobroc au cours de sa thèse.

Le compromis entre précision et temps de mesure

Ensuite, théoriquement si le nombre de longueurs d'onde présente dans le spectre mesuré se réduit alors la précision de l'estimation en concentration diminue. En effet, le spectre mesuré contient moins d'informations. Cette évolution de l'erreur relative (RRE) sur l'estimation de la concentration en fonction du temps de mesure (ou du nombre de longueurs d'onde N) est représentée sur la *Figure 54*. Cinq hypothèses sont utilisées pour construire cette figure :

[1] Les bornes de Cramer-Rao représentent pour chaque paramètre estimé la variance minimale atteignable par un estimateur non biaisé.

- le temps d'intégration pour chaque longueur d'onde émise est égale au temps expérimental t' = 4,7 s ;
- les séquences de longueurs d'onde choisies sont composées de longueurs d'onde émises consécutivement ;
- les séquences de longueurs d'onde choisies minimisent l'erreur d'estimation de la concentration pour chaque point représenté ;
- la ligne de base est connue ;
- le bruit de mesure est considéré constitué d'un bruit blanc gaussien et d'un bruit en fréquence.

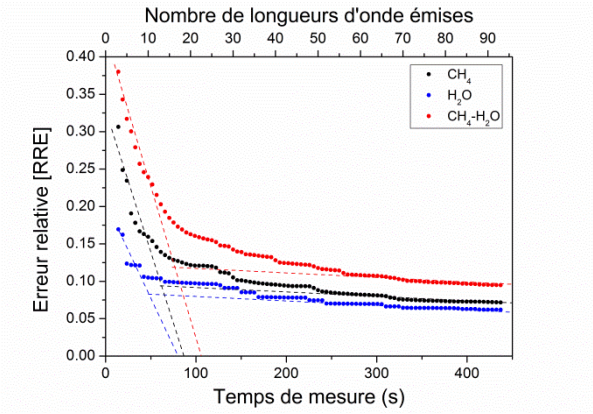


Figure 54 : Evolution de la valeur de l'erreur relative pour le méthane (points rouges), la vapeur d'eau (points bleus) et le mélange méthane - vapeur d'eau (points noirs) en fonction du temps de mesure. Chaque donnée correspond à la séquence de longueurs d'onde minimisant la RRE (Relative Random Error).

Chaque point représenté sur ce graphique correspond à la séquence "optimale" composé de N longueurs d'onde parmi les 93 longueurs d'onde émises expérimentalement en *Figure 53* permettant de minimiser la valeur du RRE. Ainsi, si le nombre de longueurs d'onde présentes dans le spectre augmente, la RRE quant à elle diminue fortement pour des séquences contenant peu de longueurs d'onde et plus modérément ensuite pour des séquences dont le nombre de longueur d'onde N est supérieur à 20. En effet, on observe l'apparition d'un palier pour des séquences constituées de plus de 20 longueurs d'onde émises successivement. L'erreur relative RRE tend vers une valeur constante car les longueurs d'onde émises supplémentaires n'apportent pas suffisamment d'informations dans nos conditions de mesure. Ce calcul réalisé à partir des données expérimentales (*Figure 54*) met en évidence ce compromis existant entre précision de l'estimation des concentrations en méthane et vapeur d'eau et temps de mesure.

Nombre de longueurs d'onde	10	23	47	93
Temps de mesure	47 s	108 s	220 s	440 s
RRE pour le CH_4	15,9 %	12,1 %	9,3 %	7,2 %
RRE pour H_2O	10,5 %	9,6 %	7,8 %	6,2 %
RRE pour CH_4 - H_2O	23,9 %	15,7 %	12,2 %	9,5 %

Tableau 16 : Calcul des RREs de la séquence expérimentale pour le CH_4, H_2O et CH_4 - H_2O pour un temps de mesure de 440 s, 220 s et 108 s.

Par exemple, si le temps de mesure est divisé par quatre (c'est-à-dire que le nombre de longueurs d'onde est également divisé par quatre), le RRE de chacune des configurations évaluées augmente au plus de 5 % comme illustré dans le *Tableau 16*. Le gain en précision de mesure évolue faiblement avec le temps de mesure.

La détermination de la séquence expérimentale optimisant ce compromis

La seconde étude consiste à étudier théoriquement l'influence sur la précision de mesure du temps d'acquisition d'un point de mesure, c'est-à-dire augmenter le temps passé sur une longueur d'onde, en fonction du nombre de longueurs d'onde présentes dans le spectre tout en conservant un temps de mesure total T fixé à 440 s ici. Cinq hypothèses sont utilisées pour déterminer ces séquences :

- le temps de mesure total T est fixe et correspond au temps de mesure expérimental valant 7,3 minutes soit 93 longueurs d'onde intégrées pendant 4,7 s ;
- les séquences de longueurs d'onde testées sont composées de longueurs d'onde émises consécutivement ;
- l'estimation de la concentration en méthane et en vapeur d'eau pour chaque configuration de calcul ;
- la ligne de base est supposée connue ce qui permet d'améliorer la précision d'estimation des concentrations en méthane et vapeur d'eau ;
- le bruit de mesure est un bruit blanc gaussien permettant d'écrire une équivalence entre le temps de mesure et le nombre de longueurs d'onde présentes dans le spectre.

L'hypothèse de bruit blanc permet de supposer que chaque longueur d'onde est mesurée sur un temps t' = T/N où T est le temps total de mesure et N le nombre total de longueur d'onde composant le spectre. Dans ces conditions, l'écart-type de bruit de chaque longueur d'onde σ_N s'exprime de la manière suivante :

$$\sigma_N = \sigma_{93}\sqrt{\frac{N}{93}} \qquad \textit{(Eq. 33)}$$

avec σ_{93} l'écart-type de bruit considéré pour l'inversion de la séquence complète.

Sous cette hypothèse, l'écart type de bruit est inversement proportionnel à la durée d'acquisition d'un point de mesure. De plus, pour ce calcul le bruit de fréquence n'est plus pris en compte.

Suite à ce calcul, les séquences de longueurs d'onde successives minimisant la RRE du méthane, de la vapeur d'eau et du mélange méthane - vapeur d'eau pour un temps de mesure T constant de 440 s sont représentées sur la *Figure 53*. La meilleure séquence de longueurs d'onde successives pour le méthane est constituée de six longueurs d'onde située entre 3312 nm et 3314 nm tandis que la meilleure séquence pour la vapeur d'eau contient cinq longueurs d'onde situées entre 3316 nm et 3318 nm. A présent, la question qui se pose concerne la séquence de longueurs d'onde minimisant l'erreur pour le mélange méthane et vapeur d'eau atmosphérique. Pour ce faire, nous cherchons par le calcul la séquence minimisant la somme des erreurs quadratiques du méthane et de la vapeur d'eau. Dans ces conditions, la séquence "optimale" est composée de trois longueurs d'onde émises pendant le temps de mesure T et situées entre 3315 nm et 3316 nm. Pour l'ensemble de ces

séquences, aucun point de mesure ne se situe dans la ligne de base. Trois raisons expliquent cette singularité :

- ✓ sélectionner uniquement des séquences de longueurs d'onde émises successivement ;
- ✓ estimer systématiquement la concentration en méthane et en vapeur d'eau ;
- ✓ la pré-détermination de la ligne de base.

Comme la ligne de base a été pré-déterminée, un point supplémentaire sur la ligne de base n'est pas nécessaire. Il est cependant nécessaire d'avoir au minimum trois points de mesure pour réaliser l'inversion. Ainsi, pour les séquences de longueurs d'onde émises successivement sélectionnées, aucun point de mesure n'est présent sur la ligne de base.

Le calcul précédent a permis de sélectionner trois séquences permettant de minimiser la RRE du méthane, de la vapeur d'eau et du mélange méthane - vapeur d'eau. Ces trois séquences sont utilisées afin de déterminer la RRE de chaque configuration à partir de nos données expérimentales dont le temps de mesure expérimental effectif t' de chaque longueur d'onde est fixe et vaut environ 4,7 s. Les résultats de cette étude sont résumés dans le *Tableau 17*. La meilleure séquence sélectionnée pour le méthane n'apporte pas assez d'informations sur le contenu en vapeur d'eau. En effet, une seule longueur d'onde se situe dans une raie d'absorption de la vapeur d'eau. Par ailleurs, la séquence de longueurs d'onde sélectionnée afin d'optimiser la mesure sur la vapeur d'eau permet une mesure du contenu en méthane mais elle est très imprécise.

	Séquence complète	Séquence optimale pour CH_4	Séquence optimale pour H_2O	Séquence optimale pour CH_4 - H_2O
Nombre de longueurs d'onde	93	6	5	3
RRE pour le CH_4	7,2 %	19 %	99 %	33 %
RRE pour H_2O	6,2 %	1730 %	12 %	19 %
RRE pour CH_4 - H_2O	9,5 %	1730 %	99 %	38 %
Temps de mesure	440 s	30 s	25 s	13 s

Tableau 17: Calcul des RREs des séquences optimales pour le CH_4, H_2O et CH_4 - H_2O à partir de la séquence de mesure expérimentale. Le temps de mesure par longueur d'onde est fixé à 2 s.

Pour chacune des trois configurations testées et en utilisant la meilleure séquence sélectionnée par le calcul, il est possible de réaliser la mesure de concentration en espèces 15 à 30 fois plus rapidement en détériorant la précision expérimentale de l'estimation d'un facteur compris entre 2 et 4. Par exemple, la meilleure séquence sélectionnée pour la vapeur d'eau permettrait de réaliser une mesure 15 fois plus rapidement en conservant une précision expérimentale de l'estimation de 12 %, soit une détérioration de la précision d'un facteur 2. Ces résultats sont à prendre avec précaution car les hypothèses faites notamment sur le bruit de mesure sont très fortes.

Comparaison expérience et calcul

L'évolution de l'erreur relative associée à chaque configuration en fonction du temps de mesure est étudiée pour deux cas. Cette étude s'appuie sur les séquences déterminées précédemment et sur nos données expérimentales. Les résultats associés sont illustrés pour chaque configuration sur la

Figure 55. Le premier est représenté sur chaque graphique par la ligne solide. Cette dernière montre l'évolution de la limite théorique de la RRE en fonction du temps de mesure. Ce calcul est réalisé pour un nombre de longueurs d'onde fixé correspondant à la séquence optimale déterminée précédemment pour chaque configuration. Le temps de mesure augmente car le temps d'intégration par longueur d'onde augmente. Le second cas est représenté quant à lui par les points de couleur (rouge : méthane ; bleu : la vapeur d'eau ; vert : le mélange). Ces courbes montrent l'évolution de la valeur expérimentale de la RRE en fonction du temps de mesure en considérant comme séquence initiale la séquence optimale. Elles sont construites par ajout de longueurs d'onde émises successivement à la séquence initiale jusqu'à atteindre la séquence expérimentale complète.

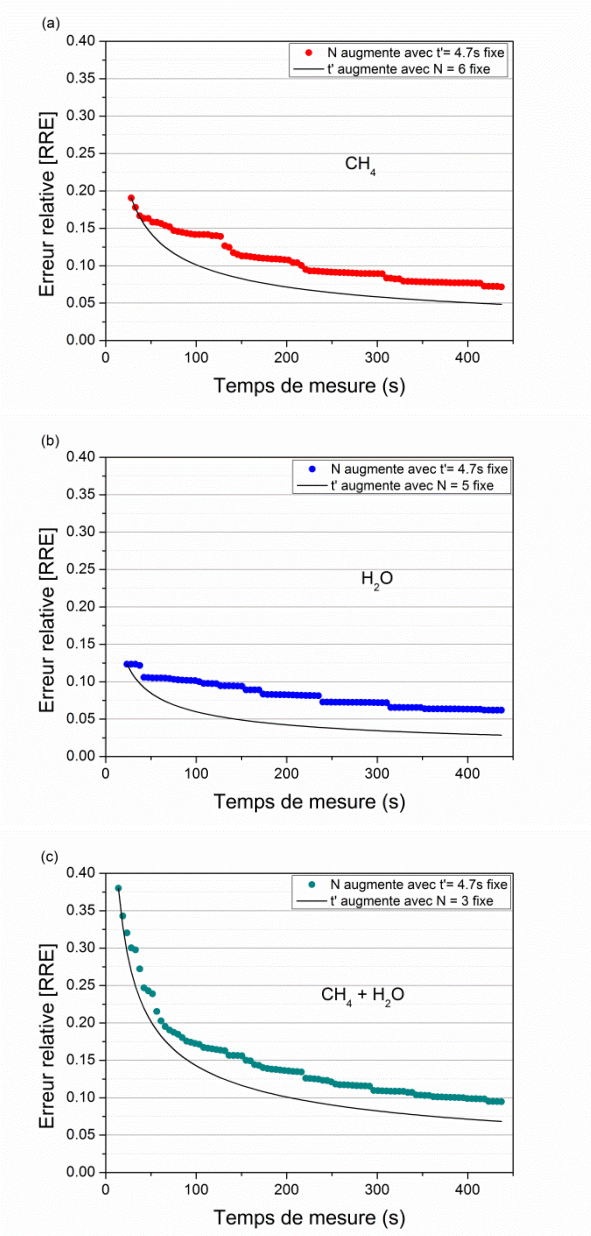


Figure 55 : Evolution de l'erreur relative en fonction du temps de mesure pour le méthane (a), la vapeur d'eau (b) et le mélange méthane - vapeur d'eau (c). (Points : la RRE expérimentale où l'on augmente le nombre de longueurs d'onde composant le spectre ; Ligne : la RRE minimale espérée où l'on augmente le temps d'intégration par longueur d'onde). La première valeur de la RRE correspond à celle de la séquence optimale résumée dans le Tableau 17.

Le temps d'intégration par longueur d'onde est fixé à t' = 4,7 s. Toujours sous l'hypothèse d'un bruit blanc de mesure, il est plus intéressant d'augmenter le temps d'intégration t' par longueur d'onde de la séquence optimale plutôt que d'augmenter le nombre de longueurs d'onde contenu à partir de la séquence optimale dont le temps d'intégration est fixe. L'erreur expérimentale sur les trois graphiques de la *Figure 55* diminue par palier en fonction du temps de mesure. Ces paliers sont particulièrement visibles sur les figures du méthane et de la vapeur d'eau. Ils sont dus à la méthode de construction de ces figures. En effet, les longueurs d'onde ajoutées à la séquence initiale correspondent aux longueurs d'onde successives que nous avons émises expérimentalement lors du balayage en fréquence. Elles n'apportent pas toutes de l'information pour l'espèce adressée. Par exemple, pour le méthane les informations utiles se situent dans la gamme spectrale comprise entre 3312 et 3315 nm environ. Toutes les longueurs d'onde que nous avons émises en dehors de cette gamme spectrale apportent peu d'informations.

Par exemple, il serait possible d'obtenir une précision de l'estimation de la concentration en méthane en utilisant la séquence optimale de 7,2 % équivalente à celle obtenu à l'aide de la séquence expérimentale sur un temps de mesure total de 200 s. Le temps de mesure du spectre d'absorption est alors deux fois plus court que le temps de mesure expérimental et chaque longueur d'onde de la séquence optimale pour le méthane est intégrée sur un temps t' = 33 s. De même, il devient possible d'obtenir une précision d'estimation de la concentration en vapeur d'eau ou du mélange méthane - vapeur d'eau de 6,2 % et 9,5 % respectivement pour une temps de mesure réduit de 100 s et 250 s respectivement en utilisant leurs séquences optimales.

En utilisant les séquences de longueurs d'onde sélectionnées précédemment et en intégrant chaque longueurs d'onde sélectionnée sur un temps plus long, il est possible de gagner théoriquement jusqu'à un facteur deux sur la précision de l'estimation de la concentration en méthane ou en vapeur d'eau, comme illustré dans le *Tableau 18*.

	Séquence complète	Séquence optimale pour CH_4	Séquence optimale pour H_2O	Séquence optimale pour CH_4 - H_2O
Nombre de longueurs d'onde	93	6	5	3
RRE pour le CH_4	7,2 %	4,8 %	23 %	5,9 %
RRE pour H_2O	6,2 %	440 %	2,8 %	3,4 %
RRE pour CH_4 - H_2O	9,5 %	440 %	23 %	6,8 %

Tableau 18 : Calcul des RREs des séquences optimales pour le CH_4, H_2O et CH_4 - H_2O en considérant un temps de mesure total fixé à 440 s

La technologie utilisée afin de développer l'émetteur présente l'avantage d'être largement accordable et polyvalent. Il est donc intéressant d'identifier les séquences de longueurs d'onde optimales permettant de minimiser l'erreur relative sur le méthane ou la vapeur d'eau atmosphérique. Néanmoins, les calculs réalisés ici en collaboration avec DOTA/SLS et les résultats associés dépendent fortement des propriétés du bruit de mesure et des concentrations en espèce. Sachant que l'hypothèse de bruit blanc utilisée est une hypothèse très forte, les résultats donnés dans ce manuscrit sont à considérer avec prudence et notamment les tendances espérées sur le long terme. En pratique, réaliser une première mesure de spectre sur une très large gamme spectrale permet de fournir un aperçu des espèces présentes sur la ligne de visée et de leur concentration. Ces premiers résultats avec

une bonne connaissance du bruit de mesure peuvent être utilisés afin de déterminer les séquences optimales de longueurs d'onde permettant d'utiliser de manière plus efficace le temps de mesure disponible.

Cette analyse est un outil permettant d'optimiser le temps de mesure et de déterminer les séquences de longueur d'onde à générer. Il serait intéressant dans la suite de ce travail de thèse de réaliser des mesures expérimentales de spectre dans lesquelles, la séquence de longueurs d'onde aurait été choisie de manière à optimiser le compromis précision et temps de mesure.

Bilan de l'analyse des séquences de longueurs d'onde

L'analyse des séquences de longueurs d'onde a été réalisée par une approche pragmatique. En effet, les séquences de longueurs d'onde ont été générées dans un premier temps puis dans un second temps cette analyse a été faite à partir des résultats obtenus.

La séquence de longueur d'onde optimale dépend des gaz présents sur la ligne de visée et de leur gamme de concentration. L'objectif ici ne consiste pas à proposer une séquence générique optimale mais plutôt une stratégie de mesure en fonction de quelques exemples de scénarios opérationnels résumés dans le *Tableau 19*.

Dans l'expérience du paragraphe B.1.5, nous nous sommes placés dans une configuration correspondant au scénario 4 c'est-à-dire la surveillance d'un site de stockage du méthane, par exemple, sans connaître a priori la concentration de cette espèce. Pour cette raison, des scans complets ont été réalisés. Ensuite, après les analyses réalisées à la section B.2.2, des scans plus rapides à trois longueurs d'onde seulement auraient pu être réalisés.

	Applications	Conditions expérimentales	Stratégie de mesure proposée
1	Suivi des gaz à effets de serre en environnement connu	Espèces connues Gammes de concentrations connues	Détermination a priori d'une séquence de longueurs d'onde la mieux adaptées aux épaisseurs optiques à mesurer. Puis scans rapides avec une longueur d'onde par espèce ciblée et une longueur d'onde "off".
2	Surveillance de la pollution urbaine ou sur site aéroportuaire	Espèces polluantes connues Gammes de concentrations variables (jours, heures …) Présence d'interférents atmosphériques	Réaliser un scan complet pour estimer les gammes de concentrations de chaque espèce. Puis déterminer les longueurs d'onde les mieux adaptées aux d'épaisseurs optiques à mesurées. Enfin réaliser des scans rapides avec une longueur d'onde par espèce ciblée et une longueur d'onde off
3	Surveillance d'un site industriel connu (détection de fuite)	Espèces connues Gammes de concentrations connues sauf cas de fuite Présence d'interférents atmosphériques	Stratégie de mesure du scénario 1 puis Si les épaisseurs optiques sont trop fortes (en cas de fuite) alors Alors réaliser un scan complet pour estimer les gammes de concentrations de chaque espèce Puis déterminer les longueurs d'onde les mieux adaptées Enfin réaliser des scans rapides avec une longueur d'onde par espèce ciblée et une longueur d'onde off
4	Surveillance d'un site industriel ou surveillance des espèces en sortie de moteur aéronautique sans a priori sur les concentrations en espèces	Espèces polluantes connues Gammes de concentrations inconnues Présence d'interférents atmosphériques	Réaliser un scan complet pour estimer les gammes de concentrations de chaque espèce Puis déterminer les longueurs d'onde les mieux adaptées Enfin réaliser des scans rapides avec une longueur d'onde par espèce ciblée et une longueur d'onde off

Tableau 19 : Proposition d'une stratégie de mesure en fonction de cinq scénarios opérationnels

B.2.3. Synthèse

Dans un premier temps, Une analyse du bruit de mesure a été réalisée. Cette analyse a mis en évidence de sources de d'erreurs importantes : l'incertitude sur la connaissance de la fréquence complémentaire et le bruit de détection impliquant un bruit et donc une erreur sur la ligne de base.

Une étude sur les conditions et le choix des longueurs d'onde à émettre pour optimiser le compromis précision et temps de mesure a été réalisée en collaboration avec le DOTA à partir d'un jeu de données expérimental. L'outil développé pendant la thèse d'A. Dobroc permet d'identifier les conditions expérimentales permettant de minimiser l'erreur relative sur le méthane ou la vapeur d'eau atmosphérique. Ces premiers résultats montrent qu'il existe des séquences de longueurs d'onde permettant d'utiliser de manière plus efficace le temps de mesure disponible. Il serait intéressant de déterminer la séquence optimale de longueurs d'onde à générer permettant de réaliser le meilleur compromis précision et temps de mesure dans cette gamme spectrale. En pratique, réaliser une première mesure de spectre sur une très large gamme spectrale permet de fournir un aperçu des espèces présentes sur la ligne de visée et de leur concentration.

A présent, nous allons étudier les perspectives d'évolution et d'amélioration de l'instrument de point de vue de la portée et de la stabilité mécanique.

B.3. Perspectives

B.3.1. Evaluation des performances de l'instrument IP-DiAL de moyenne portée

Dans cette section, une estimation de la portée maximale pour une tolérance de précision donnée de notre instrument est réalisée ainsi qu'une estimation de la sensibilité maximale de ce dernier, c'est-à-dire quelle est la concentration minimale détectable par l'instrument pour une portée donnée.

Détermination de la portée maximale de l'instrument actuel

Dans l'objectif de réaliser des mesures de concentration multi-espèces avec un système opérationnel transportable, nous souhaitons estimer une valeur de portée maximale atteignable pour laquelle l'erreur de l'estimation de la concentration reste acceptable. Nous nous fixons une erreur d'estimation maximale de 10 % sur les deux espèces. Pour ce faire, plusieurs expériences sont réalisées afin d'estimer l'erreur en concentration de chaque espèce :

- en fonction de l'énergie disponible en sortie de l'émetteur et
- en fonction du choix de la cible spécifique.

Tout d'abord, le choix de la cible a été dirigé vers celle permettant d'obtenir le meilleur rapport signal sur bruit [RSB]. Suivant la nature de la cible, son albédo (coefficient de réflexion) change. Il s'avère que la cible lambertienne présente l'albédo le plus important de l'ordre de 90 % tandis que l'albédo de la feuille de papier est de 80 %. Dans un second temps, en conservant une portée de 30 m, une mesure de concentration sur le méthane et la vapeur est faite en atténuant par un facteur 40 l'énergie disponible en sortie de l'émetteur. Ces expériences sont réalisées en utilisant la cible lambertienne en rotation comme cible topographique.

Mesures	Concentration CH_4	Concentration H_2O
1	1,73 +/- 0,19 ppm	9,3 +/- 0,9 ‰
2	1,84 +/- 0,19 ppm	8,8 +/- 0,9 ‰

Tableau 20 : Bilan des mesures de concentration en méthane et vapeur d'eau pour une énergie disponible en sortie de l'émetteur atténuée par un facteur 40 sur une portée de 30 m avec la cible lambertienne

Pour cela, il suffit d'utiliser uniquement l'énergie disponible en sortie du NesCOPO non amplifié. Les résultats concernant cette expérience sont résumés dans le Tableau 20. Les spectres obtenus sont inversés grâce à l'outil d'inversion réalisé par A. Dobroc au cours de sa thèse [Dobroc - 2013]. Dans cette configuration de mesure, l'erreur sur l'estimation de la concentration sur les deux espèces reste inférieure à 10 %. Or la puissance rétrodiffusée, P_R, est inversement proportionnelle au carré de la portée, d, et proportionnelle à la puissance disponible en sortie d'émetteur P_{idler}, comme suit [Bösenberg - 1998] :

$$P_R \propto \frac{P_{idler}}{d^2} \qquad \textit{(Eq. 34)}$$

En supposant que les conditions expérimentales sont identiques, il est possible d'estimer une portée d pour l'instrument dont le RSB est équivalent à celui de la mesure précédente. Les hypothèses sont les suivantes :

- la transmission est identique c'est-à-dire que les sections efficaces d'absorption des raies des deux espèces sélectionnées sont plus faibles. Ceci est possible car l'émetteur est très largement accordable.
- le recouvrement spatial entre le champ de détection et le champ d'émission sur la cible est identique également.

Sous ces hypothèses, une portée de l'ordre de 190 m peut être estimée pour une énergie disponible en sortie d'émetteur de 5 µJ.

De plus, afin d'optimiser la portée de l'instrument avec le même laser de pompe il suffit d'utiliser un cristal d'amplification plus long permettant d'augmenter l'efficacité de conversion de la source. Par conséquent, le cristal d'amplification de 20 mm de long a été remplacé par un cristal non linéaire de 50 mm de long. Avec ce nouvel étage d'amplification, jusqu'à 10 µJ sont émis à 3,3 µm, permettant ainsi d'atteindre une portée théorique de 260 m. Ces expériences sont présentées en Annexe B.1.

Détermination de la sensibilité maximale de l'instrument moyenne énergie à une portée de 30 m

L'objectif ici est d'estimer un ordre de grandeur de la sensibilité maximale de notre instrument c'est-à-dire la concentration minimale détectable pour le méthane et la vapeur d'eau dans nos conditions expérimentales en considérant que l'on émet simplement deux longueurs d'onde "ON" et "OFF" sans tenir compte ici des effet d'interférents.

La résolution expérimentale pour la mesure du méthane par l'instrument sur une portée de 30 m est de 0,16 ppm. De même, la limite de détectivité est d'environ 400 ppm pour la vapeur d'eau sur une portée de 30 m avec notre instrument. Il est possible de détecter des niveaux de concentration en méthane et en vapeur d'eau inférieurs à la concentration atmosphérique. Cela correspond à une résolution de 0,16 et 400 ppm sur une portée de 260 m reportée dans le *Tableau 21*.

Espèces	Section efficace d'absorption	Résolution	Résultat expérimental ou calcul	Concentration atmosphérique	Longueur d'onde ON
CH_4	1.10^{-18}	0,16 ppm	Exp.	1,9 ppm	3314,5 nm
H_20	1.10^{-21}	400 ppm	Exp.	1 à 4 %	3316 nm
NO_2	1.10^{-21}	3 ppm	Calcul	10 ppb à 1 ppm	3430 nm
Acétone	5.10^{-5} ppm.m	10 ppm	Calcul	1 à 3ppb	3360 nm
Formaldéhyde	6.10^{-20}	0,3 ppm	Calcul	10 à 20 ppb	3595 nm
Propylène	5.10^{-5} ppm.m	10 ppm	Calcul	N.C.	3380 nm

Tableau 21 : Estimation de la concentration minimale détectable pour une portée de 260 m pour les différentes espèces adressables dans la gamme spectrale 3,3 - 3,8 µm

Dans la section B.2.1, le bruit sur la ligne de base a été déterminé et vaut environ 1,8 % sur une portée de 30 m. Si nous considérons une valeur du RSB valant 1, alors l'absorption par l'espèce d'intérêt est égale au bruit de mesure. Par ailleurs, dans le cadre d'une mesure IP-

DiAL, l'équation *(Eq. 23)* introduite dans la section A.1.3, nous fournit l'expression de la concentration moyenne en espèce sur la ligne de visée N :

$$N = \frac{1}{2d\sigma(\lambda_{on})} \times ln\left(\frac{P(\lambda_{on})}{P(\lambda_{off})}\right) \qquad (Eq.\ 35)$$

$$\frac{P(\lambda_{on})}{P(\lambda_{off})} = 1 - A \qquad (Eq.\ 36)$$

où A est l'absorption par les gaz présents sur la ligne de visée. En considérant que les énergies émises aux deux longueurs d'onde "ON" et "OFF" sont égales.

Ce calcul est réalisé pour une portée de 260 m en considérant des conditions expérimentales identiques. De plus, on suppose que le bruit sur la ligne de base est deux à trois fois plus élevé que celui mesuré à 30 m. Par ailleurs, les sections efficaces d'absorption utilisées pour CH_4, H_2O, NO_2 et le formaldéhyde proviennent de la base de données HITRAN 2008. En outre, les sections efficaces d'absorption de l'acétone et du propylène ne sont pas fournies par cette base. Nous avons utilisé la base de données PNNL nous fournissant des absorptions en ppm.m. Grâce à ces données, la concentration minimale détectable sur une portée de 260 m de l'ensemble des espèces présentes dans la gamme 3,3 à 3,7 µm peut être estimée. Les résultats de ces calculs sont présentés et résumés dans le *Tableau 21*.

Notre instrument présente une très bonne sensibilité vis à vis du méthane et de la vapeur d'eau en concentration atmosphérique. En effet, ces deux espèces présentent respectivement une forte section efficace et une forte concentration. Néanmoins, la sensibilité de notre instrument pour les autres espèces (comme le NO_2, l'acétone, le formaldéhyde ou le propylène) est comprise entre 1 et 10 ppm. Ces performances ne permettent pas de réaliser une mesure IP-DiAL de ces composants à concentration atmosphérique sur une portée de 260 m, elles peuvent permettre, en revanche, de répondre à des problématiques industrielles.

B.3.2. Amélioration de la robustesse et de la stabilité mécanique de l'instrument

Rigidification du bloc émetteur

Une photographie d'un NesCOPO de conception opto-mécanique standard est donnée sur la *Figure 56(a)*. Cette opto-mécanique est compacte et souple car de nombreux réglages sont disponibles. Cependant, elle n'est pas suffisamment robuste dans l'optique de réaliser des instruments LIDAR de très grande sensibilité. Dans ce contexte, depuis plusieurs années l'unité SLM de l'Onera travaille à la miniaturisation et à l'amélioration de la robustesse des OPO.

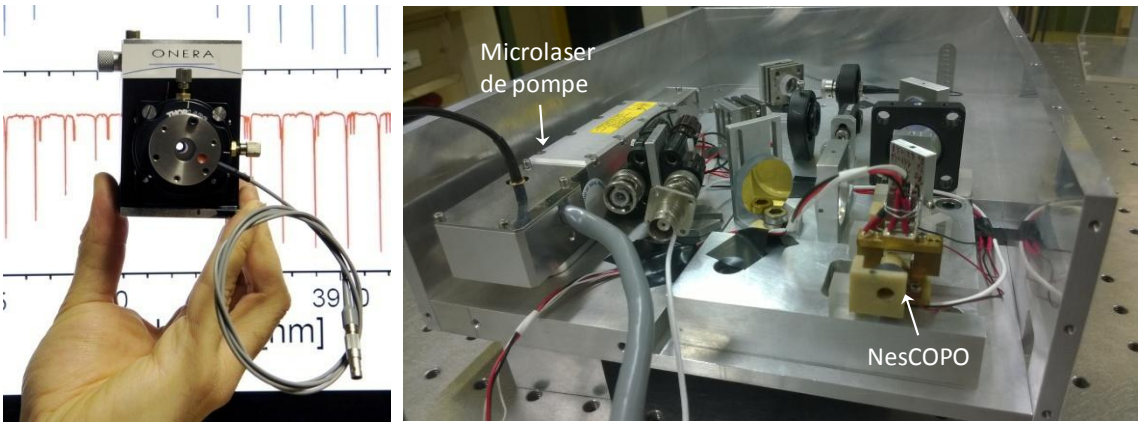


Figure 56 : Photographie d'un NesCOPO de conception opto-mécanique standard (a) et d'une nouvelle génération d'opto-mécanique : NesCOPO collé (b)

Des travaux ont été réalisés afin de déterminer la meilleure conception opto-mécanique répondant aux besoins. Au cours d'un apprentissage précédent ma thèse, la méthode et les moyens de micro-assemblage ont été mis au point au sein de l'unité. Ceci a permis de réaliser le premier OPO simplement résonant collé. Une photographie du premier DROPO collé conçu et développé par H. Coudert-Alteirac et T. Schmid est présentée sur la *Figure 56(b)*. Grâce cette nouvelle opto-mécanique du NesCOPO, de très bonnes stabilités mécanique et thermique sont assurées. Ce sont des qualités essentielles pour les applications LIDAR spatiales.
Les caractérisations en puissance et en stabilité spectrale sont présentées dans le paragraphe suivant. De plus, cet émetteur a été implémenté dans l'instrument de mesure IP-DiAL.

Caractérisation du NesCOPO collé

Cette nouvelle architecture mécanique compacte présente plusieurs avantages notamment d'un point de vue de la qualité spectrale (*Figure 57(b)*) pour les applications LIDAR embarquées. La *Figure 57(a)* montre l'évolution de l'énergie extraite de l'OPO en fonction de l'énergie de pompe incidente. Le NesCOPO présenté sur la *Figure 56(b)* est pompé par un microlaser de TeemPhotonics délivrant des impulsions en régime nanoseconde de 10 µJ à une cadence de 4,5 kHz. Il est composé d'un cristal de 4 mm de long en PPLN conduisant à un ISL de la cavité signal de 15 GHz. Par ailleurs, un seul des deux miroirs externes est monté sur une PZT. Le miroir de fond est monté sur une PZT tandis que le miroir d'entrée est fixe. Cette architecture permet d'extraire jusqu'à 150 nJ à 3,3 µm en pompant avec 6 µJ. Le seuil d'oscillation vaut 3 µJ. Par ailleurs, la très bonne stabilité mécanique du NesCOPO se traduit par une très bonne stabilité en fréquence de l'émission, illustrée sur la *Figure 57(b)*. La fréquence signal émise par le NesCOPO est mesurée par un mesureur de longueur d'onde WS6 - 200 HighFinesse dont la résolution est de 50 MHz. Le NesCOPO en "free-running" est monofréquence pendant plusieurs dizaines de minutes avant de sauter vers un mode voisin. Le saut en fréquence observé correspond à un ISL de la cavité signal. Nous avons pu observer que les variations en fréquence sur un mode étaient limitées par les variations en fréquence du laser de pompe.

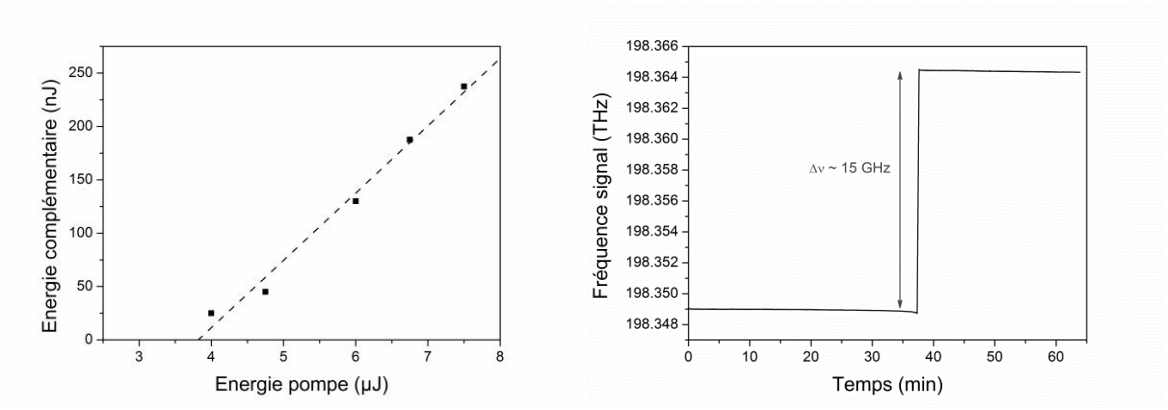


Figure 57 : Caractéristique en puissance du NesCOPO collé (a) et mesure de la stabilité en fréquence de l'émission OPO à 3,7 µm en boucle ouverte (b)

La stabilité en fréquence en boucle ouverte du NesCOPO collé est très bonne sur le long terme. A court terme, la *Figure 58* compare les fluctuations en fréquence observées sur la pompe et sur le signal. La longueur d'onde de pompe et la longueur d'onde signal sont enregistrées simultanément avec deux mesureurs de longueurs d'onde différents. Les fluctuations de l'onde de pompe sont mesurées par un mesureur de longueur d'onde WS6-200 HighFinesse de 50 MHz de résolution. Tandis que les variations de fréquence de l'onde signal sont observées sur le signal doublé à l'aide d'un mesureur de longueur d'onde WSU-10 HighFinesse dont la résolution est de 1 MHz. Les fluctuations en fréquence de la pompe sont de l'ordre de 150 MHz. Les fluctuations en fréquence sur le signal sont plus faibles que celles observées de la pompe. En effet, la fréquence signal varie typiquement de 20 MHz sur quelques minutes. Par ailleurs, comme le montre la *Figure 58*, les variations de fréquence du signal sont corrélées aux variations en fréquence du laser de pompe. Comme la stabilité mécanique et thermique de cette opto-mécanique est excellente, les fluctuations en fréquence observées sur l'OPO sont limitées par le bruit en fréquence du laser de pompe qui n'est pas asservi en température. Ces résultats sont particulièrement intéressants pour les applications LIDAR spatiales et/ou embarquables.

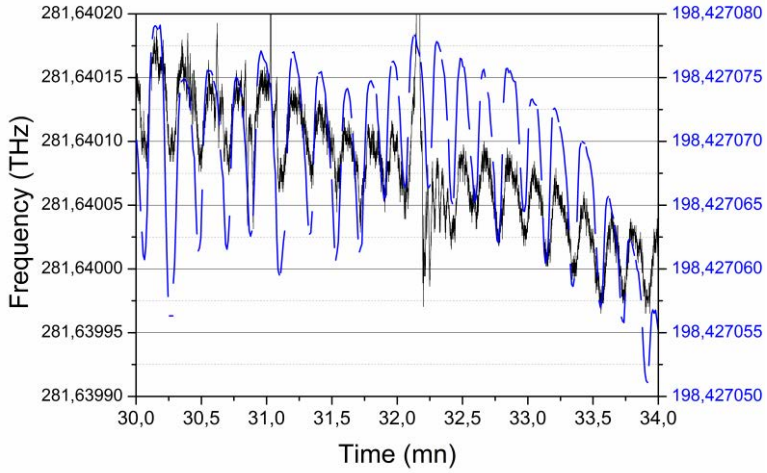


Figure 58 : Comparaison entre les variations de la fréquence de pompe (trait plein noir) et celles de la fréquence du signal (trait plein bleu)

De plus, une mesure du dépointé du faisceau complémentaire a été également réalisée à l'aide d'une caméra infrarouge (DataRay WinCamD-FIR2-16-HR). La caméra est placée à

150 cm de la sortie de l'OPO sur le faisceau complémentaire. Dix mesures consécutives à intervalles réguliers de la position du faisceau sur la caméra sont réalisées à fréquence fixée. Un écart maximum de 2 à 3 pixels est mesuré soit environ un écart en position d'environ 90 µm sur un même mode à 150 cm de la sortie de l'OPO. De plus, la divergence totale du faisceau complémentaire est caractérisée et vaut environ 3,3 mrad.

Dans le cadre de ma thèse ce NesCOPO à été implémenté dans un instrument de mesure IP-DiAL pour les applications similaires au scénario 4. Comme il a été précisé dans le paragraphe A.3.2, l'accord en fréquence par saut de mode peut s'effectuer de deux manières : par la température du cristal et par le mouvement longitudinal des miroirs des cavités signal et complémentaire. Pour cette première version du NesCOPO, seul le miroir de fond est monté sur une cale PZT. A température fixée, il est difficile d'obtenir une résolution inférieure à l'ISL de la cavité signal uniquement par le mouvement longitudinal du miroir de fond monté sur une cale PZT. Afin d'obtenir un échantillonnage plus fin de la mesure de spectre de l'ordre de 2 GHz, l'accord par balayage de la cale PZT du miroir de fond de cavité est couplé à un accord en température. Cet instrument courte portée est basé sur le même principe décrit en section B.1.4.

L'ensemble des paramètres temporels d'acquisition du mesureur de longueur d'onde et du Boxcar sont résumés dans le *Tableau 22*. Une fréquence du spectre est composée de 30 points environ. Un point est intégré pendant 250 ms. Chaque fréquence constituant le spectre correspond à la valeur moyenne de la transmission associée. Une fréquence dans le spectre est mesurée en 7,5 s. Un spectre est composé généralement de 18 longueurs d'onde. Il est ainsi réalisé en 135 s à température fixée.

Paramètres	Temps d'acquisition
Temps d'intégration du mesureur de longueur d'onde + Boucle	250 ms
Nombre d'impulsions moyennées	1000
Temps d'intégration du Boxcar	250 ms

Tableau 22 : Caractéristiques temporelles d'acquisition d'un point de mesure à une longueur d'onde fixée associés au mesureur de longueurs d'onde et au Boxcar

Ensuite, nous changeons la température du cristal de 1 °C et une seconde mesure de spectre est réalisée. Il est alors nécessaire d'attendre environ 5 min entre chaque spectre afin de s'assurer que la température est stabilisée. Le temps d'acquisition d'un spectre composé de trois températures est de l'ordre de 20 mn. Un post-traitement des sauts de mode de la séquence de longueurs d'onde générée est réalisé comme nous l'avons vu dans le paragraphe B.1.5.

Espèces	Concentrations estimées
Méthane	1,98 ppm +/- 0,16 ppm
Vapeur d'eau	5 ‰ +/- 0,3 ‰

Tableau 23 : Estimations de concentration en méthane et en vapeur d'eau atmosphériques avec la nouvelle architecture du NesCOPO sur une portée de 12,5 m en utilisant une cible lambertienne.

Dans le cas de la mesure de spectre présentée en Annexe E, l'estimation des concentrations en méthane et en vapeur d'eau atmosphériques est résumée dans le *Tableau 23*. La concentration en méthane estimée à 1,98 ppm +/- 0,16 ppm est cohérente avec la valeur attendue de 1,9 ppm [Bergamaschi - 2013]. De plus, l'estimation de la concentration en

vapeur d'eau est cohérente avec la mesure à l'hygromètre réalisé en parallèle de la mesure de spectre qui donne une humidité relative de 20 % +/- 5 %.

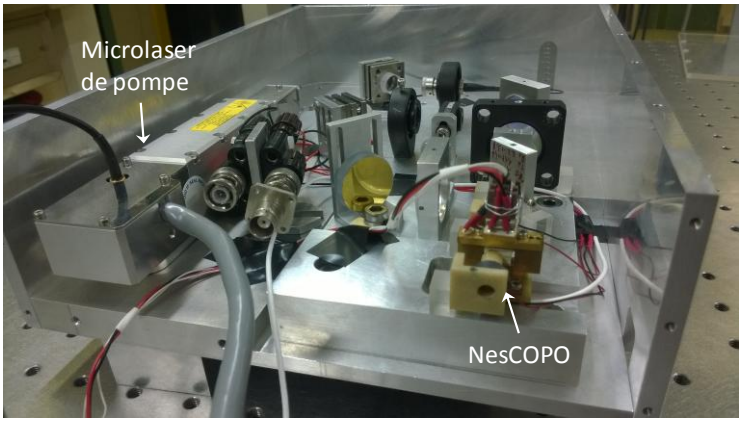


Figure 59 : Photographie du banc mini-lidar développé dans le cadre de l'apprentissage de H. Coudert Alteirac.

L'émetteur délivrant jusqu'à 150 nJ à 3,3 µm, nous permet d'atteindre une portée maximale de l'instrument autour de 30 m théoriquement. Par la suite, ce banc émetteur compact a été intégré dans le cadre de l'apprentissage de H. Coudert Alteirac en un banc mini-lidar transportable présenté en *Figure 59*, qui pourrait être déployé dans les mois ou années qui viennent pour des mesures en sortie moteur aéronautique.

B.3.3. Couplage du lidar avec des systèmes passifs

Pour la suite, on peut imaginer de coupler notre instrument lidar compact avec une caméra infrarouge afin d'éviter de devoir scanner la scène pour détecter une fuite. La caméra permettrait de localiser les fuites éventuelles et le lidar quantifierait ces fuites. Cette approche est initiée par [M-Squared] avec un OPO injecté couplé à une caméra infrarouge pour la détection de gaz à l'état de traces. Ce genre d'expérience pourra être testé à l'Onera à la suite de cette thèse avec l'instrument compact développé dans la gamme spectrale autour de 3,3 µm. Cela permettrait de réaliser des mesures de concentrations rapides pour ce type d'applications.

B.4. Synthèse

Au cours de cette partie, nous avons démontré le potentiel de notre instrument de mesure IP-DiAL dans le cadre de mesure d'un suivi de gaz ou polluants sur un site industriel. Elle s'articule autour de trois aspects :

- ✓ Le développement et la caractérisation de l'instrument ainsi que sa mise en œuvre sur le méthane et la vapeur d'eau atmosphériques ;

Une démonstration de mesure IP-DiAL a été réalisée sur le méthane et la vapeur d'eau en concentration atmosphérique sur une portée de 30 m. Les résultats obtenus lors de cette expérience montre une bonne fiabilité de l'estimation en concentration du méthane avec une incertitude inférieure à 10 % malgré les fortes variations en vapeur d'eau atmosphérique. Comme nous réalisons une mesure simultanée du contenue en méthane et en vapeur d'eau, cette dernière n'est plus une inconnue mais un paramètre de la mesure.

- ✓ L'analyse du bruit de mesure ;

L'analyse des sources de bruit de la mesure a mis en évidence une source de d'incertitude limitante : l'incertitude sur la connaissance de la longueur d'onde complémentaire. Une voie d'amélioration proposée consiste à réaliser une mesure précise et absolue de la longueur d'onde complémentaire émise par l'émetteur à l'aide d'une cellule de gaz de référence. Une seconde solution serait de réaliser une mesure simultanée de la longueur d'onde signal émise par l'émetteur et de la longueur d'onde de pompe.

- ✓ Les performances de l'instrument et les perspectives d'amélioration.

Nous n'avons pas eu l'occasion ni les moyens de réaliser une mesure sur des portées supérieures à 30 m. Mais, la portée maximale de l'instrument a été estimée à 260 m en utilisant un cristal de 50 mm long de long dans l'étage d'amplification. Enfin, nous avons montré que la sensibilité de notre instrument est très bonne pour le méthane et la vapeur d'eau atmosphériques. Néanmoins, pour les autres espèces présentes dans la gamme spectrale de l'instrument, même si sa sensibilité n'est pas suffisante pour permettre un suivi de leur concentration atmosphérique, cet instrument peut répondre à des problématiques industrielles.

Chapitre C : Développement d'un banc LIDAR DiAL longue portée (1 km) autour de 2 µm

Objectif du chapitre :

Le développement et la caractérisation d'un émetteur multi-longueurs d'onde et multi-espèces dans le cadre des développements LIDARs spatiaux pour la mesure des gaz à effet de serre depuis l'espace sont décrits dans cette partie du manuscrit. Une proposition d'instrument complet et une estimation des performances de l'instrument pour une mesure DiAL résolue spatialement sont réalisées grâce au développement d'un code de modélisation.

Introduction

Comme nous l'avons vu dans l'introduction générale, de nombreux LIDAR atmosphériques pour les applications spatiales sont en cours de développement sur deux gammes spectrales : la gamme spectrale autour de 2 µm et la gamme spectrale de 1,5 à 1,6 µm. Pour les émetteurs développés dans la gamme spectrale autour de 2 µm, les émetteurs ne permettent de mesurer jusqu'à présent qu'une seule espèce du fait de leur accordabilité limitée. Deux cas de figure se présentent pour les applications spatiales :

- un instrument placé à bord d'un satellite et
- un instrument sol dédié aux calibrations et validations de ces missions.

Pour répondre aux spécifications instrument résumées dans le *Tableau 24*, nous nous proposons de développer un émetteur multi-espèces haute énergie à 2 µm permettant d'adresser trois gaz à effet de serre (CO_2, CH_4 et H_2O) pour les applications LIDAR résolu spatialement depuis le sol et IP-DiAL depuis l'espace.

	Calibration et validation	Instrument embarqué sur satellite
Méthode de mesure	Mesure résolue spatialement	Mesure intégrée colonne
Portée souhaitée	> 1 km	500 km
Résolution spatiale	< 200 m	/
Gaz à adresser	Gaz à effet de serre (CO_2, CH_4, H_2O)	
	H_2O l'interférent majoritaire	

Tableau 24 : Spécifications de l'instrument LIDAR DiAL résolu spatialement

Au cours de ces travaux, nous réalisons un émetteur multi-longueurs d'onde et multi-espèces dans le cadre des applications spatiales qui sera intégré dans un instrument LIDAR DiAL dont l'architecture est représentée sur la *Figure 60*. L'instrument est constitué des trois blocs usuels : le bloc d'émission, le bloc de réception et le bloc de pilotage et d'acquisition.

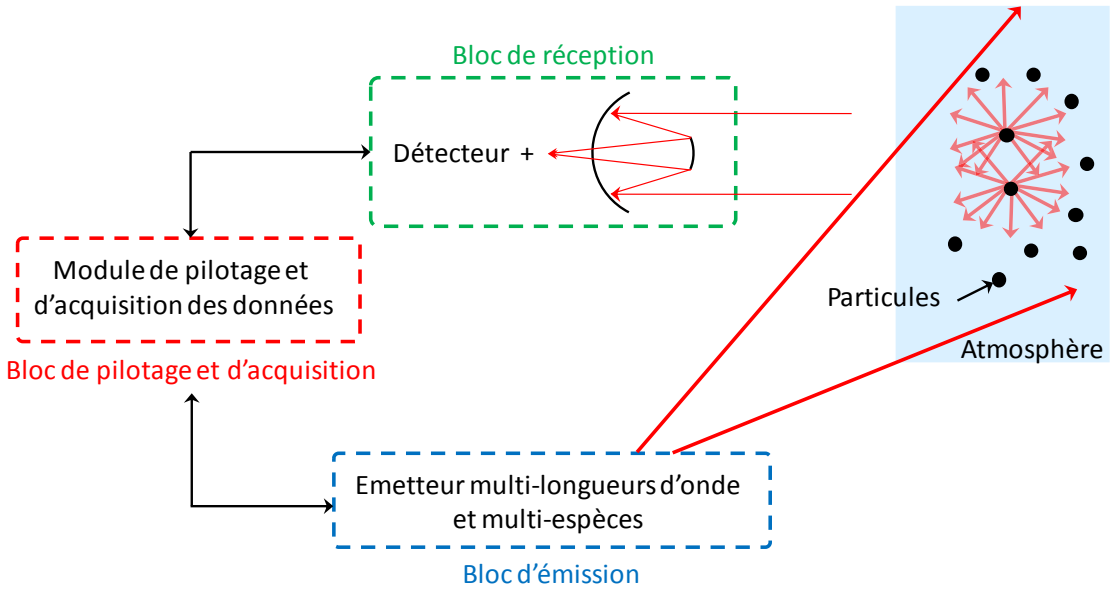


Figure 60 : Architecture générique de l'instrument LIDAR proposé

Nous avons choisi de travailler avec une détection directe pour deux raisons :

- la réalisation de mesures LIDAR multi-espèces donc sur une large gamme spectrale difficile à mettre en œuvre en détection hétérodyne ;
- l'émetteur développé s'appuie sur une technologie sans oscillateur local optique. Ainsi, réaliser une détection hétérodyne n'a pas de sens. Cet aspect représente une différence fondamentale avec les systèmes basés sur des émetteurs injectés.

Nous avons choisi de réaliser une mesure lidar en détection directe. Or, il y a très peu d'informations dans la littérature concernant les mesures LIDAR en détection directe à 2 µm [Sugimoto - 1990]. Par conséquent, un code numérique de modélisation est développé afin de réaliser le dimensionnement et la prévision des performances de l'instrument.

Les développements émetteurs et instrumentaux à 2 µm réalisés au cours de cette thèse sont décrits ci-après :

- les spécifications émetteur associées à l'application spatiale et le contexte sont présentés en partie C.1 ;
- l'émetteur est décrit en partie C.2 ;
- les performances de l'instrument sont estimées en partie C.3 ;
- les perspectives de ce travail sont décrites en partie C.4.

C.1. Contexte applicatif et architecture de l'instrument

C.1.1. Spécifications de l'émetteur liées à l'application spatiale

L'intérêt d'une mesure LIDAR résolue spatialement est de pouvoir réaliser des profils de concentration des espèces d'intérêt le long de la ligne de visée. Cependant, des mesures LIDAR résolues spatialement depuis une plate-forme satellite nécessiteraient une source optique délivrant des impulsions d'une énergie de l'ordre du Joule. Le développement d'un tel émetteur embarquable semble complexe. La stratégie adoptée consiste donc à réaliser un instrument LIDAR IP-DiAL mesurant le flux rétrodiffusé par une cible topographique (le sol, l'océan, le couvert végétal). La capacité de résolution spatiale de l'instrument n'est plus exploitée, on réalise donc une mesure moyenne de la concentration en espèces le long de la ligne de visée. Par ailleurs, la détection hétérodyne étant très affectée par l'effet du speckle, dans le cadre des applications spatiales la détection directe est privilégiée. Dans le cadre de cette thèse, nous souhaitons aussi valider le potentiel de notre émetteur pour des mesures DiAL résolues spatialement avec pour objectif de réaliser des mesures au sol ou aéroportées de calibration ou de validation des missions spatiales.

Dans un tel contexte, les spécifications émetteur pour la réalisation d'une mesure spatiale sensible, des gaz à effet de serre par la technique IP-DiAL sont très exigeantes notamment en termes de :

- longueurs d'onde à émettre ;
- énergie par impulsion ;
- stabilité en fréquence ;
- pureté spectrale ;
- qualité spatiale du faisceau.

L'ensemble de ces spécifications en termes d'énergie et de qualités spectrale et spatiale du faisceau sont résumées dans le *Tableau 25*. Des études théoriques menées au préalables ont permis de les déterminer [Ehret - 2008 ; Caron - 2009].

Energie	> 70 mJ pour CO_2 et > 20 mJ pour CH_4
Stabilité en fréquence	σ < 2 MHz sur 10 s
Largeur de raie (FWHM)	< 0,003 % de la raie
Pureté spectrale	> 99,9 % dans 1 GHz
Qualité spatiale	$M^2 < 2$

Tableau 25 : Spécifications émetteur d'un LIDAR IP-DiAL en détection directe pour une mesure depuis l'espace.

Néanmoins, dans le cadre de ma thèse, l'objectif n'est pas d'atteindre les spécifications émetteur associées à une mission spatiale mais de réaliser une démonstration de principe. En effet, nous souhaitons développer un instrument LIDAR résolu spatialement permettant des mesures depuis le sol pour la validation et la calibration des missions spatiales. De premiers essais atmosphériques en détection directe réalisés à 2,1 µm avec un émetteur basé sur un laser Ho permettent d'évaluer les caractéristiques émetteur et récepteur

nécessaires à la mesure LIDAR résolue spatialement sur des portées de l'ordre de 2 km [Sugimoto - 1990]. Ces caractéristiques sont résumées dans le *Tableau 26*.

Emetteur		Récepteur	
Energie	> 20 mJ	Focale effective du télescope	1 m
Stabilité en fréquence	< 2 MHz sur 10 s	Diamètre da pupille d'entrée	30 cm
Largeur de raie	< 0,003 %	Demi-angle de collection	0,5 mrad
Pureté spectrale	> 99,9 % dans 1 GHz		
Qualité spatiale	$M^2 < 2$		

Tableau 26 : Caractéristiques d'un émetteur LIDAR résolu spatialement en détection directe permettant d'atteindre une portée de 2 km.

La stabilité en fréquence

Dans le cadre d'application spatiale, l'objectif est souvent d'étudier les basses couches de l'atmosphère (la troposphère et la couche limite) où se trouvent les sources et les puits des principaux gaz à effet de serre. La forme de la raie d'absorption d'un gaz atmosphérique évolue en fonction des conditions de température et de pression c'est à-dire en fonction de l'altitude [Timofeyev - 2008]. Dans le cas général, le profil des raies d'absorption atmosphérique est une convolution entre un profil Gaussien et un profil Lorentzien appelé profil de Voigt [Armstrong - 1967]. En effet, pour les hautes couches de l'atmosphère la forme de raie peut être approximée par un profil Gaussien dû à l'élargissement Doppler tandis que dans les basses couches de l'atmosphère, typiquement la troposphère, du fait de la haute densité de particules l'élargissement collisionnel devient prépondérant conduisant à une forme de raie de profil Lorenztien. Rappelons ici que la diffusion Brillouin est un processus de diffusion inélastique mettant en jeu les modes acoustiques d'un ensemble de molécule. Ce processus de diffusion conduit à un phénomène d'élargissement de la raie et de déformation du profil de raie [Tenti - 1974]. Néanmoins, l'impact de la diffusion Brillouin sur la raie d'absorption dans le domaine infrarouge est négligeable.

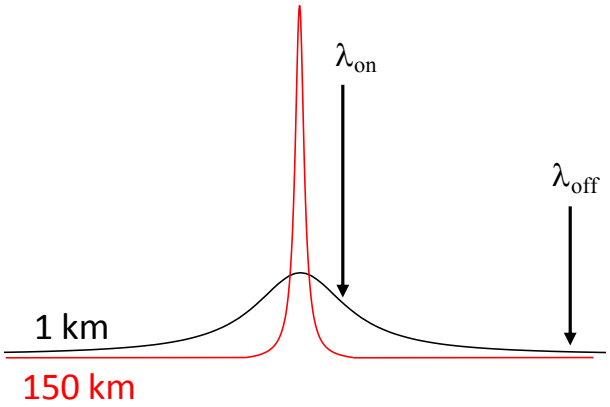


Figure 61 : Evolution de la forme de raie d'absorption d'un gaz pour deux altitudes. Pour une altitude de l'ordre de 150 km, la forme de raie est Gaussienne (en rouge) et pour une altitude de l'ordre de 1 km, la forme de raie est quasi-lorentzienne (en noir).

Par conséquent, afin d'optimiser la sensibilité de l'instrument dans les basses couches de l'atmosphère, la longueur d'onde λ_{on} est choisie décalée du maximum d'absorption de la raie d'intérêt, comme illustré sur la *Figure 61*. Ainsi, pour les études spatiales la longueur d'onde λ_{on} se situe typiquement dans l'aile de la raie. Comme nous l'avons vu dans la partie B.2, les fluctuations de fréquence du laser pour une longueur d'onde située sur un flanc de raie

conduisent à des fluctuations de l'intensité transmise qui sont une cause d'erreur importante. Pour atteindre une précision de mesure de l'ordre de 0,2 % sur la concentration en CO_2, il est nécessaire que la stabilité de la fréquence émise ν_{on} soit inférieure à 2 MHz rms sur 10 s à 2 µm [Ehret - 2008].

Le choix des longueurs à émettre

L'objectif ici est de déterminer les longueurs d'onde "ON" à émettre associées à chaque gaz à effet de serre d'intérêt permettant d'obtenir la meilleure précision de mesure de la concentration. La détermination de ces longueurs d'onde est complexe. En effet, d'une part c'est un compromis entre une faible dépendance à la température de la section efficace et la présence à proximité de raies de la vapeur d'eau en tant qu'interférent, et d'autre part c'est un compromis entre une fonction poids appropriée et une épaisseur optique notée τ assurant une bonne sensibilité dans les basses couches de l'atmosphère [Ehret - 2008]. L'épaisseur optique est définie de la façon suivante :

$$\tau_\lambda(\lambda, r) = \int_0^r \sigma(\lambda, r')N(r')dr' \qquad \textit{(Eq. 37)}$$

avec σ la section efficace d'absorption de l'espèce sondée à la longueur d'onde λ et N la concentration volumique en espèce.

Dans le cas des systèmes LIDAR basés sur une détection hétérodyne dont le bruit est dominé par le bruit de grenaille de l'oscillateur local, la valeur optimale de l'épaisseur optique est égale à 0,55 [Megie - 1980]. Pour les systèmes LIDAR en détection directe, la valeur optimale de l'épaisseur optique communément choisie est égale à 1 [Megie - 1980]. La fonction de poids *W(P,T)* permet de connaître l'altitude à laquelle on réalise la mesure de concentration. Elle est définit par la relation suivante [Ehret - 2008] :

$$W(P,T) = \frac{\sigma_{on}(P,T) - \sigma_{off}(P,T)}{gM_0} \qquad \textit{(Eq. 38)}$$

avec g la constante de pesanteur, M_0 la masse de l'air sec et σ_{on} - σ_{off} la différence de section efficace d'absorption pour une paire de longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} qui dépend de la température T et de la pression P.

Une fonction de poids peut avoir une largeur de plusieurs kilomètres et couvrir ainsi plusieurs couches atmosphériques. Elle permet donc d'accéder de manière indirecte à une résolution spatiale même lors d'une mesure intégrée colonne. Par exemple, si l'on souhaite déterminer l'évolution de la concentration d'une espèce chimique à travers les différentes couches de l'atmosphère, une approche multi-longueurs d'onde comprenant plusieurs longueurs d'onde λ_{on} soigneusement sélectionnées sera privilégiée.

De plus, les caractéristiques spectroscopiques des raies d'absorption sont déterminantes pour la mesure LIDAR spatiale. En effet, la section efficace d'absorption des raies moléculaires dépendent également de la température et de la pression. Afin de minimiser les erreurs dues aux fluctuations de la température, les raies choisies ont une section efficace d'absorption qui dépend peu de la température [Browell - 1991].

Dans le cadre de ma thèse, nous nous intéresserons aux raies sélectionnées pour le LIDAR spatial de trois gaz : le dioxyde de carbone, le méthane et la vapeur d'eau autour de 2 µm. Deux configurations expérimentales se présentent :

- la mesure LIDAR résolue spatialement au sol pour des distances de l'ordre du kilomètre avec une résolution de 100 m environ ;
- la mesure LIDAR intégrée colonne depuis une plate-forme satellite sur des portées de 500 km environ.

Un code numérique de modélisation de l'atmosphère, présenté dans le paragraphe C.3, a été développé au cours de cette thèse. Il permet de simuler l'épaisseur optique associée à une ou plusieurs espèces dans les conditions normales de pression et température pour des portées différentes. Les résultats présentés dans la suite sont simulés grâce à ce code numérique.

Dans un premier temps, on se place dans un cas où l'on souhaite réaliser des mesures de calibration d'une mission spatiale. Ainsi, les mesures LIDAR sont réalisées depuis le sol avec la technique DiAL résolue spatialement sur des portées de quelques kilomètres. Les longueurs d'onde à émettre alors dans cette configuration doivent répondre aux spécifications données ci-dessus. Pour cela, les épaisseurs optiques associées à chaque espèce d'intérêt (CO_2, CH_4 et H_2O) sont calculées.

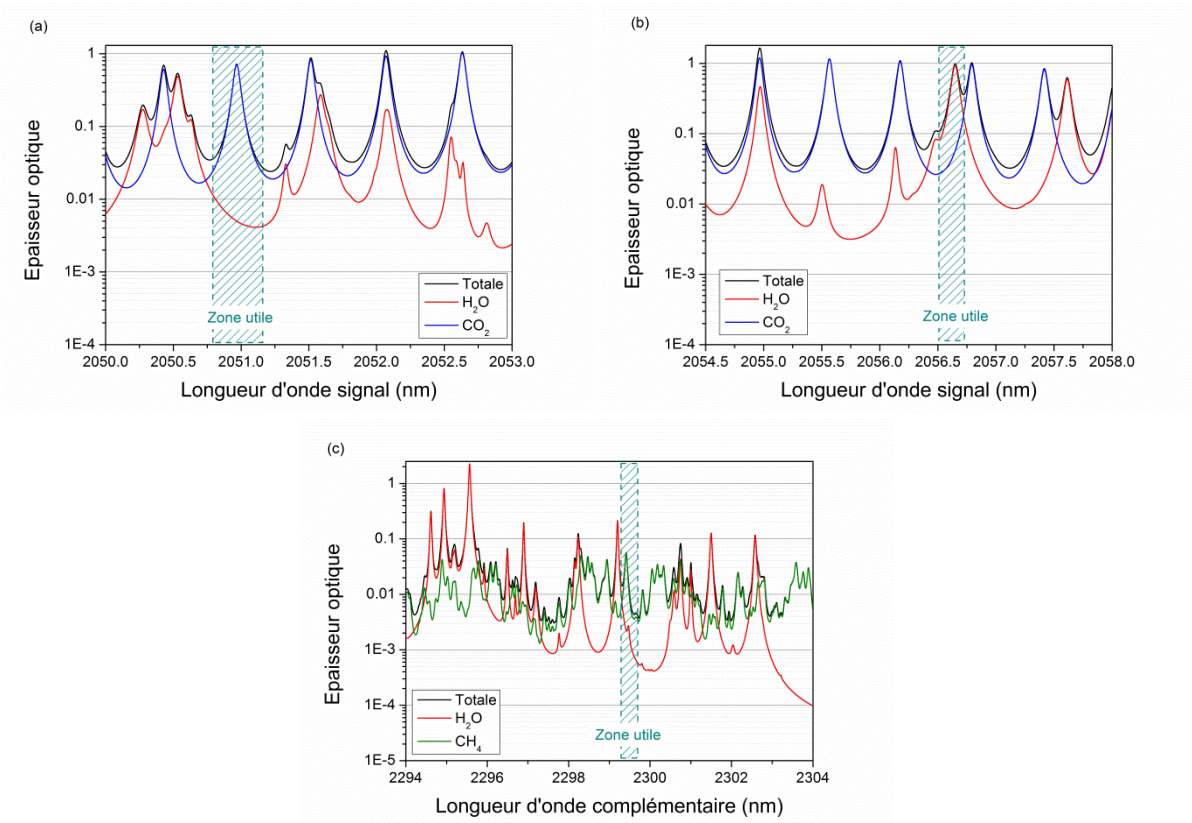


Figure 62 : Calcul des épaisseurs optiques de la vapeur d'eau (en rouge), du dioxyde de carbone (en bleu) et du méthane (en vert) pour une longueur d'onde signal située autour de 2,051 µm (a) et 2,056 µm (b) et pour une longueur d'onde complémentaire autour de 2,3 µm (c) pour une altitude de 1 km dans les conditions normales de pression et température. L'épaisseur optique totale en représentée en noir. Les concentrations respectives du CO_2, CH_4 et H_2O sont 410 ppm, 1,7 ppm et 1%.

La *Figure 62* représente les épaisseurs optiques des trois espèces d'intérêt (CH_4, CO_2 et H_2O) associées à leur gamme spectrale respective et l'épaisseur optique totale résultant de la somme des épaisseurs optiques de chaque gaz simulé. La simulation est réalisée dans les

conditions normales de pression et température pour une altitude de mesure de 1 km avec des niveaux de concentration atmosphérique typiques pour chaque espèce. Comme il a été précisé, en détection directe l'épaisseur optique de la raie associée à la longueur d'onde choisie doit être proche de 1 [Megie - 1980] et les raies sélectionnées doivent être isolées de celles des autres espèces pour éviter les effets d'interférence. Ainsi, les longueurs d'onde à émettre pour chaque espèce d'intérêt pour cette configuration de mesure sont présentées dans le *Tableau 27*.

Espèces	Longueurs d'onde à émettre	Epaisseur optique
CO_2	2050,967 nm	0,72
H_2O	2056,649 nm	0,98
CH_4	2299,411 nm	0,056

Tableau 27 : Choix de la longueur d'onde "ON" à émettre pour les trois espèces d'intérêt dans leur gamme spectrale respective dans une configuration de mesure LIDAR au sol dans les conditions normales de pression et température sur une portée de 1 km.

Pour le dioxyde de carbone et la vapeur d'eau, leur épaisseur optique est proche de 1 au niveau du sommet de la raie située dans la zone utile. Par contre, l'épaisseur optique associée au méthane autour de 2,3 µm est assez faible valant 0,056. Ainsi, sur des portées de l'ordre du kilomètre, il sera plus difficile de réaliser une mesure de calibration depuis le sol sur le méthane atmosphérique.

A présent, nous allons nous intéresser aux longueurs d'onde à émettre dans le cadre des applications spatiales. Les conditions de mesure sont différentes par rapport au cas précédent. En effet, ce sont des mesures LIDAR intégrées colonne sur de très longues distances, typiquement 500 km [Stephan - 2011]. Afin de choisir les longueurs d'onde à émettre dans le cas d'application lidar spatial, les simulations sont réalisées en visée verticale sur une portée de 65 km en concentration atmosphérique pour chaque gaz dans des conditions normales de pression et température. Une altitude maximale de simulation de 65 km est choisie car au-delà de cette altitude la densité en molécules est très faible. Le profil de température et de pression en fonction de l'altitude utilisé pour ces calculs est celui décrit dans le paragraphe C.3.1.

La *Figure 63* représente les épaisseurs optiques associées des trois espèces d'intérêt (CH_4, CO_2 et H_2O). L'épaisseur optique totale est représentée en noir. De la même manière, les longueurs d'onde choisies respectent le mieux possible les spécifications données ci-dessus tout en évitant les interférences avec d'autres espèces. Le *Tableau 28* montre les longueurs d'onde sélectionnées pour les applications LIDAR spatial pour trois des principaux gaz à effet de serre CO_2, CH_4 et H_2O.

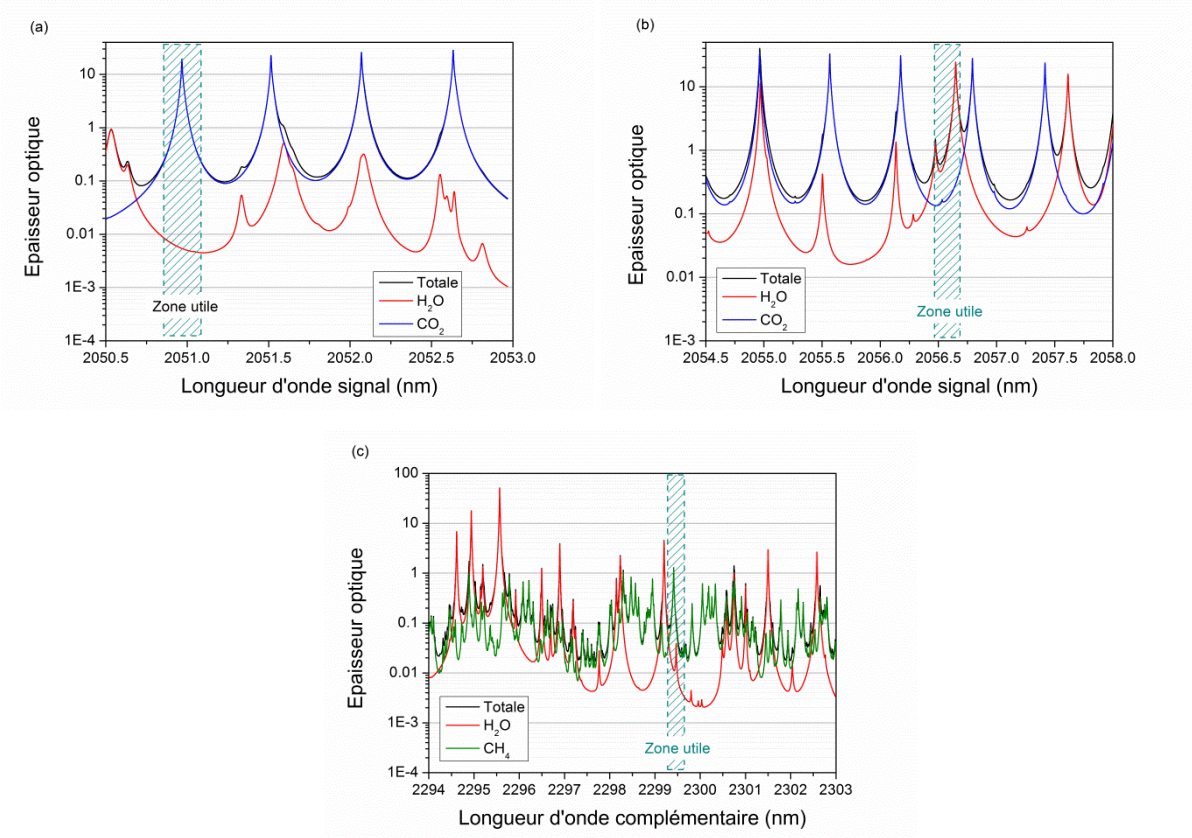


Figure 63 : Calcul des épaisseurs optiques de la vapeur d'eau (en rouge), du dioxyde de carbone (en bleu) et du méthane (en vert) pour une longueur d'onde signal située autour de 2,051 µm (a) et 2,056 µm (b) et pour une longueur d'onde complémentaire autour de 2,3 µm (c) pour des conditions de mesures spatiales (65 km d'altitude et des conditions normales de pression et température). L'épaisseur optique totale en représentée en noir. Les concentrations respectives du CO_2, CH_4 et H_2O sont 410 ppm, 1,7 ppm et 1%.

Les épaisseurs optiques dans le cadre d'une mesure LIDAR spatiale peuvent atteindre des valeurs très élevées autour de 40 au sommet de certaines raies. Ainsi, pour le dioxyde de carbone et la vapeur d'eau, les longueurs d'onde associées à une épaisseur optique proche de 1 sont situées sur les flancs de raie dans la zone utile. Les longueurs d'onde sélectionnées sont cohérentes avec la longueur d'onde fournie par Ehret pour la mesure du CO_2 depuis l'espace étant de 2051,018 nm [Ehret - 2008]. La raie de la vapeur d'eau étant très proche d'une raie du dioxyde de carbone, une seule longueur d'onde conduisant à une épaisseur optique de 1 est accessible. L'épaisseur optique associée au méthane autour de 2,3 µm est de l'ordre de 1,3 au niveau du sommet de la raie. Ainsi, pour des applications spatiales, les longueurs d'onde adaptées à la mesure du méthane sont situées à proximité du sommet de la raie (cf. *Tableau 28*).

Espèces	Longueur d'onde à émettre
CO_2	2050,919 nm ou 2051,017 nm
CH_4	2299,408 nm ou 2299,415 nm
H_2O	2056,568 nm

Tableau 28 : Choix de la longueur d'onde "ON" à émettre pour les trois espèces d'intérêt dans leur gamme spectrale respective pour l'application LIDAR spatiale dont l'épaisseur optique associée vaut 1.

Effet de la turbulence atmosphérique

De plus, une mesure de concentration par LIDAR consiste à comparer le signal rétrodiffusé par les particules de l'atmosphère à deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off}. Pour obtenir une bonne précision de mesure, il faut que les conditions atmosphériques restent identiques pendant toute la durée de l'acquisition. Cependant, la turbulence atmosphérique et le vent provoquent des mouvements des masses d'air et des particules. Ces mouvements font alors varier le signal rétrodiffusé aux deux longueurs d'onde sans cohérence conduisant à une erreur systématique de mesure. Une solution possible afin de pallier ce problème serait de réaliser une mesure simultanée du signal rétrodiffusé à λ_{on} et λ_{off}. Néanmoins, ces deux longueurs d'onde étant proches, il est très difficile de réaliser un filtre optique adapté. Des expériences menées sur le temps de cohérence de l'atmosphère ont montré que l'on pouvait considérer l'atmosphère comme statique sur des temps de l'ordre de 1 ms [Killinger - 1981].

La problématique spatiale

Dans le cas d'une mesure LIDAR par satellite une problématique supplémentaire spécifique aux mesures embarquées apparaît : le mouvement du porteur. En effet, le satellite avance pendant la mesure LIDAR comme illustré sur la *Figure 64*. Dans ces conditions, il est nécessaire de réaliser la mesure de concentration suffisamment rapidement afin de pouvoir considérer que la colonne atmosphérique sondée est identique aux deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off}. Connaissant la vitesse de rotation du satellite autour de la Terre, il existe alors une condition sur la durée de la mesure LIDAR à chaque longueur d'onde. Prenons l'exemple du satellite de télédétection CALIPSO. Ce satellite évolue sur une orbite héliosynchrone à une altitude de 700 km environ. Ainsi il se déplace alors avec une vitesse radiale de l'ordre de 7,5 km/s [Young - 2009]. De même, dans le cadre de la mission MERLIN, le satellite évolue sur une orbite héliosynchrone à une altitude de 500 km environ correspondant à une vitesse radiale d'environ 7 km/s [Kiemle - 2011].

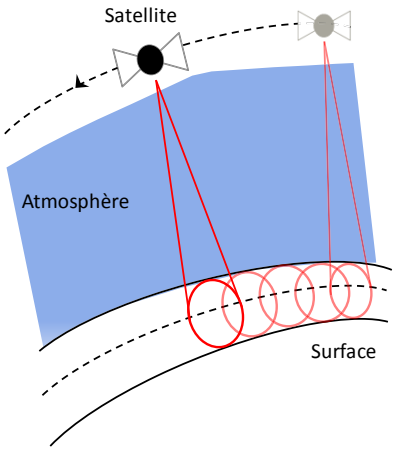


Figure 64 : Mesure LIDAR de puis une plateforme spatiale

En tenant compte des deux limitations décrites ci-dessus, à savoir le déplacement du porteur au cours de la mesure et les effets de la turbulence, la durée d'une mesure de concentration par LIDAR DiAL doit être inférieure à 1 ms. Le temps préconisé par l'agence spatiale européenne entre deux impulsions "ON" et "OFF" est de 250 µs [Rapport A-SCOPE].

Enfin, en vue d'une mission spatiale embarquée l'émetteur doit :

- être compact ;
- être robuste ;
- avoir une faible consommation ;
- être qualifié pour les applications spatiales.

Finalement, la mise en œuvre de LIDAR gaz embarqués à bord de satellite nécessite de disposer d'un émetteur capable de produire au moins deux longueurs d'onde en régime impulsionnel dans une gamme d'énergie de plusieurs dizaines de mJ. Les longueurs d'onde à émettre sont soigneusement choisies suivant l'espèce à sonder et finement stabilisées pour atteindre les précisions de mesure attendues.

C.1.2. Contexte Onera et architecture de l'instrument

Nous nous proposons de réaliser un émetteur multi-longueurs d'onde et multi-espèces dans le cadre des applications spatiales qui sera intégré dans un instrument LIDAR DiAL. L'émetteur est pompé par un laser de pompe YAG commercial mais peu compact et non déplaçable. Cet émetteur est basé sur une technologie NesCOPO.

Cet instrument est constitué des trois blocs suivants :

- le bloc d'émission est décrit dans la partie C.2.
- le bloc de réception est présenté dans la partie C.3.
- le bloc de pilotage et d'acquisition des données est introduit dans la partie C.4.

Pour valider le potentiel de notre technologie, cet instrument sera utilisé pour la réalisation de tests LIDAR DiAL résolus spatialement depuis le sol en détection directe pour les applications de calibration et validation des missions spatiales. Ainsi, au cours de ma thèse les deux axes de travail ont été :

- un travail sur l'émetteur et plus particulièrement l'amélioration des performances émetteur pour aller vers la mesure spatiale ;
- un travail de préparation d'une mesure atmosphérique depuis le sol.

C.2. Potentiel de la solution technologique retenue pour l'application

C.2.1. L'émetteur : en début de thèse

Les techniques actives actuellement en cours de développement ne permettent pas de couvrir un grand nombre d'espèces contrairement aux approches passives comme nous l'avons vu en introduction. Depuis plusieurs années, l'Onera souhaite développer une approche générique pour les LIDAR DiAL multi-espèces. Pour cela, un émetteur à 2 µm en configuration MOPA a été développé en associant un NesCOPO à plusieurs étages d'amplification. Une étude a permis de valider le potentiel de cet émetteur pour les applications LIDAR spatiales dans la gamme 2 µm pour le CO_2 atmosphérique seul [Raybaut - 2009]. Il délivrait des impulsions en régime nanoseconde de 10 mJ à une cadence de 30 Hz. Cependant, l'accordabilité de cet émetteur ne permettait d'adresser qu'une seule espèce : le dioxyde de carbone.

La *Figure 65* représente le schéma expérimental de cet émetteur produisant un rayonnement autour de 2 µm. Il est basé sur une configuration MOPA [Master Oscillator - Power Amplifier]. Cette configuration permet d'obtenir des impulsions de forte énergie dans une gamme spectrale de 15 cm^{-1} au maximum autour de 4875 cm^{-1} permettant la mesure du CO_2 à 2,05 µm pour le signal et 2,21 µm pour le complémentaire associé, tout en conservant une bonne qualité spectrale et spatiale du faisceau nécessaire à l'application LIDAR spatial [Raybaut - 2009].

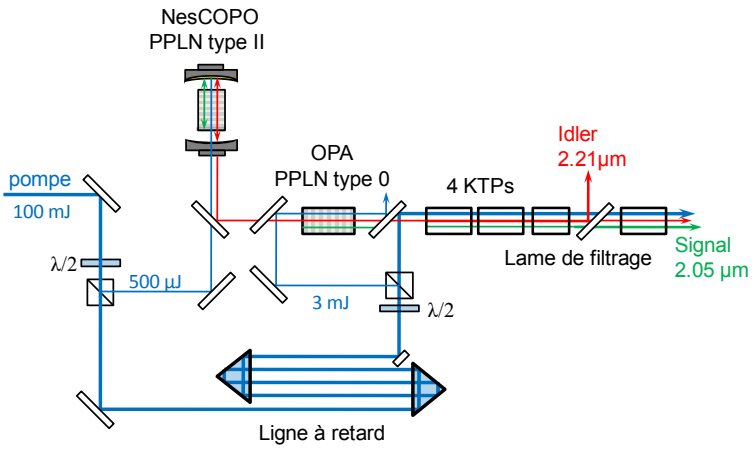


Figure 65 : Schéma expérimental de l'émetteur initial en configuration MOPA à 2,05 µm

L'oscillateur

Le laser de pompe est un laser Nd:YAG Quantel monofréquence asservi en fréquence grâce à un injecteur fibré NP Photonics. Il délivre des impulsions de 100 mJ d'une durée de 12 ns à une cadence de 30 Hz.

Quelques centaines de µJ sont prélevées à ce faisceau afin de pomper l'oscillateur de type NesCOPO. Ce dernier est composé d'un cristal de PPLN de 16 mm de long en accord de phase de type II. L'oscillateur délivre des impulsions de l'ordre de 30 µJ sur l'onde complémentaire qui seront amplifiées par la suite. L'accord de phase en type II permet

d'obtenir une bande de gain étroite même lorsque l'on travaille près de la dégénérescence. Ainsi, avec une dissociation adaptée des cavités signal et complémentaire, l'émission du NesCOPO est monofréquence [Hardy - 2011 b] car les coïncidences exactes périphériques sont rejetées en dehors de la bande de gain, et ne sont donc pas amplifiées dans l'OPO.

L'amplification

L'amplification est constituée de deux étages :

- un étage de pré-amplification composé d'un cristal de PPLN de 12 mm de long fourni par HC Photonics ;
- un étage d'amplification de puissance constitué de quatre cristaux massifs de KTPs, quatre cristaux de 25 mm de long, fournis par cristal laser.

Le premier étage permet de réaliser une pré-amplification de l'onde complémentaire avec un gain de l'ordre de 20 [Raybaut - 2009]. Le faisceau est ensuite amplifié dans la chaine de KTPs. Ces cristaux sont orientés de manière à compenser le walk-off permettant de conserver une bonne qualité spatiale du faisceau.

De plus, une ligne à retard de 10 ns est placée avant l'amplification sur le trajet optique de l'onde de pompe afin de compenser le temps de construction de l'impulsion délivrée par l'OPO et ainsi optimiser le recouvrement temporel entre les impulsions de pompe et complémentaire.

C.2.2. Les améliorations apportées à l'émetteur au cours de ces travaux

Elargissement de la gamme spectrale accessible

Dans l'objectif de réaliser un émetteur multi-espèces basé sur le même schéma expérimental en *Figure 65*, la gamme spectrale accessible par l'émetteur a été élargie en utilisant un nouveau cristal non linéaire multi-pistes et de nouveaux miroirs de cavité au niveau du NesCOPO adaptés à la gamme spectrale d'émission. Ce nouveau cristal est constitué de six réseaux dont les pas varient de 14,369 µm à 15,075 µm. L'ensemble des caractéristiques des cristaux utilisés pour le développement de l'émetteur sont résumées dans le *Tableau 29*.

	NesCOPO	Pré-amplification	Amplificateur haute énergie
Nature du cristal	PPLN en accord de phase de type II	PPLN en accord de phase de type 0	KTPs en accord de phase par biréfringence
Longueur du cristal	16 mm	25 mm	Trois de 25 mm Un de 20 mm
Epaisseur du cristal	1 mm	2 mm	7 mm

Tableau 29 : Caractéristiques des cristaux utilisés pour le développement de l'émetteur

Un cristal préamplificateur plus long de 25 mm de long a été approvisionné pour remplacer l'ancien cristal de 12 mm de long. Une lame de filtrage est insérée dans l'étage d'amplification de puissance. Elle permet d'évacuer l'onde complémentaire entre le

troisième et le quatrième KTP. Les effets de la présence ou non de la lame de filtrage dans la chaine d'amplification de puissance sont étudiés dans le paragraphe suivant.

Ces modifications ont permis d'augmenter la plage d'accord en fréquence de la source. La *Figure 66* montre la plage spectrale parcourue par le NesCOPO grâce à un accord par la température du cristal pour deux réseaux. Les longueurs d'onde émises sont mesurées à l'aide d'un spectromètre Ocean Optics d'une résolution de 7 nm.

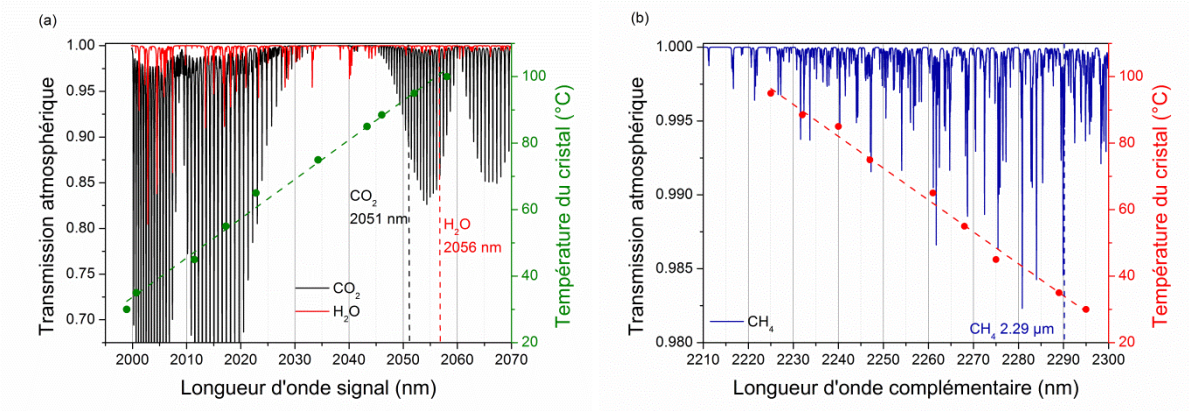


Figure 66 : Accord en longueur d'onde du NesCOPO avec la température du cristal pour l'onde signal sur le réseau 14,369 µm (a) et pour l'onde complémentaire sur le réseau 14,38 µm (b). Les points représentent les données expérimentales. Les lignes continues représentent les simulations HITRAN [HITRAN 2004] du CO_2 (noir), du CH_4 (bleu) et de H_2O (rouge) à concentration atmosphérique sur une distance de 100 m en visée horizontale.

En utilisant le réseau dont le pas vaut 14,369 µm, l'émetteur est capable d'adresser avec l'onde signal les raies d'absorption du dioxyde de carbone et de la vapeur d'eau sélectionnées pour les applications spatiales par accord en fréquence par la température (*Figure 66(a)*). De plus, une raie du méthane est accessible avec l'onde complémentaire à 2,21 µm sur ce même réseau. Par ailleurs, en translatant le cristal afin d'atteindre le second réseau dont le pas vaut 14,38 µm et en jouant sur la température du cristal, la raie d'absorption du méthane d'intérêt pour les applications spatiales est adressable (*Figure 66(b)*).

Espèces	Température du cristal	Pas du cristal	Longueur d'onde émise
CO_2	88,5 °C	14,369 µm	λ_s = 2050,97 nm
H_2O	94,5 °C	14,369 µm	λ_s = 2056,64 nm
CH_4	90 °C	14,369 µm	λ_i = 2211,25 nm
	30 °C	14,38 µm	λ_i = 2292,00 nm

Tableau 30 : Les paramètres de fonctionnement du NesCOPO pour adresser les raies d'absorption du CO_2, CH_4 et H_2O dans le cadre des applications spatiales

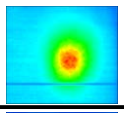
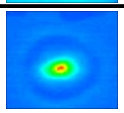
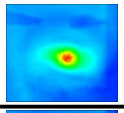
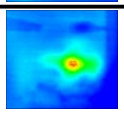
En particulier, l'ensemble des paramètres de fonctionnement du NesCOPO permettant d'adresser les trois principaux gaz à effet de serre sont résumés dans le *Tableau 30*. Cet émetteur est le premier capable d'adresser plusieurs espèces avec un unique émetteur dans le cadre des applications du suivi de concentration des gaz à effet de serre depuis l'espace et fait l'objet d'une publication acceptée dans Optics Letters.

Augmentation du rendement de conversion

L'augmentation du rendement de conversion optique – optique total de l'émetteur s'est déroulée en deux étapes :

1. le remplacement du cristal en PPLN de pré-amplification de 12 mm de long par un cristal en PPLN de 25 mm de long permettant d'émettre 400 µJ typiquement sur l'onde signal ;
2. la limitation de l'effet de saturation en rejetant l'onde complémentaire dans la chaine d'amplification de KTPs.

Effet de la saturation

Nombre de KTPs	Filtre	Energie signal	Profil spatial
1 KTP	Non	3,3 mJ	
2 KTPs	Non	9,6 mJ	
3 KTPs	Non	18,3 mJ	
4 KTPs	Non	13,8 mJ	

Bonne amplification
Bon profil spatial

Amplification
Bon profil spatial

Reconversion
Détérioration du profil spatial

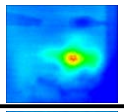
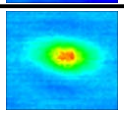
Figure 67 : Mise en évidence de l'effet de saturation en fonction du nombre de KTPs présents dans la chaine d'amplification sur l'énergie extraite et le profil spatial de l'onde signal.

La *Figure 67* montre l'effet du nombre de KTPs présents dans la chaine d'amplification de puissance sur l'énergie extraite et sur le profil spatial de l'onde signal. Sur les deux premiers cristaux de KTPs présents dans la chaine d'amplification, le gain d'amplification est de l'ordre de 3 par cristaux permettant d'extraire jusqu'à 10 mJ environ en conservant une bonne qualité spatiale. Par contre, pour le troisième KTP, on mesure un gain d'amplification légèrement plus faible de l'ordre de 2. Avec les trois cristaux de KTPs présents dans la chaine d'amplification de puissance, l'amplification est en limite de saturation mais le faisceau signal conserve une bonne qualité spatiale. Par contre, en présence des quatre KTPs, l'énergie extraite est presque deux fois moindre qu'avec seulement trois KTPs, accompagnée d'une forte dégradation du profil spatial du faisceau signal.

Effet de la lame de filtrage sur l'efficacité de conversion et la qualité spatiale du faisceau

Afin de limiter cet effet de saturation, il a été choisi de rejeter l'onde complémentaire au cours du processus d'amplification. En effet, il a été démontré expérimentalement que l'évacuation d'une des ondes au cours d'une amplification permettait de repousser les effets de la saturation et le phénomène de reconversion des ondes filles vers l'onde de pompe [Arisholm - 2004]. Pour évaluer le gain apporté par la lame de filtrage, l'énergie extraite et le profil spatial de l'onde signal ont été mesurés dans un premier temps en fonction du nombre de cristal de KTPs présents dans la chaine d'amplification jusqu'à l'observation de la

saturation en *Figure 67*. Ensuite, la lame de filtrage a été insérée afin de limiter les effets de la saturation.

Nombre de KTPs	Filtre	Energie signal	Profil spatial
4 KTPs	Non	13,8 mJ	
4KTPs	Oui	20 mJ	

Amélioration du profil spatial
Energie extraite augmente

Figure 68 : Effet de la lame de filtrage permettant de rejeter l'onde complémentaire sur l'énergie extraite et le profil spatial de l'onde signal.

Pour limiter le phénomène de reconversion se produisant dans le dernier KTPs, la lame de filtrage est insérée entre le troisième et le quatrième KTP. L'évacuation de l'onde complémentaire entre le troisième et le quatrième KTP permet effectivement de repousser les effets de la saturation et le phénomène de reconversion permettant ainsi d'obtenir un gain d'amplification total de l'ordre de 20 dans la chaine de KTPs sur l'onde signal en conservant une bonne qualité spatiale du faisceau comme illustré en *Figure 68*. Notons que cette lame disponible au laboratoire mais non optimisée pour cette application induit des pertes sur la pompe et sur le signal d'environ 7 %, et que l'adjonction d'une lame aux traitements optiques adaptés permettrait d'augmenter davantage le rendement de conversion optique du banc.

Performances optimales de l'émetteur

Les performances de l'émetteur en termes d'énergie extraite et de rendement de conversion sont mesurées au voisinage des raies d'absorption du CO_2, CH_4 et H_2O. Elles sont résumées dans le *Tableau 31*.

Espèces	Longueur d'onde	Energie signal	Energie complémentaire	Energie totale	Rendement total
CO_2	λ_s = 2050,97 nm	20 mJ	17 mJ	37 mJ	37 %
H_2O	λ_s = 2056,64 nm	20 mJ	16 mJ	36 mJ	36 %
CH_4	λ_i = 2211,25 nm	20 mJ	16 mJ	36 mJ	36 %
	λ_i = 2292 nm	20 mJ	17 mJ	37 mJ	37 %

Tableau 31 : Les énergies délivrées par l'émetteur pour les ondes signal et complémentaire et les efficacités de conversion optique totales pour les trois espèces d'intérêt.

A cause des pertes dues aux optiques sur le trajet de l'onde signal, on extrait typiquement une énergie sur l'onde signal supérieure à 18 mJ à 2,05 µm pour une énergie de pompe de 90 mJ dans la chaine d'amplification de KTPs. Sur l'onde complémentaire, il est possible d'extraire jusqu'à 17 mJ pour une énergie de pompe identique. De plus, au niveau de l'étage d'amplification de haute puissance, un rendement optique total typique d'environ 36 % a été démontré.

Par ailleurs, la qualité spatiale du faisceau signal à été caractérisée en réalisant une mesure de son facteur M^2. La méthode utilisée pour réaliser cette mesure est la méthode du couteau. Celle-ci consiste à mesurer le diamètre du faisceau dans les directions horizontale et verticale autour de la position du waist en notant la position transverse du couteau pour une transmission de l'énergie signal de 16 % et 84 % pour différentes positions longitudinales de ce dernier représentées sur la *Figure 69*. Une très bonne qualité spatiale du faisceau est obtenue avec un paramètre $M^2 < 1,1$ dans les deux directions.

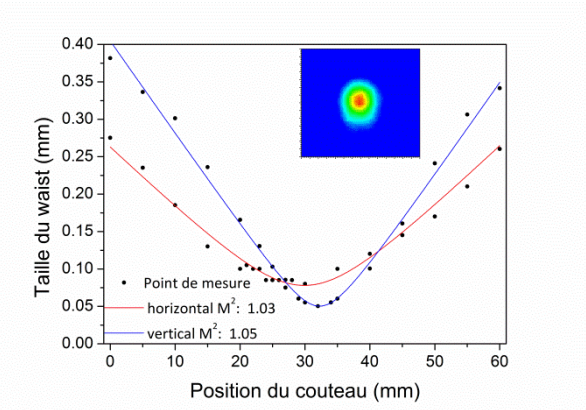


Figure 69 : Mesure du facteur M^2 du faisceau signal amplifié pour les directions horizontale et verticale.

Ces performances sont intéressantes dans le cadre des applications spatiales. En effet, les énergies émises sur l'onde complémentaire sont très proches des 20 mJ nécessaires à la mesure LIDAR directe depuis l'espace du méthane atmosphérique tout en conservant une très bonne qualité spatiale du faisceau [Ehret - 2008]. Pour la détection directe du dioxyde de carbone depuis l'espace, les niveaux d'énergie atteints sur l'onde signal ne sont pas encore suffisants. En réalisant une adaptation du système permettant le pompage de l'architecture MOPA avec une énergie quatre fois plus importante, il serait alors possible d'atteindre le niveau d'énergie requis pour réaliser un suivi de la concentration en dioxyde de carbone à 2,05 µm depuis l'espace par mesure IP-DiAL [Ehret - 2008 ; Caron- 2009]. A présent, nous allons nous intéresser à la stabilité en énergie de l'émetteur sur le court et long terme.

C.2.3. Stabilité en énergie de l'émetteur

Stabilité sur le court terme

Les fluctuations en énergie à court terme sur une durée typique de 10 s ont été mesurées en enregistrant la trace temporelle des impulsions en sortie d'OPO et après amplification à l'oscilloscope. La *Figure 70(a)* présente les fluctuations en intensité de l'onde complémentaire en sortie du NESCOPO. Nous observons de fortes instabilités en intensité de plusieurs dizaines de pourcent sur l'onde émise par le NesCOPO typique du régime de fonctionnement d'un OPO en régime nanoseconde.

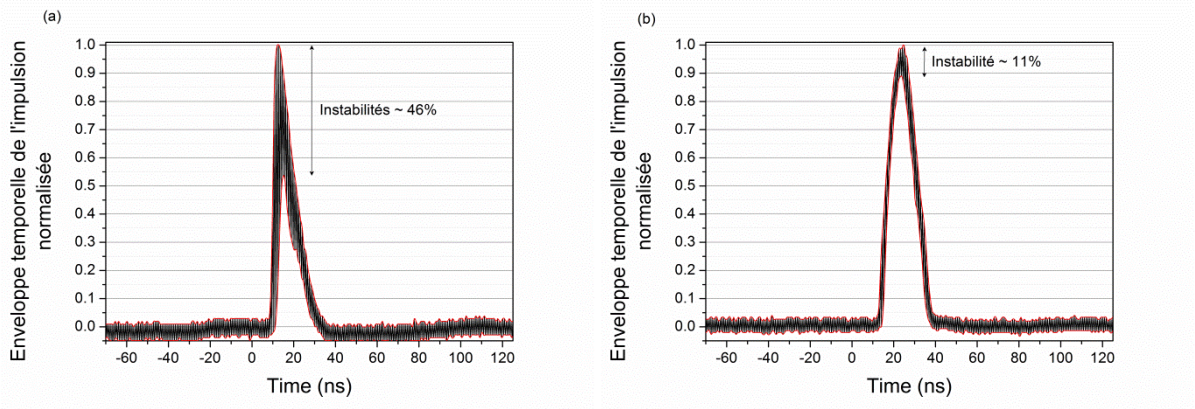


Figure 70 : Mesure de la stabilité de l'énergie signal émise sur 10s en sortie du NesCOPO (a), en sortie de l'OPA (b).

Par contre, les étages d'amplification fonctionnant dans un régime proche de la saturation, les instabilités en énergie du banc sont lissées comme illustré sur la *Figure 70(b)*. Sans stabilisation en fréquence du NesCOPO, nous observons des fluctuations en intensité inférieures à +/- 10 % sur l'onde amplifiée sur une dizaine de secondes.

Stabilité sur le long terme

Les fluctuations à plus long terme sur une échelle de temps de plusieurs heures sont estimées à partir des mesures de l'énergie disponible en sortie du banc. Lié à une instabilité thermo-mécanique, l'émetteur subit des pertes en énergie de près 50 % sur 4 heures typiquement. Celles-ci sont dues, en particulier, aux instabilités en direction du faisceau de pompe et du signal en sortie du banc qui est de l'ordre de 0,6 mrad en vertical et 0,15 mrad en horizontal en 4 heures. De plus, l'acceptance angulaire de l'accord de phase dans les cristaux de KTPs est de l'ordre de 2,9 mrad.cm [SNLO]. Ainsi, cela correspond à une acceptance angulaire de l'ordre de 0,4 mrad pour trois cristaux de 25 mm de long soit un cristal équivalent de 7,5 cm de longueur. Les pertes d'énergie mesurées sur 4 heures sont ainsi cohérentes avec la stabilité en direction des ondes pompe et signal mesurées.

C.2.4. Stabilité en fréquence de l'émetteur

Les caractérisations de stabilité en fréquence sont réalisées tir à tir (ie. à 30 Hz) en utilisant un mesureur de longueur d'onde WSU10 - High Finesse dont la résolution est meilleure que 1 MHz à 100 Hz (donnée constructeur). La gamme spectrale de fonctionnement de cet appareil est comprise entre 350 nm et 1,1 µm. Par ailleurs, cet instrument a été testé et calibré par une source optique de référence asservie sur une transition du rubidium à 780 nm disponible au laboratoire DMPH. Cela nous assure qu'une mesure avec une précision inférieure au MHz est possible avec cet instrument. Pour les ondes signal et complémentaire émises autour de 2 µm, un cristal de KTP est utiliser pour réaliser un doublage de la fréquence signal ou complémentaire et ainsi atteindre la gamme spectrale de sensibilité du mesureur de longueur d'onde.

Stabilité en fréquence en boucle ouverte

Les fluctuations en fréquence de l'émission OPO sur le court terme

Comme nous l'avons vu dans la partie C.1.1, il est important d'assurer une bonne stabilité en fréquence de l'émetteur pour assurer une bonne précision de mesure. Ainsi, la stabilité en fréquence en boucle ouverte, c'est-à-dire sans asservissement des longueurs des cavités signal et complémentaire, a été caractérisée au cours de ces travaux. Les résultats présentés sur la *Figure 71* ont été réalisés au voisinage de la raie d'absorption du dioxyde de carbone. La *Figure 71(a)* montre le comportement spectral tir à tir de l'émetteur sur le long terme.

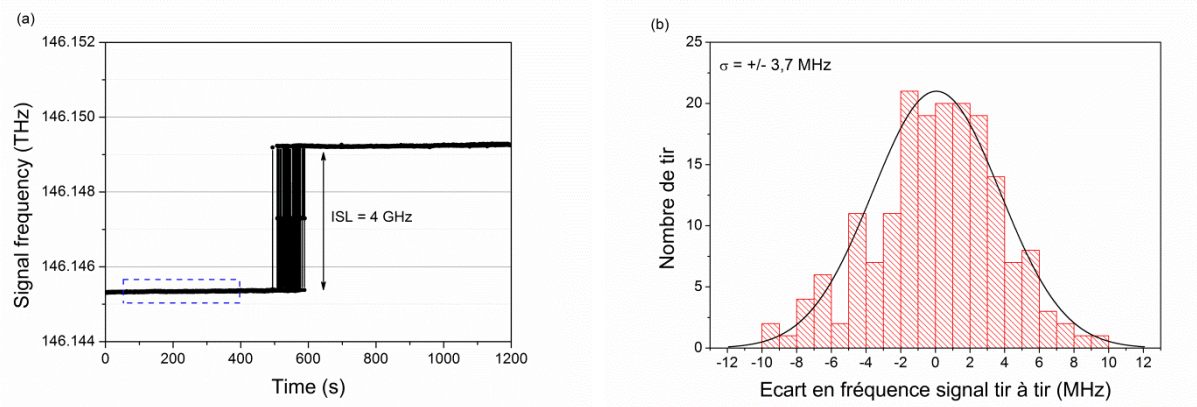


Figure 71 : Stabilité long terme en fréquence de l'onde signal émis par l'émetteur non asservi (a) et stabilité court terme en fréquence sur 10s (b).

Nous remarquons que la longueur d'onde signal émise est stable pendant plusieurs minutes jusqu'à ce que les instabilités thermiques ou les variations de longueur d'onde de pompe soient suffisantes pour provoquer un saut de mode. Par ailleurs, la stabilité tir à tir a été également caractérisée. La *Figure 71(b)* représente l'histogramme de la différence de fréquence signal observée tir à tir pour une fenêtre d'une durée de 10 s. Sur le court terme, la stabilité en fréquence de l'émetteur est meilleure que 6 MHz (rms) et l'écart en fréquence tir à tir est meilleur que 4 MHz (rms).

Espèces sondées	Stabilité en fréquence sur 10 s	Ecart en fréquence tir à tir sur 10 s
CO_2	6 MHz	≈ 4 MHz
H_2O	8 MHz	≈ 4 MHz
CH_4	6 MHz	≈ 4 MHz

Tableau 32 : Stabilité en fréquence et l'écart en fréquence tir à tir sur 10 s associée à chaque gaz à effet de serre mesurable à l'aide de l'émetteur développé.

Des caractérisations identiques ont été menées également au voisinage des raies d'absorption sélectionnées pour les applications spatiales de la vapeur d'eau et du méthane. L'ensemble de ces caractérisations sont résumées dans le *Tableau 32*. L'écart en fréquence tir à tir sur 10 s de 4 MHz rms environ est constant quelque soit la longueur d'onde émise. De plus, une dérive en fréquence comprise entre 2 et 4 MHz rms est observée sur 10 s. Cette dernière est due aux fluctuations en fréquence de la pompe ainsi qu'aux variations en température du cristal de l'OPO.

La dérive en fréquence de l'émission OPO sur plusieurs minutes

Une dérive de la fréquence plus importante est observée de l'ordre de plusieurs dizaines de MHz, pour l'émetteur non asservi sur des temps caractéristiques d'une minute. Cette dérive est due également aux variations de température du cristal non linéaire du NesCOPO et également aux variations de la longueur d'onde du laser de pompe comme illustré en *Figure 72*.

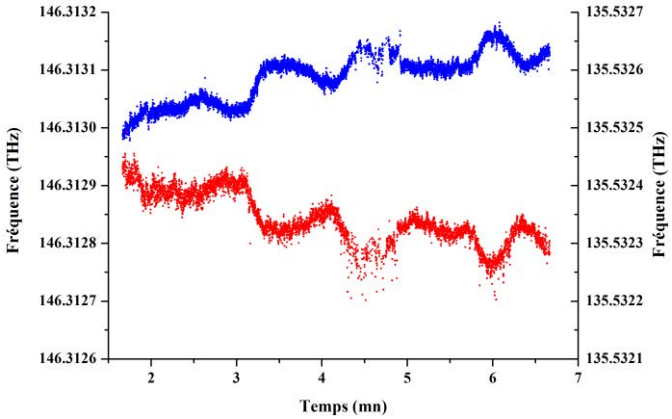


Figure 72 : Enregistrement en parallèle de la fréquence signal (avec le WSU-10 HighFinesse) et de la fréquence complémentaire (avec le WS6 HighFinesse) émises en fonction du temps en boucle ouverte.

Impact de l'alimentation en tension des cales piézoélectrique sur la stabilité en fréquence

Les fluctuations en fréquence sur le court terme sont attribuées en partie au bruit résiduel de l'alimentation haute tension des cales PZT. En effet, cette alimentation conduit à des fluctuations en fréquence de l'ordre de 2 MHz rms sur 10 s. Ces fluctuations ont été estimées à partir d'une mesure de la stabilité en fréquence avec et sans le branchement de l'alimentation des PZT pour une longueur d'onde d'émission signal identique autour de 2,05 µm. Dans la suite, l'accord en fréquence du NesCOPO est piloté par les cales PZT bien que leur alimentation dégrade légèrement sa stabilité. Pour améliorer la stabilité intrinsèque de l'émetteur, il faudrait utiliser des cales PZT moins sensibles au bruit de courant ainsi qu'une meilleure alimentation.

L'émetteur développé est suffisamment stable de manière intrinsèque pour mettre en place une boucle de rétroaction sur les cales PZT pilotant les longueurs de cavité afin de stabiliser la source optique sur des temps caractéristiques plus long. La stabilisation en fréquence et le pilotage du banc émetteur sont en cours de réalisation lors du post-doctorat de D. Mammez. Ce point sera abordé dans la section C.2.

Ainsi, la stabilité en fréquence de l'émetteur est caractérisée par deux grandeurs : la stabilité tir à tir et la dérive en fréquence. Cette dernière est provoquée par la dérive thermique du cristal et la dérive en fréquence du laser de pompe. De plus, les instabilités en fréquence tir à tir sur 10 s sont dues en partie à l'alimentation en tension des cales PZT apportant une contribution d'environ 2 MHz rms. Les 2 MHz restants sont dues à la stabilité mécanique de l'ensemble du banc et à la modulation en fréquence du laser de pompe que l'on utilise dans le paragraphe suivant.

Effet de la modulation en fréquence de la pompe

Comme nous venons de le mentionner le laser de pompe présente une modulation en fréquence propre due à l'asservissement en fréquence de celui-ci à l'aide d'un miroir de cavité monté sur une cale PZT. Le "dither" de la pompe désigne la tension appliquée à la cale PZT par rapport à la position moyenne de cette dernière. La longueur d'onde de la pompe est ensuite asservie par la méthode de minimisation du temps de construction. La valeur de cette tension réglable permet de gérer l'amplitude des modulations en fréquence de la pompe.

L'objectif de cette étude est d'observer expérimentalement l'influence des instabilités fréquentielles du laser de pompe sur la stabilité en fréquence des ondes signal et complémentaire générées par le NesCOPO. Une étude de l'effet de la modulation en fréquence de la pompe sur la tolérance de la double coïncidence a été effectuée expérimentalement comme illustré sur la *Figure 73*. En effet, le dither permet de simuler de façon contrôlée, des fluctuations en fréquence de la pompe $\Delta\nu_p$.

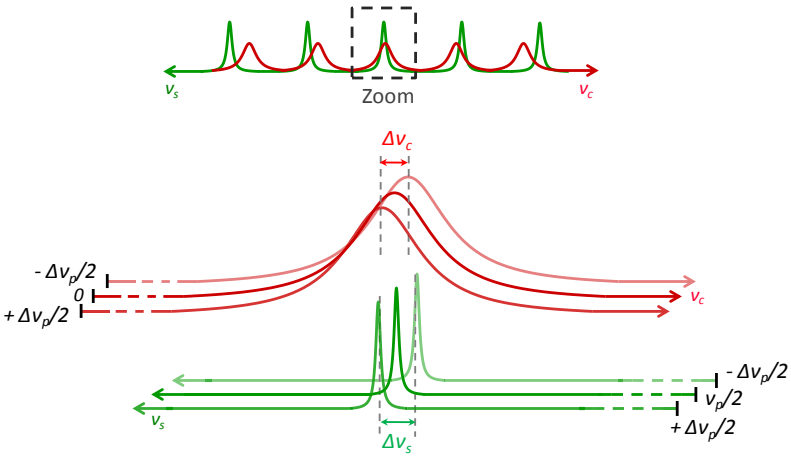


Figure 73 : Principe de l'accord en fréquence du NesCOPO par accord en fréquence du laser de pompe à l'aide du dither. Zoom autour de la coïncidence exacte présente dans la bande d'émission du NesCOPO.

Les résultats sont représentés sur les histogrammes de la *Figure 74*. Pour réaliser cette étude, l'évolution temporelle des longueurs d'onde de pompe, signal et complémentaire est mesurée tir à tir pour différentes valeurs de la modulation en fréquence de la pompe. L'enregistrement temporel de la fréquence de chaque onde est réalisé non simultanément avec le même mesureur de longueur d'onde : WSU10 - High Finesse.

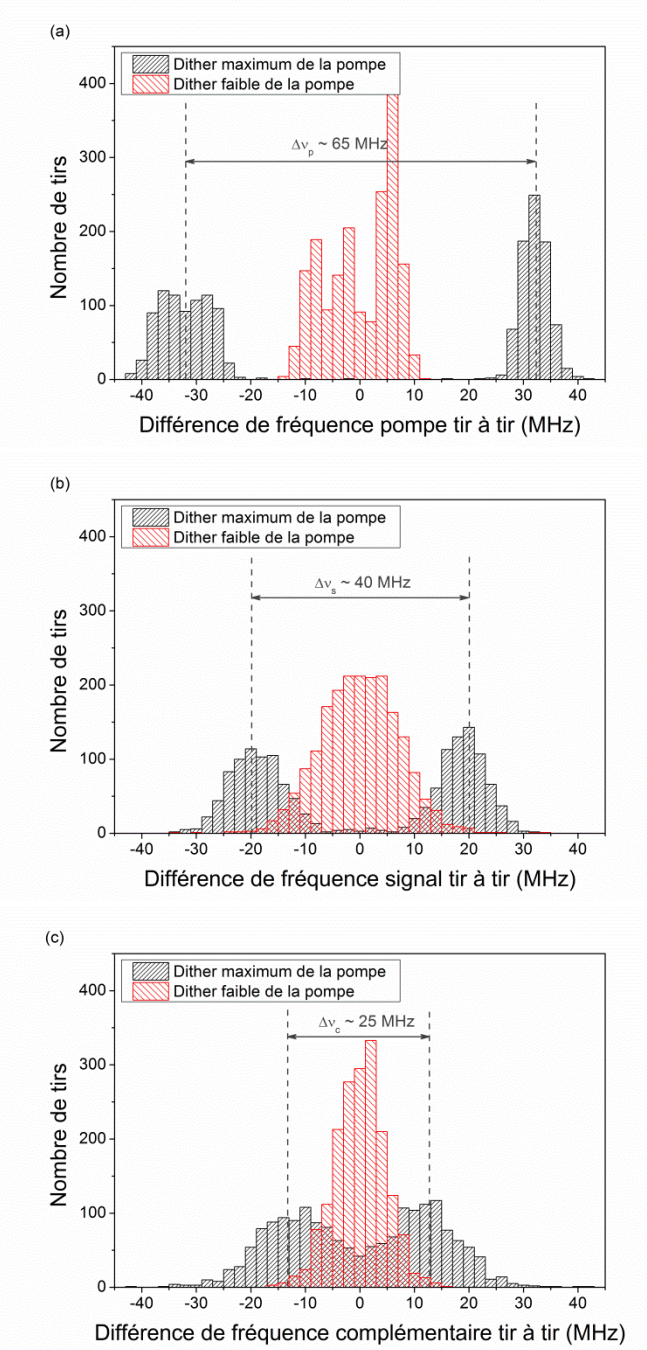


Figure 74 : Etude de l'effet de la modulation en fréquence de la pompe (a) sur les ondes signal (b) et complémentaire (c) générées sans stabilisation de la longueur d'onde sur 10 s pour deux valeurs du dither de la pompe : le dither maximal représenté en noir et un dither plus faible en rouge.

Cette étude montre que les instabilités en fréquence du laser de pompe sont reportées sur les ondes signal et le complémentaire générées. Celles-ci se reportent différemment et semblent légèrement plus affecter l'onde signal que l'onde complémentaire sans stabilisation en fréquence du NesCOPO.

Par ailleurs, on retrouve bien la conservation de l'énergie où $\Delta\nu_p = \Delta\nu_s + \Delta\nu_c$. En effet, dans le cas de la modulation en fréquence maximale, la fréquence pompe tir à tir bouge de 65 MHz induisant des sauts en fréquence de l'onde signal de 40 MHz et de l'onde complémentaire de

25 MHz. Gardons cependant à l'esprit que ces mesures n'ont pas été réalisées simultanément.

Réalisons un calcul simple dans le cas d'une configuration SROPO afin de déterminer l'ordre de grandeur des instabilités en fréquence sur les ondes signal et complémentaire. Pour cela, supposons que la condition d'accord de phase est respectée c'est-à-dire que l'équation suivante est vérifiée : $n_p\Delta\nu_p = n_s\Delta\nu_s + n_c\Delta\nu_c$. Dans ces conditions, en utilisant la conservation de l'énergie, $\Delta\nu_p = \Delta\nu_s + \Delta\nu_c$, on en déduit les relations suivantes :

$$\Delta\nu_s = \frac{n_p - n_c}{n_s - n_c}\Delta\nu_p \qquad \textit{(Eq. 39)}$$

$$\Delta\nu_c = \frac{n_p - n_s}{n_c - n_s}\Delta\nu_p \qquad \textit{(Eq. 40)}$$

avec n_p, n_s et n_c les indices optiques aux longueurs d'onde pompe, signal et complémentaire.

Pour une la modulation en fréquence maximale de l'onde de pompe $\Delta\nu_p$ = 65 MHz, les instabilités en fréquence de l'onde signal et de l'onde complémentaire sont respectivement de 95 MHz et de - 30 MHz d'après ce modèle simpliste. Sous ces hypothèses l'onde signal est plus affectée que le complémentaire par les instabilités de la fréquence de pompe. Cependant, les ordres de grandeur ne sont pas respectés. Plusieurs phénomènes seraient à prendre en compte afin d'expliquer plus finement le comportement spectral des ondes signal et complémentaire :

- la différence de dispersion des indices signal et complémentaire ;
- l'effet de la condition de double coïncidence ;
- l'effet des finesses des cavités signal et complémentaire.

Dans le cadre des applications spatiales nécessitant des stabilités en fréquence inférieures à 2 MHz [Ehret - 2008], il est nécessaire d'avoir un laser de pompe très stable en fréquence pour ne pas reporter son bruit en fréquence sur les ondes signal et complémentaire générées ou bien de moyenner sur deux coups la fréquence signal comme nous le verrons au paragraphe suivant.

C.2.5. La stabilité en fréquence à long terme

Pour répondre aux spécifications des applications spatiales, les performances spectrales de l'émetteur présentant une stabilité en fréquence de l'ordre de 4 MHz rms sur 10 s ne sont pas encore suffisantes [Ehret - 2008]. Dans un premier temps, pour améliorer la stabilité en fréquence à long terme de l'émetteur, une stabilisation en longueur d'onde sur une des longueurs d'onde de la séquence émise a été mise en œuvre. Ce travail a été effectué dans le cadre d'un post-doctorat réalisé par D. Mammez.

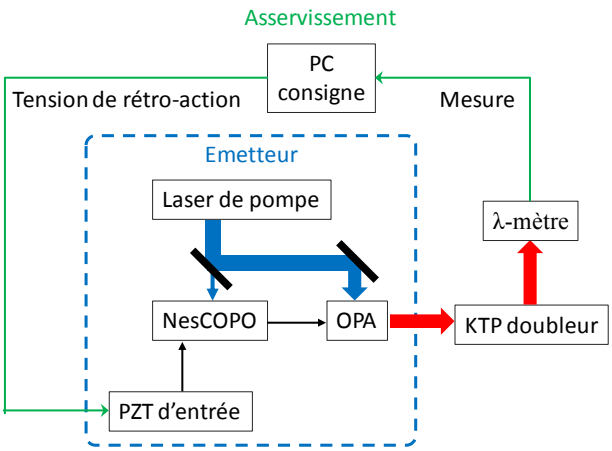


Figure 75 : Schéma du dispositif expérimental d'asservissement.

La *Figure 75* schématise le principe de fonctionnement du dispositif d'asservissement réalisé sur l'onde signal. Comme dans la partie C.2.3, la mesure de la fréquence signal se fait avec le mesureur de longueur d'onde High Finesse WSU dont la précision de mesure est de 1 MHz. Par ailleurs, la mesure est limitée aux longueurs d'onde inférieures à 1100 nm. Par conséquent, le rayonnement signal est doublé en fréquence et injecté dans le mesureur de longueur d'onde. Le fonctionnement de la boucle d'asservissement est basé sur le principe suivant :

- la mesure de la longueur d'onde signal au mesureur de longueur d'onde tir à tir ;
- le calcul de la longueur d'onde signal moyenne sur 30 tirs ;
- le calcul de l'écart de la mesure par rapport à la valeur de consigne fournissant une erreur E ;
- le calcul de la tension de rétroaction à appliquer à la cale piézoélectrique du miroir M_1 (cf. *Figure 19*) proportionnelle au signal d'erreur ;
- l'application de la tension de rétroaction à la PZT du miroir M_1.

La rétroaction est efficace à partir d'un temps caractéristique d'environ une seconde environ. La *Figure 76* compare les performances de stabilité en fréquence de l'émetteur à long terme sans asservissement (en boucle ouverte) et avec asservissement (en boucle fermée). Pour ces caractérisations, la mesure de la fréquence complémentaire est réalisée simultanément à la mesure de la fréquence signal. Pour ce faire, l'onde complémentaire est également doublée en fréquence et ensuite injectée dans un second mesureur de longueur d'onde (modèle WS6 d'une résolution de 25 MHz moins performante). Néanmoins, il est suffisamment précis pour permettre de voir l'effet de la stabilisation en fréquence.

Sans stabilisation de la fréquence signal, des dérives en fréquence opposées de l'ordre de 100 MHz sont observées sur les deux ondes, illustrées sur la *Figure 76(a)*. Ces dérives en fréquence sur un mode sont dues à des instabilités thermiques du NesCOPO et aux dérives en fréquence de la pompe. En boucle fermée, la stabilisation de la longueur d'onde signal se traduit aussi par une stabilisation de la longueur d'onde complémentaire, représentée sur la *Figure 76(b)*. En boucle fermée, la fréquence émise est maintenue sur un mode pendant des temps caractéristiques allant de plusieurs minutes à plusieurs dizaines de minutes.

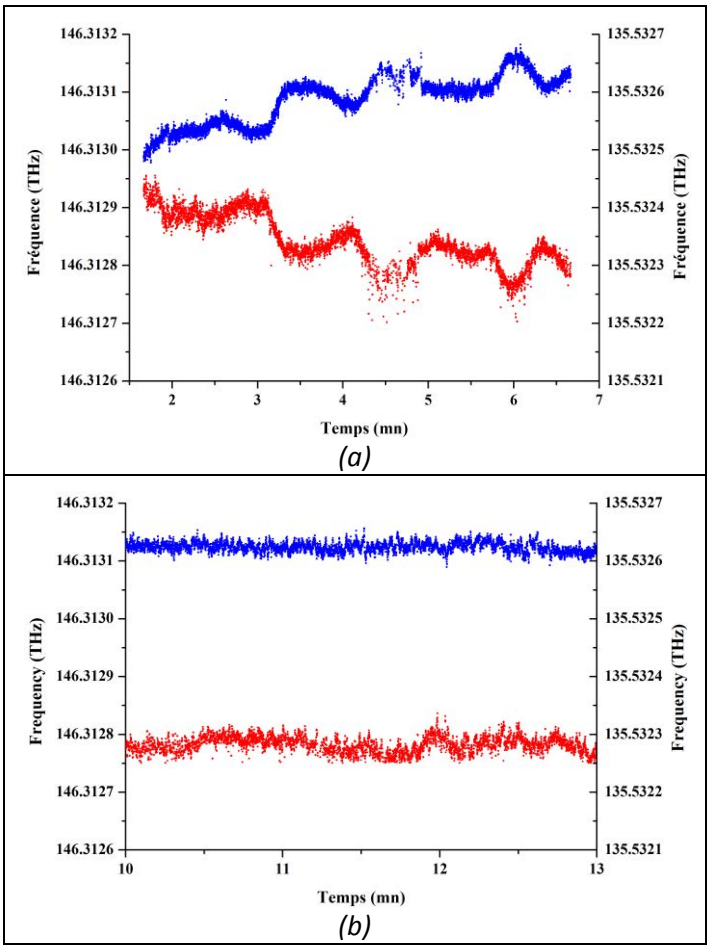


Figure 76 : Enregistrement en parallèle de la fréquence signal et complémentaire émise en fonction du temps en boucle ouverte (a) et en boucle fermée (b). L'onde signal est représentée en bleu et l'onde complémentaire en rouge.

A partir des enregistrements temporels de la longueur d'onde signal, la variance d'Allan a été calculée permettant de caractériser la stabilité en fréquence avec et sans asservissement. La *Figure 77* présente les variances d'Allan des signaux temporels de l'onde signal. Sur les temps caractéristiques d'observation, la stabilité du mesureur de longueur d'onde n'est pas limitante comme illustré sur la *Figure 77* par sa variance d'Allan représentée en noir.

Afin d'évaluer les performances de la boucle de rétroaction, la variance d'Allan est calculée pour un enregistrement en boucle ouverte représentée en rouge. Sur le court terme c'est-à-dire pour des temps caractéristiques inférieurs à une seconde, le comportement spectral de l'émetteur en boucle ouverte et en boucle fermée est identique. L'effet de la modulation en fréquence de la pompe est observable sur les deux premiers points de la variance d'Allan. En effet, en moyennant la fréquence émise par deux impulsions consécutives la variance d'Allan passe de 5 MHz à 3 MHz. Ensuite, pour des temps d'intégration caractéristiques compris entre 0,1 et 1 s, la dérive en température et la dérive de la longueur d'onde de pompe tendent à dégrader la variance d'Allan. Ensuite, les effets de la stabilisation sur la dérive en fréquence est efficace à partir d'un temps d'intégration d'environ une seconde. Ce temps correspond au temps caractéristique de la rétroaction. Par conséquent, la stabilisation permet de corriger des dérives thermomécaniques de l'émetteur à long terme.

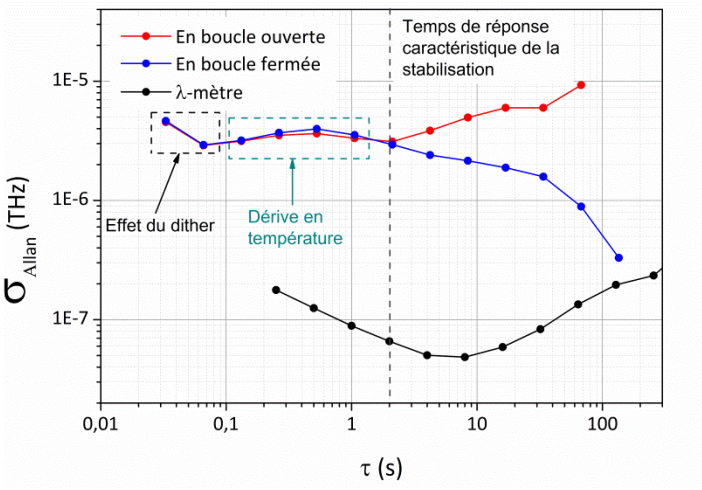


Figure 77 : Variances d'Allan des signaux temporels de l'onde signal avec et sans rétroaction comparées à la variance d'Allan du mesureur de longueur d'onde.

L'utilisation de la boucle de stabilisation associée au mesureur de longueur d'onde, un instrument large bande, permet d'effectuer une stabilisation en fréquence sur toute la plage d'accord du NesCOPO. Néanmoins, les informations fournies par l'instrument de mesure ne concernent uniquement la longueur d'onde centrale émise. En effet, aucune information sur le spectre et notamment sur la pureté de l'émission n'est accessible.

Afin d'améliorer la stabilité à plus long terme (plusieurs dizaines de minutes), il faudrait compenser les dérives de la fréquence de pompe induisant un changement de mode à l'aide d'une stabilisation active du miroir M_2 en utilisant une information sur la pureté. Des tests sont en cours pour déterminer la pureté spectrale de l'émission à l'aide d'une cellule de gaz contenant le gaz à détecter ou bien par mesure du battement avec une diode laser asservie sur une cellule de gaz similaire à la précédente. L'amélioration de la stabilité en fréquence sur le court terme passe par l'amélioration de la stabilité thermique et mécanique intrinsèque de l'émetteur grâce à une rigidification du système.

C.2.6. Accord en longueur d'onde tir à tir

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe C.1.1, dans le cas d'une mesure LIDAR par satellite il est nécessaire de réaliser la mesure de concentration suffisamment rapidement afin de pouvoir considérer que la colonne atmosphérique sondée aux deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} est identique. Réaliser un accord en fréquence tir à tir avec deux impulsions séparées de 250 µs [Rapport A-SCOPE] permettrait de pallier cette difficulté liée aux applications spatiales. Bien que notre laser de pompe ne fonctionne qu'à 30 Hz, nous avons testé la possibilité d'un changement rapide (tir à tir) de la longueur d'onde émise. Il s'agit ici d'un travail préliminaire dont l'objectif est de démontrer le potentiel de notre banc émetteur par la génération des séquences de longueurs d'onde différentes tir à tir.

Principe de la génération de deux longueurs d'onde tir à tir

Pour bien comprendre l'accord en longueurs d'onde tir à tir, dans ce paragraphe nous nous plaçons dans le cas simple de la génération tir à tir de deux longueurs d'onde uniquement.
Tout d'abord rappelons que l'architecture en cavités imbriquées du NesCOPO permet d'obtenir une émission monofréquence grâce à une dissociation adaptée des cavités signal et complémentaire [Hardy - 2011 b]. Par ailleurs, le contrôle de la fréquence émise par l'émetteur se réalise grâce au contrôle des longueurs des cavités signal et complémentaire du NesCOPO. C'est l'accord en fréquence par effet Vernier ou par translation longitudinale des miroirs de cavité détaillée dans la partie A.3.2.

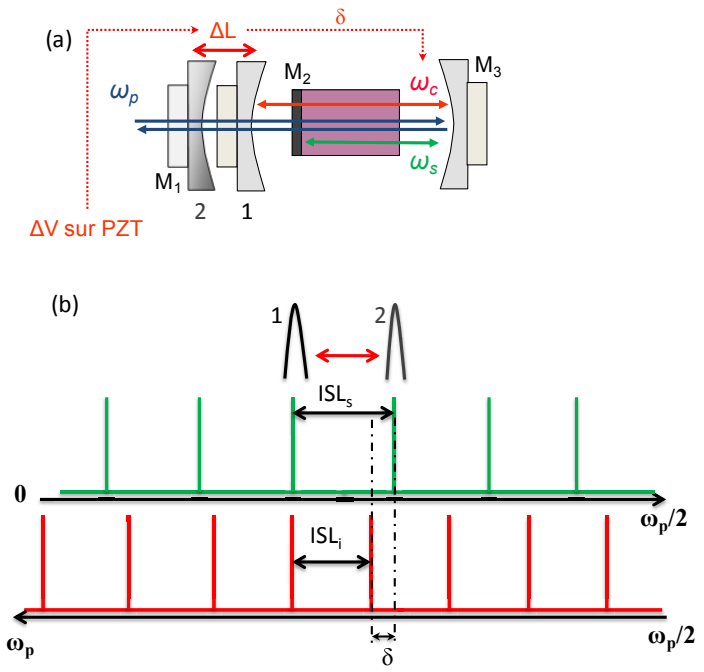


Figure 78 : Représentation du mouvement du miroir M_1 du NesCOPO synchronisé avec les tirs du laser de pompe (a) associé au schéma des coïncidences de modes signal et complémentaire dans l'espace des fréquences (b) pour la génération de deux longueurs d'onde tir à tir. L'intervalle entre deux modes pour une cavité est égal à $\Delta\omega$ = ISL.

Par simplicité, la cavité signal est supposée fixée. Ainsi, pour réaliser la génération de deux fréquences, il suffit de déplacer la cavité complémentaire d'une quantité ΔL permettant de passer d'une coïncidence exacte à la suivante. Cette situation est décrite schématiquement

sur la *Figure 78*. Le mouvement du miroir M_1 modifie la longueur optique de la cavité complémentaire provoquant un déplacement du peigne de modes complémentaire par rapport au peigne de modes signal fixe. Pour émettre deux longueurs d'onde alternées tir à tir, il est nécessaire de déplacer le peigne de modes complémentaire d'une quantité δ de manière à retrouver une coïncidence exacte entre le mode complémentaire voisin et le mode signal voisin comme illustré sur la *Figure 78(b)* [Hardy- 2011 a].

$$\delta = ISL \times D \qquad \textit{(Eq. 41)}$$

$$D = \left| 1 - \frac{L_{complémentaire}}{L_{signal}} \right| \qquad \textit{(Eq. 42)}$$

avec L_{signal} et $L_{complémentaire}$ les longueurs optiques des cavités signal et complémentaire respectivement.

Du point de vue pratique, il suffit d'appliquer une consigne périodique à la cale piézoélectrique de telle sorte que l'écart en tension ΔV entre deux tirs laser permette de réaliser une translation de la cavité complémentaire ΔL telle que :

$$\Delta L = D \times \frac{\lambda}{2} \qquad \textit{(Eq. 43)}$$

avec λ la longueur d'onde signal émise.

Pour cela, il est nécessaire de synchroniser la consigne électrique appliquée aux cales piézoélectriques avec les impulsions du laser de pompe de manière à ce que l'impulsion pompe traverse le NesCOPO au moment où les peignes de mode signal et complémentaire soient sur une coïncidence exacte dans la bande gain.

En théorie, en appliquant des tensions calculées sur ce principe, aux cales PZT des miroirs M_1 et/ou M_2, il est possible de générer des sauts de fréquences arbitraires grâce auxquels le nombre de fréquences générées et l'espacement entre les fréquences est réglable. Calculons la différence de tension à appliquer à la cale PZT du miroir M_1 afin de réaliser un saut de mode correspondant à nos conditions expérimentales. Nous disposons d'un cristal non linéaire de longueur 16 mm, nous permettant d'atteindre un intervalle spectral libre de la cavité signal de 4 GHz. D'après les spécifications constructeur et en supposant un déplacement linéaire des cales piezoélectriques, celles-ci se déplacent de 6 µm pour 100 V.

Par ailleurs, sachant que la dissociation des cavités est de l'ordre de 5 à 10 %, nous pouvons estimer qu'une différence de tension ΔV d'environ 1 V sur la cale complémentaire permet de réaliser un saut de mode. A noter qu'un amplificateur x10 est placé en entrée du module de commande des cales. Ainsi, la différence de tension ΔV à appliquer à l'entrée du module de commande est de 100 mV. Cette valeur théorique est testée expérimentalement dans le paragraphe C.2.6.

La *Figure 79* représente le diagramme en blocs du système de contrôle de l'émetteur pour la génération de séquences de longueurs d'onde tir à tir. Ce système de contrôle est composé de trois blocs :

- ✓ le bloc électronique permettant de synchroniser la position des cales PZT avec les tirs laser ;
- ✓ l'émetteur ;
- ✓ le bloc d'acquisition composé d'un mesureur de longueur d'onde permettant d'enregistrer la fréquence émise par l'émetteur.

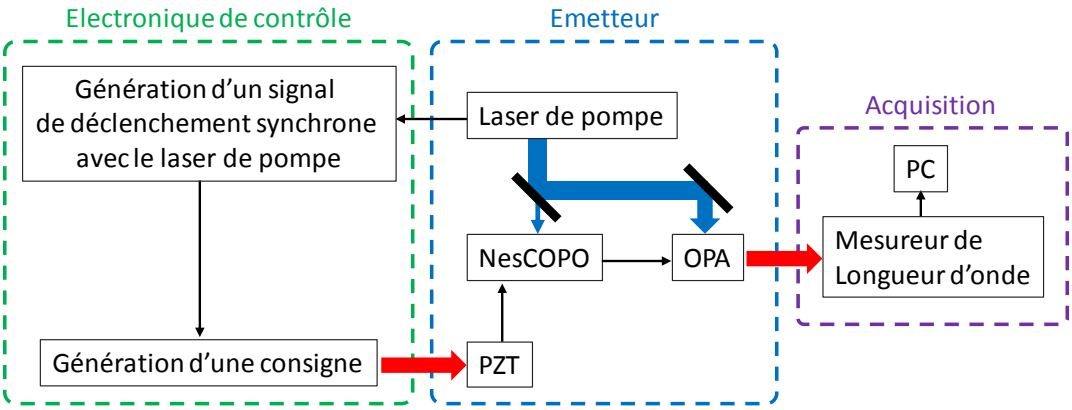


Figure 79 : Diagramme en blocs du système de contrôle de l'émetteur.

La synchronisation de la position des cales PZT avec le tir laser représente la principale difficulté expérimentale. Cette étape consiste à s'assurer que les cales PZT soient à la position voulue lorsque le tir laser est émis dont le principe est schématisé sur la *Figure 80*. Pour ce faire, la méthode de synchronisation utilisée consiste à générer un signal de déclenchement synchrone avec les impulsions laser.

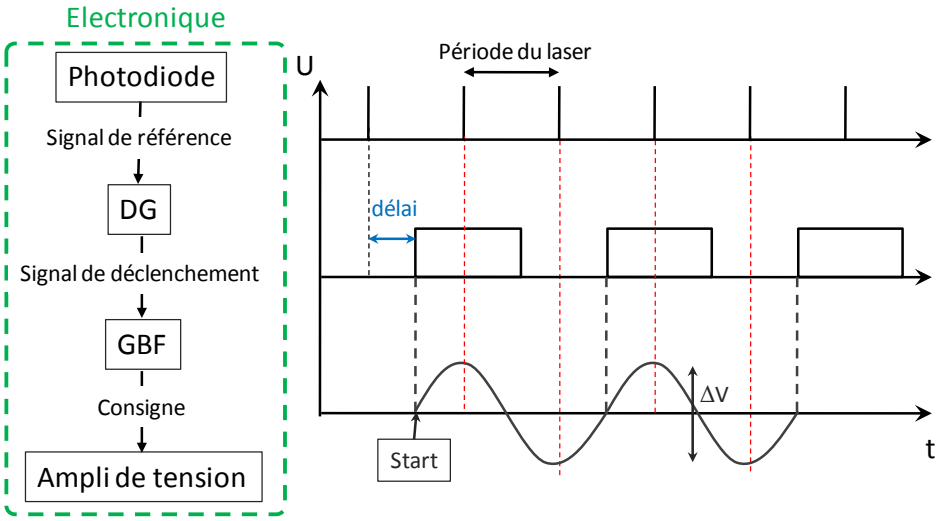


Figure 80 : Représentation schématique du fonctionnement du bloc électronique dans le cas simple d'une génération de deux fréquences tir à tir. Exemple de signal électrique de déclenchement et de signal de consigne dans ce cas particulier.

La procédure générique permettant de passer d'une longueur d'onde à la suivante tir à tir est la suivante :

- A partir du signal de référence temporelle donné par une impulsion laser, un générateur de délai (DG) produit un signal de déclenchement de fréquence variable (en général sous-multiple de la cadence du laser) synchrone avec les tirs du laser.
- Cette porte sert de signal de synchronisation à un générateur basse fréquence (GBF) qui délivre une consigne de forme et de fréquence modulables.
- Cette consigne est amplifiée par un amplificateur de tension afin de délivrer un signal de commande aux cales piézoélectriques.

Selon les besoins, toutes les séquences de longueurs d'onde sont réalisables en adaptant a consigne générée par le GBF et appliquée aux cales piézoélectriques.

Démonstration expérimentale de la génération de deux longueurs d'onde tir à tir

Dans un premier temps, nous générons deux fréquences tir à tir à pour une cadence du laser de pompe de 30 Hz, séparées d'un ISL de la cavité signal égale à 4 GHz en mettant en œuvre la méthode présentée au paragraphe C.2.6. Ainsi, une consigne sinusoïdale d'amplitude 100 mV (correspondant à l'amplitude calculée au paragraphe C.2.6) est appliquée à la cale PZT du miroir M_1. A noter qu'un amplificateur x10 est placé en aval de cette consigne avant application à la PZT. La consigne appliquée à la cale PZT et les résultats de cette expérience sont présentés dans la *Figure 81*.

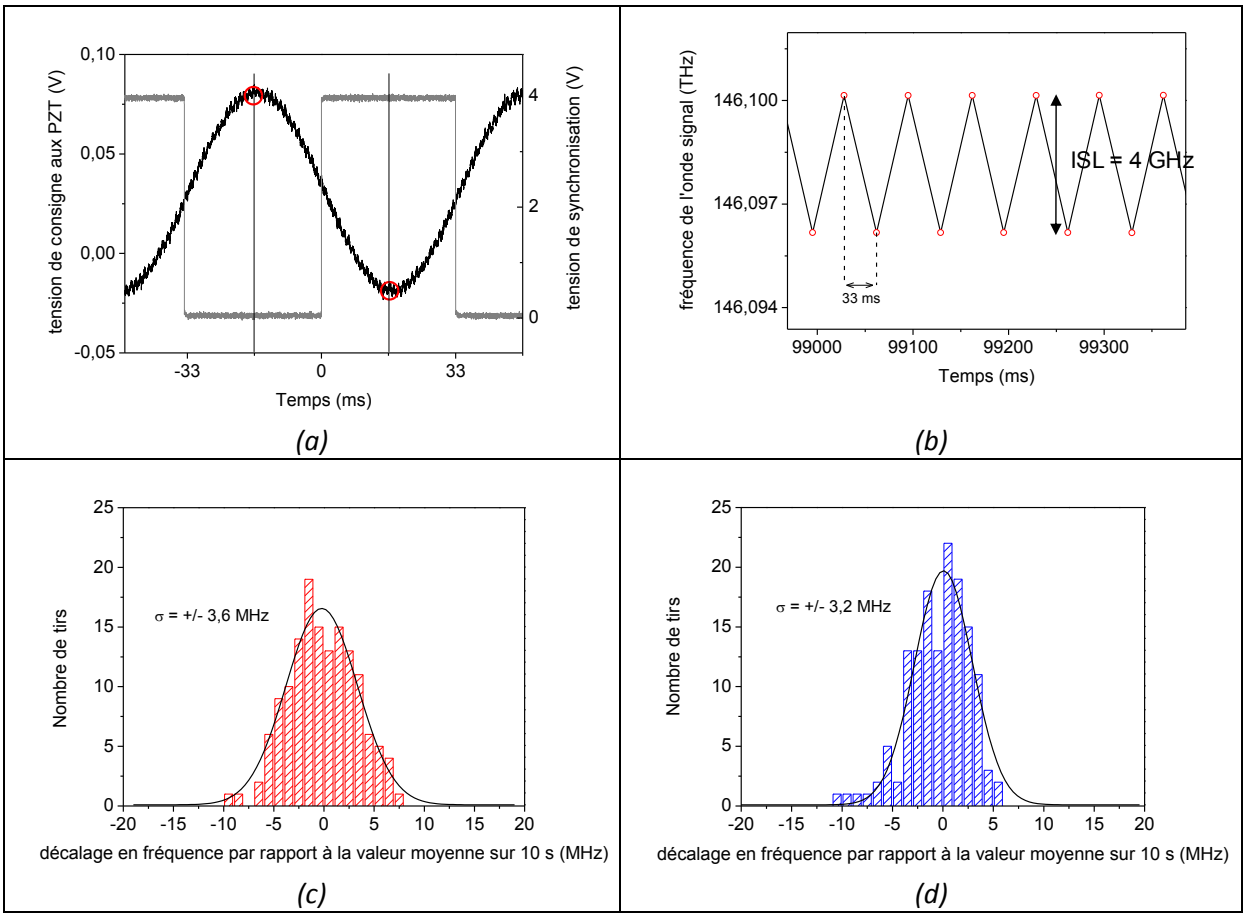


Figure 81 : Visualisation à l'oscilloscope de la consigne sinusoïdale appliquée au module de contrôle de la cale PZT – la synchronisation avec la pompe est telle que les impulsions pompes sont synchrones avec le sommet de la sinusoïde (a), Visualisation des deux fréquences émises à 30 Hz (b), Stabilité de chacune des fréquences émises sur 10 s (c) et (d).

La *Figure 81(b)* montre bien une alternance de deux fréquences signal émises séparées de 4 GHz à une cadence de 30 Hz. La stabilité de chacune des deux fréquences est inférieure à 4 MHz rms sur 10 s. C'est un résultat similaire à celui mesuré pour une seule longueur d'onde émise au paragraphe C.2.4. Ainsi, la stabilité en fréquence intrinsèque de l'émetteur n'a pas été dégradée par la génération de deux longueurs d'onde tir à tir. Par ailleurs, la stabilité de l'écart en fréquence entre les deux modes émis a été caractérisée et vaut +/- 4,3 MHz rms sur 10 s.

Génération jusqu'à cinq longueurs d'onde tir à tir

Dans ce paragraphe nous souhaitons expliquer comment émettre plus de deux fréquences signal tir à tir en ne modifiant que la position de la PZT du miroir M_1 comme pour le paragraphe C.2.6. Pour cela, la consigne appliquée à cette PZT est modifiée de sorte à générer des séquences de trois à cinq fréquences signal séparées de un ou plusieurs ISL signal.

Comme illustré sur la *Figure 82*, il a été démontré expérimentalement l'émission de séquences de cinq longueurs d'onde. Par ailleurs, une étude a été menée afin d'estimer l'effet de la forme de la consigne et l'effet de la gigue temporelle du laser de pompe sur la stabilité en fréquence des séquences générées. Dans cet exemple, les tirs lasers ne sont plus forcément synchrones avec des « sommets » de consigne, mais peuvent être synchrones avec une rampe de tension comme représentés sur la *Figure 82(a)*.

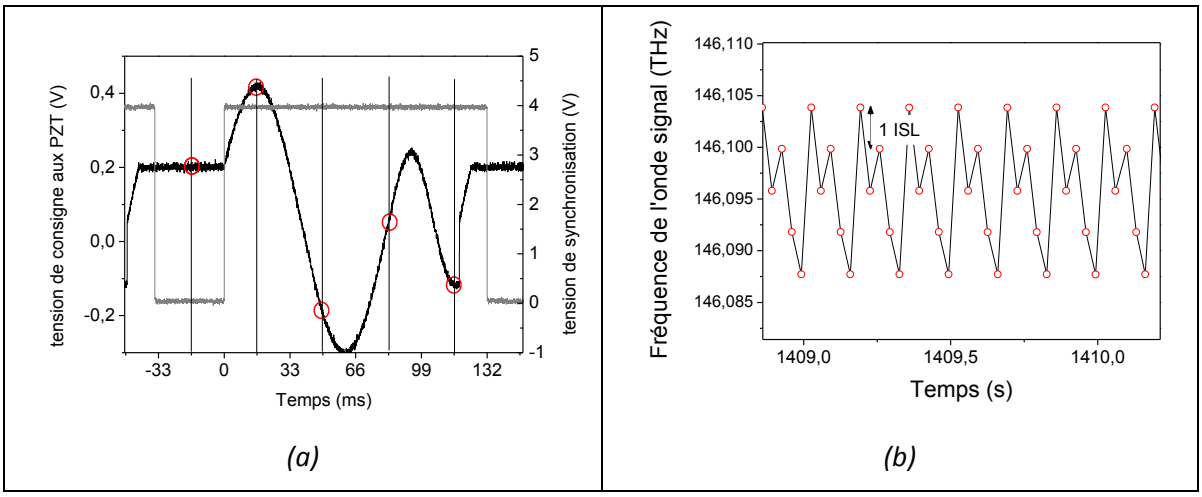


Figure 82 : Visualisation à l'oscilloscope de la consigne appliquée au module de contrôle de la PZT (a) et visualisation des cinq longueurs d'onde émises à 30 Hz mesurées avec le mesureur de longueur d'onde WSU-10 HighFinesse (b).

Sur l'ensemble des cinq fréquences générées, aucune différence de stabilité en fréquence notable n'est observée. Quelle que soit la pente de la tension appliquée à la cale piezoélectrique au moment d'un tir laser, la stabilité en fréquence reste inférieure à 4 MHz rms sur 10 s. Par conséquent, la gigue temporelle du laser de pompe n'est pas le phénomène limitant la stabilité en longueur d'onde des séquences générées.

Théoriquement, il est possible de générer un plus grand nombre de longueur d'onde mais il reste limité tout de même au nombre de modes dans la bande de gain du NesCOPO à température du cristal fixée. Comme représenté sur la *Figure 83*, la bande d'émission de 60 GHz de largeur totale permet d'émettre jusqu'à 16 modes.

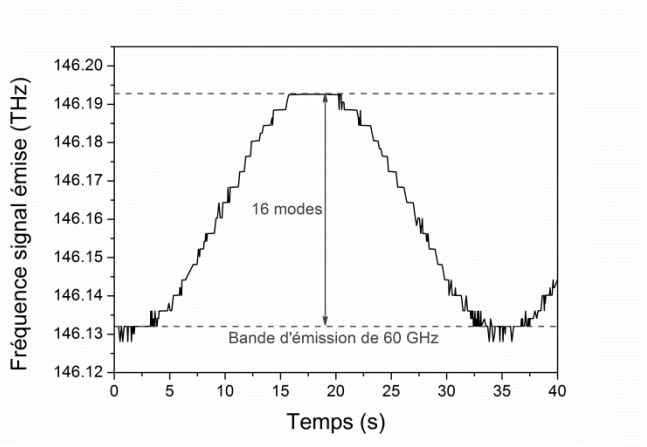


Figure 83 : Bande d'émission signal de l'émetteur autour de la raie R30 du CO_2 mesurée à l'aide du mesureur de longueur d'onde WSU-10 sur le signal doublé en fréquence.

Les expériences réalisées ci-dessus ont permis de démontrer le potentiel de notre approche pour les applications spatiales. Bien entendu, la forme de la consigne reste à adapter pour émettre les longueurs d'onde exactes souhaitées. Par ailleurs, le système doit aussi être couplé à un asservissement permettant de stabiliser au moins une des longueurs d'onde de la séquence. La stabilisation d'une seule longueur d'onde est une solution envisageable permettant de stabiliser les écarts en fréquence entre les deux longueurs d'onde émises. Pour les applications spatiales, le changement de fréquence doit être réalisé en quelques centaines de µs. Ceci n'est pas réalisable actuellement avec notre émetteur limité par la cadence du laser de pompe à 30 Hz. De plus la fréquence de coupure de nos cales PZT est de l'ordre de 1 kHz. Une des perspectives d'évolution du banc émetteur permettant d'atteindre des cadences de l'ordre du kHz serait d'utiliser des cales PZT présentant une fréquence de coupure supérieure à 10 kHz tel que le modèle P-010-00 H en cours d'approvisionnement.

C.2.7. Démonstration du potentiel tri-espèces de l'émetteur

Afin de démontrer le potentiel de l'émetteur pour le suivi de gaz atmosphérique en vue d'une utilisation pour des mesures DiAL, des mesures de transmission en cellule pour le méthane et le dioxyde de carbone ont été réalisées.

La *Figure 84(a)* représente le schéma de principe de la mesure de transmission en cellule pour le dioxyde de carbone. A l'aide d'une lame en CaF_2, quelques µJ de l'onde signal sont prélevées et injectées dans une fibre monomode (SMF28). Cette fibre est dirigée vers un coupleur 25/75 à 2 µm. Une des deux sorties du coupleur est envoyée vers une cellule de gaz fibrée et l'absorption est mesurée à l'aide d'une photodiode en InGaAs. C'est une cellule commerciale multi-passage fibrée de 80 cm de long contenant d'après les spécifications 100 % de CO_2 à une pression de 200 torr (*Figure 84(b)*). La seconde sortie du coupleur est directement connectée à une photodiode en InGaAs fournissant un signal de référence. Ce dernier permet de corriger tir à tir la mesure de transmission des fluctuations en intensité de l'émetteur. Dans le cas de la mesure de transmission de la cellule de méthane, le principe est identique excepté que d'une part, on prélève quelques µJ sur l'onde complémentaire autour de 2,21 µm et d'autre part on utilise une cellule non fibrée de 10 cm de long remplie à 100 % en CH_4 à pression atmosphérique.

Le balayage spectral de la raie d'absorption est réalisé par un accord en fréquence par saut de mode en ajustant la position longitudinale des deux cales PZT comme cela a été présenté dans le paragraphe A.3.2. De la même manière que dans la partie C.2.3, la longueur d'onde est mesurée à l'aide du mesureur de longueur d'onde WSU 10 High Finesse après doublage de la longueur d'onde signal pour le CO_2 ou de la longueur d'onde complémentaire pour le CH_4.

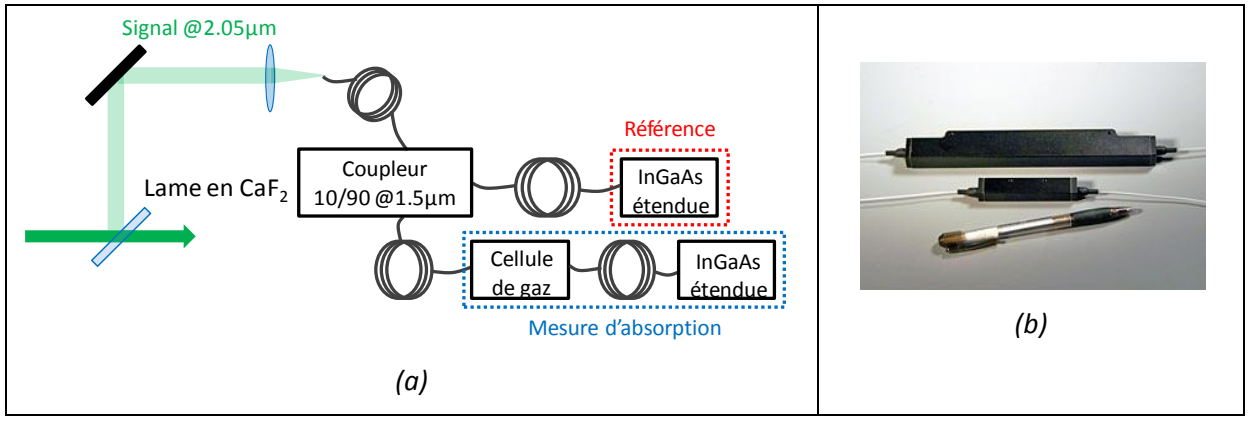


Figure 84 : Schéma de principe de la mesure de transmission en cellule pour le dioxyde de carbone (a) et cellule de gaz fibrée multi-passages (80cm) de chez Wavelength References (b)

La transmission au travers de la cellule correspond à l'énergie moyenne des voies de référence et de mesure moyennée sur 16 tirs. Les résultats expérimentaux obtenus pour les mesures de transmission du dioxyde de carbone et du méthane sont présentés sur les *Figure 85(a)* et *Figure 85(b)* respectivement. Dans le cas du méthane, la transmission théorique représentée en trait plein noir est calculée à partir des données spectroscopiques de la base de données HITRAN et des spécifications des cellules utilisées. La mesure expérimentale de la transmission du méthane est cohérente avec le modèle.

Par contre, si la transmission théorique pour le CO_2 est calculée à partir des spécifications de la cellule, alors en comparant le modèle et les données expérimentales, une différence de transmission de 15 % est observée au sommet de la raie d'absorption. Cet écart de transmission peut s'expliquer par un vieillissement de la cellule. En effet, une hausse de la pression dans la cellule conduit ainsi à une dilution du dioxyde de carbone par l'air atmosphérique. Pour tester cette hypothèse, la transmission de la cellule a été calculée pour une quantité de CO_2 diluée à 80 % dans une cellule d'une pression de 250 Torr. Ce nouveau modèle ainsi que les données expérimentales pour la mesure de transmission du dioxyde de carbone sont représentés en *Figure 85(a)*. Les résultats expérimentaux obtenus sont cohérents avec cette quantité et cette pression de gaz dans la cellule.

En réalisant un accord en fréquence par simple translation des miroirs de cavité à température constante du cristal non linéaire du NesCOPO décrit dans la partie A.3.2, il est possible de couvrir spectralement sur l'onde signal jusqu'à 60 GHz permettant de décrire totalement la raie d'absorption R30 du CO_2 à 2050,97 nm comme illustré sur la *Figure 85(a)*.

La plage spectrale de l'émetteur disponible permet de mesurer le sommet ou les ailes des différentes raies d'absorption. Cette agilité en fréquence nous permet donc de choisir la ou les longueur(s) d'onde appropriée(s) au suivi des gaz à effet de serre dans le cadre d'une mesure spatiale et dans le cadre d'une mesure DiAL au sol.

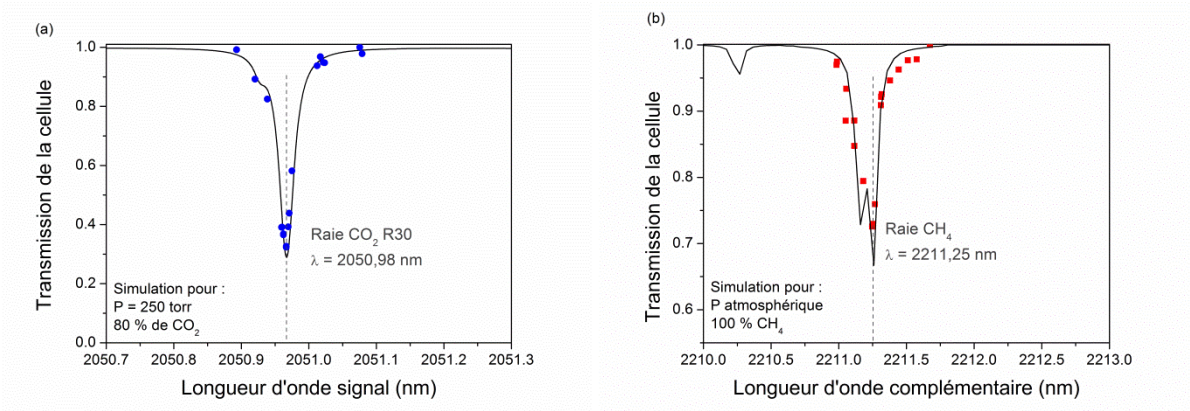


Figure 85 : Transmissions simulée (ligne pleine) et mesurée (points) de la cellule de gaz fibrée contenant du CO_2 (Mélange CO_2 80% et N_2 20% à 250 Torr) (a) et de la cellule massive contenant du méthane (100 % CH_4 à pression atmosphérique) (b).

Par contre, il n'a pas été possible de réaliser une mesure de la transmission de la vapeur d'eau en cellule. En effet, à concentration atmosphérique, la faible section efficace d'absorption de la vapeur d'eau à 2056 nm conduit à une absorption de l'ordre de 3 % correspondant au bruit de mesure présent sur la ligne de base.

Dans le cadre des applications spatiales, les performances obtenues en termes de niveau d'énergie, de qualité spectrale et spatiale sont particulièrement intéressantes en comparaison des spécifications émetteur demandées [Ehret - 2008]. Une démonstration du potentiel tri-espèces de l'émetteur a été réalisé en cellule sur les deux principaux gaz à effet de serre. Les caractéristiques de cet émetteur sont suffisantes pour implémenter l'émetteur dans un instrument DiAL pour la mesure de concentration en gaz à effet de serre (CO_2, CH_4 et H_2O) depuis le sol ou aéroporté. En vue de son utilisation dans un instrument LIDAR, des outils de simulation ont été développés afin d'estimer les performances de cet instrument. Ces outils sont présentés dans le paragraphe suivant.

C.3. Estimation des performances d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement

L'objectif de ce paragraphe est de présenter les outils de simulation nécessaires à l'estimation des performances d'un instrument de mesure LIDAR DiAL résolue spatialement. Pour notre instrument lié aux applications de mesure spatiale et de validation au sol, plusieurs motivations sont à l'origine de ce code numérique :

- dans le cadre de la problématique liée aux essais au sol nécessaires à la validation des concepts pour les futures missions spatiales, l'un des problèmes est de réaliser des mesures DiAL résolue spatialement en détection directe. En effet, en général on réalise des mesures en détection cohérente [Le Rille – 2002 ; Gibert – 2007 ; Spiers - 2011]. Il est difficile d'avoir un ordre de grandeur des performances d'un instrument en détection directe car il existe très peu de publications à propos de mesure LIDAR à 2 µm en détection directe [Sugimoto - 1990]. Ainsi, ce code de modélisation permettra le dimensionnement et la prévision des rapports signal sur bruit avant la réalisation des mesures LIDAR.
- il permettra d'évaluer le potentiel d'une mesure de concentration simultanée sur trois espèces avec l'utilisation de l'onde signal et de l'onde complémentaire.
- il permettra aussi d'estimer la portée. Cette estimation dans le cas d'une mesure LIDAR DiAL sera faite au regard du matériel disponible et des caractéristiques de l'instrument.

C.3.1. Outils de simulation développés

Le but ici est de présenter les outils numériques nécessaires à la modélisation des performances de l'instrument pour une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement et des portées de l'ordre de quelques kilomètres depuis le sol. Pour l'estimation des performances d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement, deux grandeurs sont à modéliser :

- ✓ la puissance rétrodiffusée par l'atmosphère ;
- ✓ les bruits de détection.

Tout d'abord, l'expression de la puissance rétrodiffusée *(Eq. 11)* fournie dans le paragraphe A.1 correspond au cas particulier d'une configuration monostatique où le recouvrement entre l'émission et la réception est maximal et vaut 1 quelque soit la distance d'observation. Or de manière générale cette configuration n'est pas forcément vérifiée. Par conséquent il faut tenir compte du recouvrement spatial entre l'émission et la réception au travers d'une fonction de recouvrement notée *O(r)*. Cette dernière dépend de la distance d'observation r et sera détaillée dans la suite de cette section. Ainsi, l'expression générale de la puissance rétrodiffusée par l'atmosphère dépend de la fonction de recouvrement et s'exprime de la manière suivante :

$$P_r(\lambda, r) = \beta_\pi(\lambda, r) T_{atm}(\lambda, r) T_{op} A_{op} \frac{cE_{inc}}{2r^2} O(r) \qquad \text{(Eq. 44)}$$

Modèle instrument

Modèle atmosphère

Dans l'ensemble de cette partie C.3, le coefficient de rétrodiffusion $\beta_\pi(\lambda, r)$ est considéré comme constant quelque soit la distance d'observation et la longueur d'onde de travail. Le contenu en aérosols de l'atmosphère est très variable en fonction des conditions climatiques et de l'environnement (urbain, rural, désert …). Ainsi, il n'est pas possible de connaître le profil en aérosols de l'atmosphère sans mesure de celui-ci. Nous choisissons d'imposer une valeur typique du coefficient de rétrodiffusion $\beta_\pi(\lambda, r) = 6.10^{-7}$ $m^{-1}.sr^{-1}$ [Sugimoto – 1990 ; Le Rille - 2002].

L'équation *(Eq. 44)* peut se décomposer en deux parties :

- une partie liée à l'atmosphère, la transmission atmosphérique T_{atm} encadrée en bleu ;
- une partie liée à l'instrument encadrée en vert.

La modélisation de la puissance rétrodiffusée nécessite donc deux modèles : un modèle « atmosphère » et un modèle « instrument ». L'instrument pourra être au sol avec une visée au zénith ou en altitude avec une visée au nadir Dans le cas d'une mesure lidar depuis le sol le support de diffusion correspond aux particules de l'atmosphère et la section efficace d'absorption évolue de façon « normale » en fonction de la distance à l'instrument et donc de l'altitude. En effet, plus l'altitude est importante plus la forme de la raie est fine. Dans le cadre d'une mesure lidar aéroportée la surface terrestre représente le support de rétrodiffusion. Il faudra tenir compte également de l'évolution de la section efficace d'absorption en fonction de la distance au porteur et donc de l'altitude qui se trouve être le cas inverse de la mesure depuis le sol. En effet, cette fois plus la distance au porteur est grande, plus l'altitude est petite.

Par ailleurs, les performances de l'instrument dépendent du rapport signal sur bruit de la mesure de la puissance rétrodiffusée. Par conséquent, le code développé dont l'architecture générale est représentée sur la *Figure 86*, nécessite un troisième modèle associé au bruit de détection.

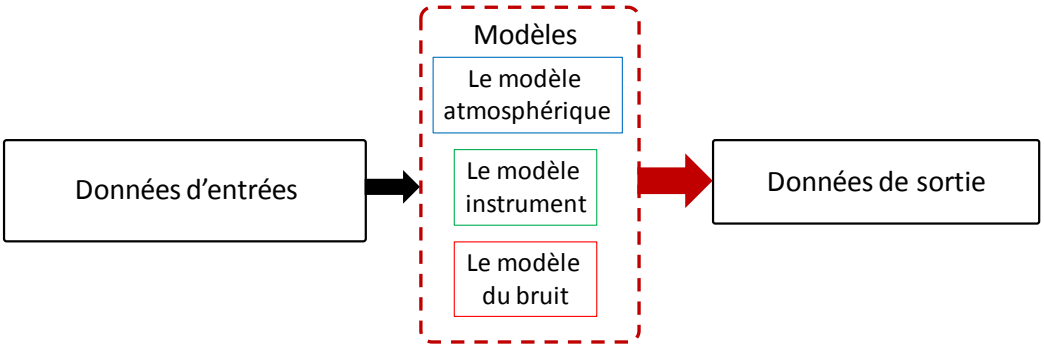


Figure 86 : Architecture en blocs du code de simulation.

Dans la suite de cette section, chacun de ces modèles est décrit et détaillé :

- le modèle atmosphérique ;
- le modèle instrument ;
- le modèle du bruit.

Le modèle atmosphérique

L'architecture du modèle atmosphérique représentée sur la *Figure 87* permet d'obtenir une estimation de la transmission atmosphérique pour une distance d'observation donnée. Le modèle développé est un modèle raie par raie basé sur le calcul exact de l'absorption des différentes raies considérées. Cette méthode de calcul est précise mais elle est relativement lente car les raies d'absorption d'intérêt sont toutes modélisées. Il est possible également d'estimer l'absorption et/ou l'épaisseur optique associées. Ce modèle nécessite les données d'entrée suivantes :

- les espèces concernées (le nombre et le type) ;
- l'altitude d'observation ;
- les données spectroscopiques associées aux espèces d'intérêt ;
- les profils de pression, température et humidité.

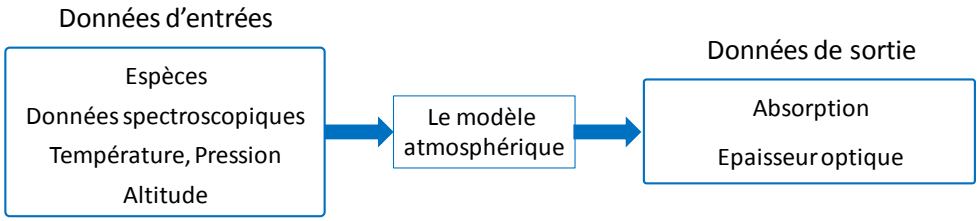


Figure 87 : Architecture en blocs du modèle atmosphérique.

<u>*Modèles standards de pression et température*</u>

Le modèle de la température atmosphérique utilisé est le modèle standard US, illustré sur la *Figure 88(a)* correspondant aux conditions des zones de moyennes latitudes. Les variations de la température atmosphérique sont brusques et importantes. En effet, sur les dix premier kilomètres constituant la troposphère, la température baisse de 70 °C. Ensuite, la température augmente dans la stratosphère jusqu'à 46 km.

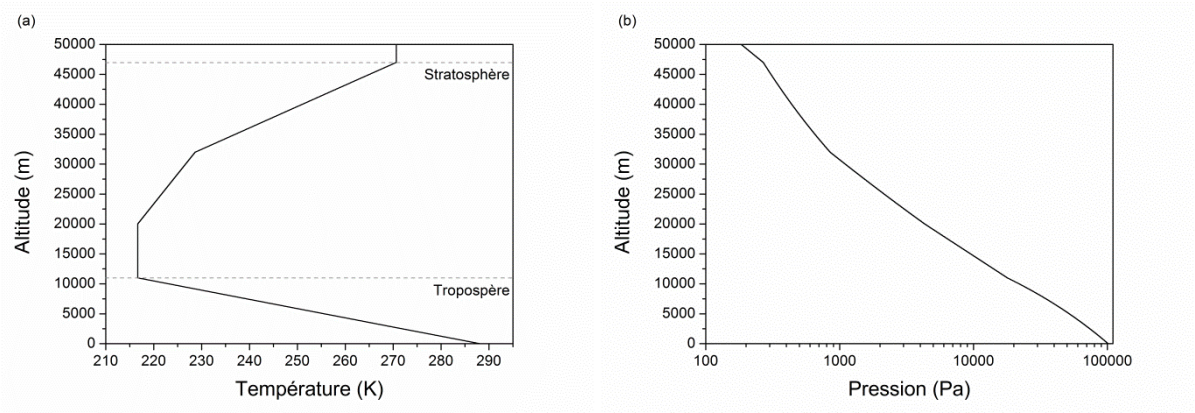


Figure 88 : Le profil de température atmosphérique (a) et le profil de pression atmosphérique (b) jusqu'à une altitude de 50 km.

La pression atmosphérique décroît depuis la surface de la Terre jusqu'à la mésosphère c'est-à-dire 80 km d'altitude. Le modèle de pression utilisé s'appuie sur les conditions moyennes de pression de l'ensemble du globe. La pression atmosphérique en fonction de l'altitude r s'exprime de la manière suivante :

$$P(r) = P_0 exp\left(-\frac{gM_0 r}{RT(r)}\right) \qquad \textit{(Eq. 45)}$$

avec $P_0 = 101325\ Pa$ est la pression atmosphérique, $g = 9{,}80665\ m.s^{-2}$ est l'accélération de pesanteur, $M_0 = 0{,}0289644\ kg.mol^{-1}$ est la masse molaire de l'air sec, $T(z)$ est le profil de température et $R = 8{,}31447\ J.mol^{-1}.K^{-1}$ est la constante des gaz parfaits.

La *Figure 88(b)* montre l'évolution de la pression atmosphérique en fonction de l'altitude jusqu'à 50 km. La pression atmosphérique dépend de la température et de l'humidité relative. Afin d'obtenir un profil de pression précis et fiable, il est nécessaire de connaître ces deux paramètres. Ce profil de pression a été calculé pour une température au sol de 15 °C et sans tenir compte de l'humidité relative. Dans le cadre de notre mesure LIDAR, la pression atmosphérique, la température et l'humidité relative sont des données a priori. De plus, la pression atmosphérique dépend également des conditions climatiques (par exemple : des conditions anti-cyclonique ou de dépression). L'ensemble de des incertitudes associées à ces paramètres introduisent des biais dans l'estimation de la concentration en espèce.

Prise en compte du profil d'humidité

Le modèle atmosphérique utilisé ne tient pas compte du profil d'humidité de l'atmosphère car il n'existe pas de modèle universel de l'humidité atmosphérique. En effet, ce profil d'humidité est extrêmement variable en fonction des conditions climatiques, de l'altitude et de la latitude.

Or, la pression atmosphérique dépend de l'humidité relative comme nous l'avons mentionné. Ces incertitudes sont sources d'erreurs pour l'estimation de la concentration. Il serait possible d'améliorer le modèle en y introduisant un profil moyen de l'humidité en fonction de l'altitude.

Données spectroscopiques

De plus, il est nécessaire de connaître les données spectroscopiques des espèces sondées et de interférents présents afin d'en déduire la transmission atmosphérique à toutes longueurs d'onde. Nous avons choisi d'utiliser la base de données HITRAN 2012. Cette base nous fournie les données suivantes :

- la force de raie S ;
- la position de la raie c'est-à-dire la fréquence centrale ν_0 ;
- les coefficients d'élargissement naturel (ou radiatif) γ_{rad} et collisionnel γ_{col} ;

Ces diverses données permettent de calculer l'absorption à une longueur d'onde donnée. Par ailleurs, la transmission atmosphérique donnée dans la partie A.1 au travers de l'équation *(Eq. 44)* s'exprime également à partir de l'épaisseur optique ou de l'absorption. En effet, elle s'exprime en fonction de l'épaisseur optique de la manière suivante :

$$T(\lambda, r) = exp(-\tau_\lambda) \qquad \textit{(Eq. 46)}$$

De plus, une relation simple relie l'épaisseur optique τ_λ à l'absorption α_a :

$$\tau_\lambda = \int_0^r \alpha_a(\lambda) dr' \qquad \textit{(Eq. 47)}$$

$$\alpha_a(\lambda) = N \times S \times f(\lambda) \qquad \textit{(Eq. 48)}$$

avec *N* la concentration en espèce et *f(λ)* le profil de la raie d'absorption.

Dans le cadre d'une modélisation atmosphérique, la forme de raie est modélisée par un profil de Voigt défini comme le produit de convolution entre un profil Gaussien et un profil Lorentzien. L'expression de la forme de raie ainsi que ses propriétés sont explicitées en annexe C.

Un exemple de sorties fournies par le modèle atmosphérique est donné en *Figure 89*. Tout d'abord la *Figure 89(a)* montre l'évolution du profil de raie simulé pour deux altitudes au sol et à 50 km. Le profil des raies d'absorption simulé est cohérent avec la théorie.

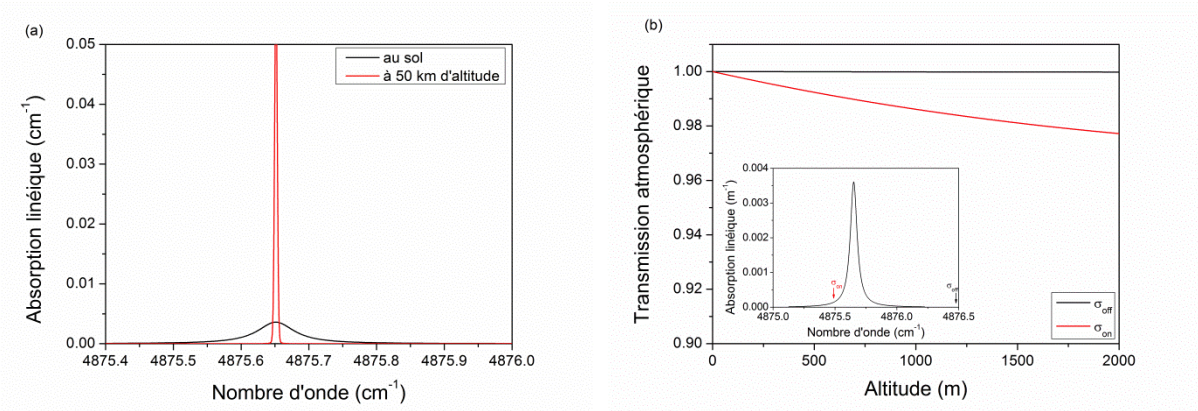


Figure 89 : Modélisation de l'absorption de la raie R30 du CO_2 pour deux altitudes : au sol et à 50 km (a) et modélisation de la transmission atmosphérique en fonction de l'altitude pour une longueur d'onde ON et une longueur d'onde OFF (b). (En insert : la raie d'absorption R30 du CO_2 modélisée au sol avec le positionnement des deux longueurs émises.)

Par ailleurs, ce modèle permet effectivement d'obtenir la transmission atmosphérique en fonction de l'altitude pour différentes longueurs d'onde émises comme illustré sur la *Figure 89(b)*. La modélisation de l'atmosphère nécessite de connaître à priori les conditions de pression, température et humidité lors d'une mesure. Cependant, des différences notables entre cette connaissance à priori des conditions et les conditions réelles de mesure conduisent à des biais de mesure en fonction de l'altitude. Néanmoins, cet outil de simulation permet de réaliser :

- ✓ des simulations de spectres d'absorption mono-espèce ou multi-espèces ;
- ✓ de simuler la transmission atmosphérique.

Le modèle instrumental

L'architecture globale de ce modèle est représentée sur le schéma blocs de la *Figure 90*. Il est constitué de deux blocs : l'émetteur et le récepteur ; et il nécessite de connaître plusieurs paramètres d'entrée :

- ➢ les paramètres d'émission ;
- ➢ les paramètres de réception ;
- ➢ la configuration émission / réception c'est-à-dire le positionnement de l'émission par rapport à la réception.

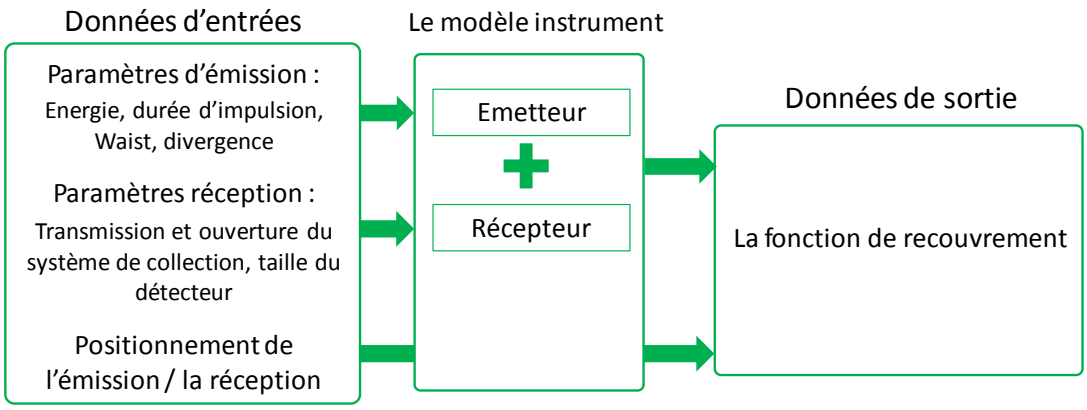


Figure 90 : Architecture en blocs du modèle instrumental.

L'hypothèse forte faite dans le cadre de ce modèle instrument concerne le front d'onde du faisceau. En effet, il est considéré comme plan et non gaussien. On suppose également que quelque soit la portée de l'instrument, le système de réception est un système de collection du flux. Dans la suite du paragraphe, nous allons détailler le calcul de la fonction de recouvrement à partir des caractéristiques de l'émission et de la réception.

Modélisation de l'émission et de la réception

Tout d'abord, afin de modéliser le bloc d'émission, il nous suffit de connaître les paramètres d'émission du faisceau :

- l'énergie et la durée d'une impulsion ;
- la taille du waist et la divergence du faisceau.

A partir de la connaissance de la taille du waist du faisceau et sa divergence, nous en déduisons l'angle solide d'émission de ce système. Un exemple de propagation du faisceau d'émission est représenté sur la *Figure 91(b)* par le cône en trait plein noir pour un waist du faisceau émis de 20 mm et une valeur du facteur M^2 égale à 2. La divergence du faisceau est calculée à partir de ces deux données.

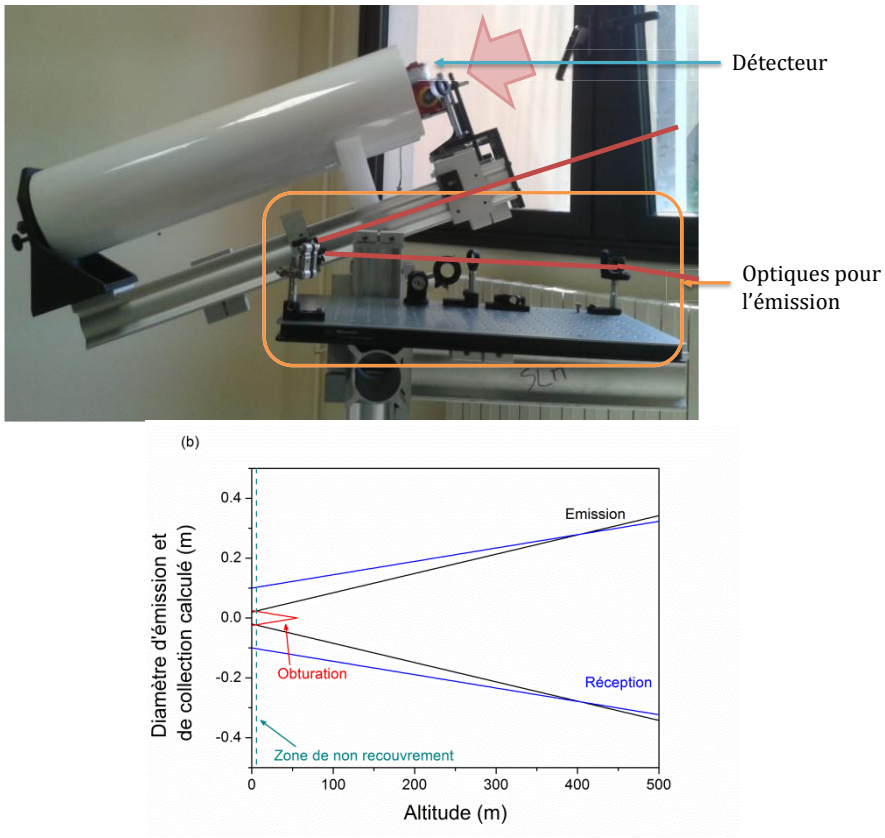


Figure 91 : Photo du système de réception (a)et évolution des divergences de la réception et de l'émission jusqu'à une altitude de 500 m (b)

De plus, afin de pouvoir modéliser le bloc de réception les paramètres à connaître sont les suivants :

- la transmission et l'ouverture du système optique de collection ;
- la taille du détecteur utilisé.

Le bloc de réception est constitué des composants disponibles au laboratoire (optique de réception et détecteurs). La photographie du bloc de réception est présentée sur la *Figure 91(a)*. Le bloc de réception est composé d'un télescope de 200 mm d'ouverture avec une obturation centrale de 50 mm couplé à une lentille de focalisation et un détecteur. La focale équivalente de l'ensemble {télescope + lentille} est de 280 mm. L'ensemble des détecteurs disponibles au laboratoire à tester sont listés dans le *Tableau 33*.

Détecteur	Diamètre de la surface sensible	Gain trans-impédance	Sensibilité	NEP	Bande passante
MCT refroidi à l'azote liquide	1 mm	/	1.10^{3} V/W	3.10^{-12} W/Hz$^{1/2}$ à 13 µm	700 kHz
Photodiode Femto	0,3 mm	1.10^{5} V/A	1,3 A/W	3.10^{-12} W/Hz$^{1/2}$ à 2,3 µm	30 MHz

Tableau 33 : Spécifications constructeurs des deux détecteurs sélectionnés pour la mesure LIDAR DiAL résolue spatialement.

En connaissant la taille du détecteur ainsi que la focale effective du système de réception, nous en déduisons l'angle solide de collection de ce système comme illustré sur la *Figure*

91(b). L'effet de l'obturation centrale du télescope se manifeste par une zone aveugle sur quelques dizaines de mètres où le signal rétrodiffusé n'est pas collecté. Néanmoins cette zone de non recouvrement ne limite pas les performances d'une mesure LIDAR car les portées à atteindre sont de l'ordre de la centaine de mètres au kilomètre. A présent, les deux blocs du système instruments sont modélisés, il nous faut calculer le recouvrement entre l'émission et la réception en considérant la configuration utilisée.

La fonction de recouvrement

La fonction de recouvrement permet de connaître la proportion de signal rétrodiffusé par l'atmosphère collecté par le système de réception. Elle s'exprime de la manière suivante :

$$O(r) = \frac{Volume\ collecté(r)}{Volume\ émis(r)} \qquad \textit{(Eq. 49)}$$

Elle dépend des paramètres d'émission et de réception mais également de la configuration émission / réception utilisée. Deux types de configuration émission/réception sont possibles et envisageables :

- la configuration monostatique et
- la configuration bi-statique.

Ces deux configurations sont représentées sur la *Figure 92*.

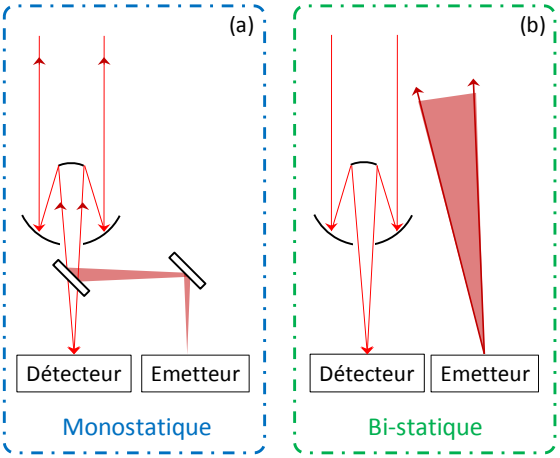


Figure 92 : Configuration de mesure monostatique (a) et bi-statique (b)

La configuration monostatique

Tout d'abord, la configuration monostatique comme illustré sur le *Figure 92(a)* permet d'obtenir un recouvrement spatial entre l'émission et la réception égal à 1 quelque soit la distance d'observation. C'est un cas très particulier où l'émission et la réception empruntent le même système optique. Ainsi, le faisceau laser présente la bonne taille et la bonne divergence.

La configuration bi-statique

Par contre, dans une configuration bi-statique représentée sur la *Figure 92(b)*, les optiques de l'émission et de la réception sont distinctes. Ainsi, l'axe d'émission et l'axe de réception sont différents. Alors, la fonction de recouvrement varie en fonction de l'altitude. Pour ces travaux, nous avons fait le choix de travailler avec une configuration bi-statique. L'émission et la réception étant dissociées, cette configuration est plus simple à mettre en œuvre et plus souple.

Néanmoins, dans un premier temps, prenons un cas particulier de cette configuration émission / réception où l'émission et la collection se propagent suivant le même axe comme représenté sur la *Figure 91(b)*. Dans la suite, elle est nommée configuration quasi-monostatique. Dans cette configuration émission / réception, la fonction de recouvrement est assez simple à calculer puisque c'est l'intersection de plusieurs cônes situé sur le même axe. Ainsi, à une altitude donnée, la fonction de recouvrement est un disque.

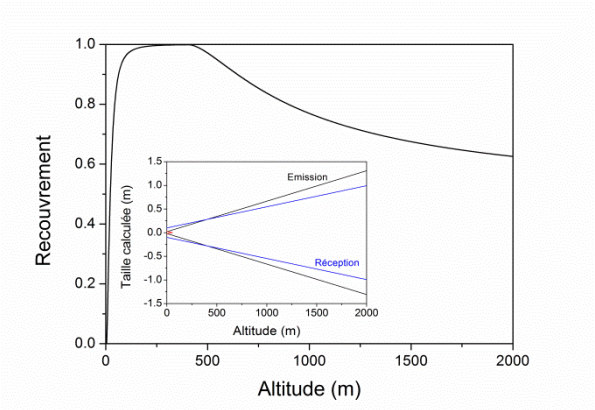


Figure 93 : Evolution en fonction de l'altitude du recouvrement entre l'émission et la réception dans le cas d'une configuration quasi-monostatique

La *Figure 93* représente un exemple de l'évolution de la fonction de recouvrement en fonction de l'altitude dans le cas d'une configuration quasi-monostatique. Les conditions de simulation sont identiques à celles utilisées pour la modélisation des systèmes d'émission et de réception. Pour cet exemple, le détecteur choisi est le MCT refroidi à l'azote liquide. Une zone aveugle est visible sur plusieurs dizaines de mètres mettant en évidence l'effet de l'obturation sur la collection du signal rétrodiffusé. Ensuite, l'émission entre dans la zone de collection et le recouvrement augmente jusqu'à atteindre sa valeur maximale autour de 300 m. Puis, le système de collection n'est pas suffisamment ouvert pour collecter l'ensemble du signal rétrodiffusé et le recouvrement diminue jusqu'à se stabiliser. Pour des portées kilométriques et dans les conditions de simulation, environ 60 % du flux rétrodiffusé est collecté par le système de réception.

A présent, généralisons à une configuration bi-statique quelconque pour laquelle les axes d'émission et de collection sont différents. La fonction de recouvrement est issue de l'intersection de plusieurs cônes d'axes différents. Ainsi, à une altitude donnée, la fonction de recouvrement est représentée par la surface d'un œil de chat.

Expérimentalement, la configuration émission / réception pourra être soit bi-statique soit quasi-monostatique.

La problématique de l'imagerie

Les problèmes liés à l'imagerie surviennent pour les courtes portées de l'ordre de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de mètres. Cette distance limite dépend des paramètres de réception et plus particulièrement de l'ouverture du système de collection. En effet, plus le système de réception est ouvert plus la distance limite de changement de régime est courte. Le passage d'un capteur de flux à un capteur d'image a pour conséquence de dégrader la fonction de recouvrement. En effet, l'ensemble du flux rétrodiffusé collecté forme sur le détecteur une image plus grande que la surface sensible de ce dernier. Le modèle

instrument développé ne tient pas compte de ces problèmes d'imagerie. Ainsi, la fonction de recouvrement est sur-estimée sur les portées inférieures à 200 m pour le système optique de collection décrit dans le paragraphe ci-dessus.

La modélisation de l'instrument nécessite de connaître les paramètres d'émission, les paramètres de réception et la configuration émission / réception. Grâce à cet outil, il est possible d'évaluer le recouvrement spatial entre l'émission et la réception en fonction de l'altitude. Néanmoins, des améliorations peuvent être apportées à cet outil :

- ✓ la prise en compte du caractère gaussien du faisceau ;
- ✓ la prise en compte de la problématique d'imagerie aux courtes portées.

La modélisation des bruits de détection

Le but de ce modèle de bruits est d'évaluer la contribution de chacun des bruits simulés pour une mesure LIDAR DiAL ainsi que d'estimer le rapport signal sur bruit d'une telle mesure en fonction de la portée. Ce dernier résultat permet d'estimer la portée maximale de l'instrument pour une configuration de mesure bien déterminée.

Les bruits	Les sources
Le bruit quantique de la source	L'émetteur
Le bruit du fond radiatif	L'atmosphère, les instruments ...
Le bruit de speckle	La pupille de l'instrument, la cible et la turbulence atmosphérique
Le bruit du détecteur	Le détecteur
Le bruit thermique	La résistance de charge, les amplificateurs électroniques ...

Tableau 34 : Liste des bruits modélisés associés à leur source.

Le code développé modélise l'ensemble des bruits listés dans le *Tableau 34*. Dans la suite de ce paragraphe, nous détaillerons la modélisation de ces bruits et verrons que certains d'entre eux dépendent de la portée.

Le bruit de photon

Le bruit de photon a deux composantes :

- ➢ le bruit du fond radiatif ;
- ➢ le bruit de photon lié à l'émission laser.

Tout d'abord, le bruit de photon lié à la source aussi appelé bruit quantique est proportionnel au nombre de photoélectrons générés N_s avec sa variance $var(N_s) = FN_s$ et F le facteur de bruit du détecteur en considérant un bruit poissonien. Par ailleurs, le nombre de photoélectrons générés est proportionnel à la puissance rétrodiffusée reçue $P_R(\lambda,r)$ et il dépend des caractéristiques du détecteur. Il s'exprime alors comme suit :

$$N_s = \frac{\eta\lambda}{hc}\delta t.P_R(\lambda,r) \qquad \textit{(Eq. 50)}$$

avec η le rendement quantique du détecteur, δt le temps d'intégration du signal.

Ce temps d'intégration δt correspond à la résolution spatiale ΔR = c/2δt de la mesure et à une bande passante B = 1/2δt. Par ailleurs, la sensibilité S (en A/W) du détecteur souvent

fournis par les constructeurs caractérise le détecteur en réunissant l'ensemble de ces paramètres. Elle s'exprime comme suit :

$$S = \frac{G\eta q\lambda}{hc} \qquad \textit{(Eq. 51)}$$

avec G le gain interne du détecteur et $q = 1{,}6.10^{-19}$ C la charge de l'électron.

Ainsi, la variance du bruit quantique est convertie en puissance optique et s'exprime en fonction de la puissance optique du signal lidar reçu de la manière suivante :

$$var(P_R) = \frac{Fhc}{\lambda\eta\delta t} P_R(\lambda, r) \qquad \textit{(Eq. 52)}$$

On considère un facteur de bruit égal à 1 pour l'ensemble des détecteurs considérés. De plus, en utilisant les équations *(Eq. 51)* et *(Eq. 52)*, alors la variance en fonction de la puissance optique du signal lidar reçu s'exprime comme suit :

$$var(P_R) = \frac{Gq}{S} 2B.P_R(\lambda, r) \qquad \textit{(Eq. 53)}$$

Le fond radiatif représente le rayonnement infrarouge non thermique dans la bande spectrale de détection. Comme illustrée sur la *Figure 94* la luminance du soleil au sommet de l'atmosphère terrestre est au moins 10^6 supérieure à la luminance de l'atmosphère.

Par ailleurs, le fond radiatif dépend des conditions atmosphériques (nuages, aérosols, humidité), de l'angle solaire, de l'angle de visée... Ainsi, la puissance du fond radiatif $P_f(\lambda,r)$ collectée par le bloc de réception s'exprime de la manière suivante :

$$P_f(\lambda, r) = T_{op}\pi A_{op}\left(\frac{a_D}{f'}\right)^{é} \delta\lambda \times L_{F,\lambda} \qquad \textit{(Eq. 54)}$$

avec a_D le rayon de la surface sensible du détecteur, f' la focale équivalente du système de réception, $\delta\lambda$ la largeur spectrale de mesure de la réception et $L_{F,\lambda}$ la luminance spectrique du fond radiatif exprimée en $W.m^{-2}.sr^{-1}.nm^{-1}$.

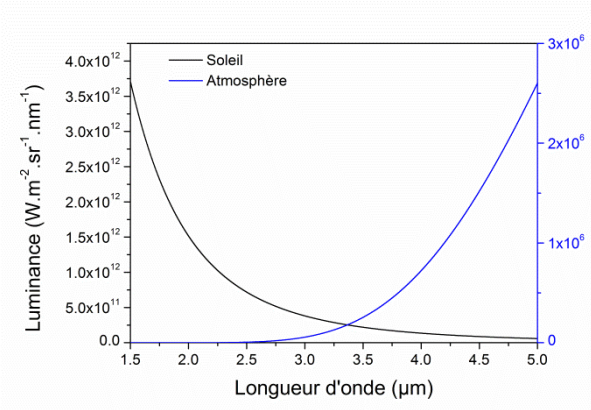


Figure 94 : Luminance du soleil calculée au sommet de l'atmosphère et luminance de l'atmosphère sur une gamme spectrale comprise entre 1,5 et 5 µm.

La loi de Stefan permet de calculer rapidement l'ordre de grandeur l'exitance énergétique L exprimée en $W.\ m^{-2}$ du soleil et de l'atmosphère en fonction de leur température T exprimée en K par la relation suivante :

$$L = \sigma \times T^4 \qquad \textit{(Eq. 55)}$$

avec $\sigma = 5{,}67.10^{-8}$ W.m^{-2}.K^{-4} la constante de Stefan.

Cette grandeur correspond à la puissance totale rayonnée par unité de surface par le corps noir dans le demi-espace libre intégré sur l'ensemble du spectre électromagnétique. Par conséquent, la luminance du fond radiatif prenant en compte la luminance du soleil diffusé par l'atmosphère et la luminance de l'atmosphère s'exprime par la relation suivante :

$$L_F = \delta\lambda \times L_{F,\lambda} = L_T + L_s \qquad \textit{(Eq. 56)}$$

avec L_T l'exitance de l'atmosphère et L_s l'exitance du soleil.

Ce modèle du fond radiatif sur-estime la puissance du fond radiatif collectée par le système de réception. Néanmoins, ce calcul reste un bon ordre de grandeur. Ainsi, de la même manière que pour le bruit quantique, le bruit dû au fond radiatif est proportionnel à la puissance du fond radiatif collectée $P_f(\lambda,r)$. Ainsi, la variance du bruit du fond radiatif s'exprime de la manière suivante :

$$var(P_f) = \frac{Gq}{S} 2B.P_f(\lambda, r) \qquad \textit{(Eq. 57)}$$

Ici, on considère que le détecteur est sensible à l'ensemble du spectre électromagnétique. En général, un filtre spectral est placé devant le système de détection afin de sélectionner uniquement la gamme spectrale utile et ainsi limiter cette source de bruit. Le bruit dû au fond radiatif est surestimé.

La contribution associée au bruit quantique diminue rapidement en fonction de l'altitude. En effet, cette contribution est inversement proportionnelle au carré de l'altitude. La contribution associée au fond radiatif dépend elle de l'angle solide de réception. Ainsi, cette contribution tend à augmenter en fonction de la distance à l'instrument.

Le bruit de speckle

Comme nous en avons discuté dans la partie B.2.1, le bruit de speckle est une source d'erreur souvent négligeable pour des schémas de détection directe. Néanmoins, nous souhaitons réaliser un code de simulation complet permettant d'évaluer la contribution de chacun des bruits de mesure présents. Dans le cadre de ce modèle de bruit, on tient compte des tavelures temporelles et des tavelures spatiales. Cela permet de prendre en compte les effets de speckle liés au système de réception et à la turbulence atmosphérique. La variance du bruit de speckle en fonction du nombre de photoélectrons s'exprime de la manière suivante :

$$var(N_{speckle}) = \frac{N_s^2}{M} \qquad \textit{(Eq. 58)}$$

avec $M = M_s x M_t$ le nombre de tavelures totale.

Le nombre de tavelure temporelle M_t et le nombre de tavelure spatiale M_s s'expriment de la manière suivante [Le Rille - 2002]:

$$M_t = \sqrt{1 + \left(\frac{\delta t}{\tau_L}\right)^2} \qquad \textit{(Eq. 59)}$$

$$M_s = 1 + \pi \frac{2\theta_L A_{op}}{4\lambda^2} \qquad \textit{(Eq. 60)}$$

avec τ_L la durée d'une impulsion, A_{op} le diamètre d'ouverture de l'optique de réception et ϑ_L la demi-divergence du faisceau émis.

Ainsi, la variance du bruit de speckle est également proportionnelle au carré de la puissance rétrodiffusée et s'exprime comme suit :

$$var(P_{speckle}) = \frac{P_r^2(\lambda, r)}{M} \qquad \textit{(Eq. 61)}$$

De même que pour les deux bruits précédents, le bruit de speckle évolue en fonction de l'altitude par le terme de la puissance rétrodiffusée. Cette contribution au bruit total diminue très rapidement en fonction de l'altitude. En effet, elle varie en $1/r^4$.

Les bruits de détection

La dernière source de bruit simulée grâce au modèle est le bruit de détection que l'on peut séparer en deux sources principales :

- le bruit propre du détecteur
- les bruits liés à la chaine détection comme le bruit d'une résistance de charge ou d'un amplificateur.

Tout d'abord le bruit du détecteur est défini par la notion de *NEP*, pour Noise Equivalent Power, fournie par les constructeurs. La variance du bruit du détecteur en puissance s'exprime de la manière suivante :

$$var(P_{détecteur}) = NEP^2 B \qquad \textit{(Eq. 62)}$$

Ensuite, le bruit de la résistance de charge est un bruit thermique. La variance de ce bruit en puissance s'exprime de la manière suivante :

$$var(P_E) = \frac{var(I_E)}{S^2} \text{ et } var(I_E) = \frac{4kT}{R_c} B \qquad \textit{(Eq. 63)}$$

avec k la constante de Boltzman et R_c la résistance de charge.

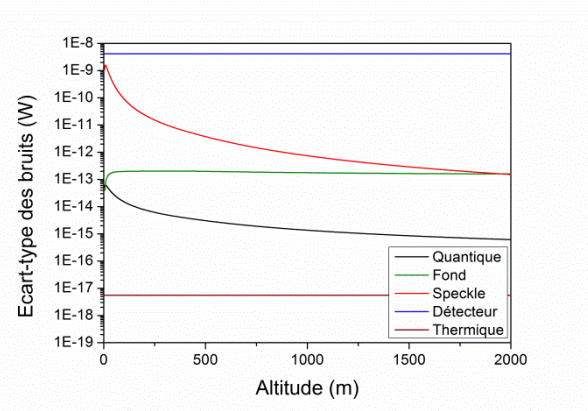


Figure 95 : Exemple de l'évolution des bruits modélisés en fonction de l'altitude pour une énergie délivrée de 15 mJ. Le système d'émission/réception utilisé est celui décrit dans le paragraphe ci-dessus en configuration quasi-monostatique.

La *Figure 95* montre l'évolution des contributions de chacun des bruits modélisés en fonction de l'altitude pour l'utilisation du détecteur MCT refroidi à l'azote liquide pour une fréquence en dehors de toute absorption. Les conditions de simulation pour le système émetteur et le système récepteur sont identiques à celles énoncées dans ci-dessus. De plus la résistance de

charge de ce détecteur est de 60 Ω. Dans le cadre de cette simulation, le bruit provenant du détecteur est le bruit limitant de la mesure quelque soit la distance d'observation.

Souvent dans le cadre des mesures LIDAR, l'utilisation d'un amplificateur électronique externe est nécessaire. Le code numérique de modélisation des bruits ne prend pas en compte le bruit apporté par un amplificateur électronique. Néanmoins, ces appareils électroniques ont un bruit électronique important qui n'est pas négligeable devant les autres sources de bruit. Il conviendra alors de prendre en compte cette source de bruit.

Bilan

Finalement, comme schématisé sur la *Figure 96* le modèle complet permet de simuler plusieurs phénomènes physiques. Il est composé de trois niveaux de complexité :

- les trois modèles de base ;
- la fusion des modèle atmosphère et instrument ;
- la fusion des trois modèles.

Ainsi, ce modèle global permet d'avoir accès à des plusieurs informations modélisées et estimées à divers degrés de complexité. En effet, à partir du modèle atmosphérique, il est possible de modéliser par exemple l'absorption et / ou l'épaisseur optique par les espèces d'intérêt. Par conséquent, grâce à ce modèle atmosphère une étude sur le choix des longueurs d'onde à émettre permettant d'optimiser une mesure LIDAR DiAL est présentée dans le paragraphe C.1.1.

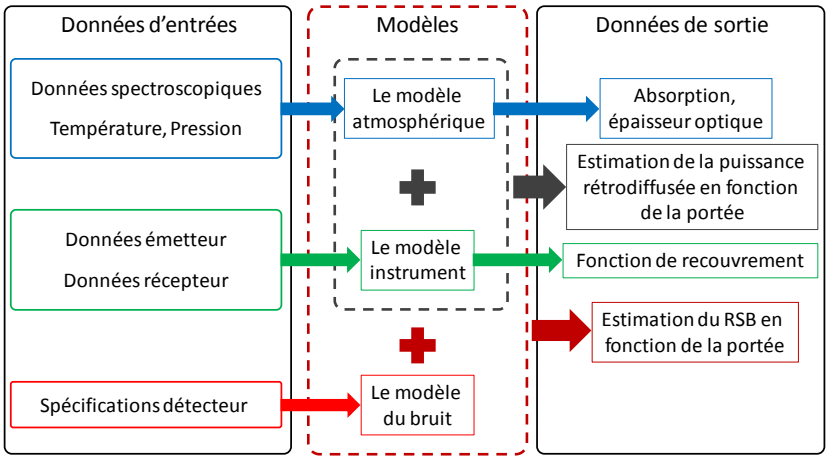


Figure 96 : Architecture en blocs du modèle.

Ensuite, en combinant le modèle atmosphère et le modèle instrument, la puissance rétrodiffusée par l'atmosphère et collectée par le système de réception peut être modélisée. Par exemple, la *Figure 97* montre l'évolution de la puissance rétrodiffusée collectée en fonction de l'altitude jusqu'à 1 km pour deux longueurs d'onde λ_{on} et λ_{off} pour détecter du CO_2 atmosphérique en configuration quasi-monostatique dans le cadre d'une mesure depuis le sol.

La résolution spatiale est imposée par la bande passante du détecteur sélectionné. L'effet de l'absorption par le dioxyde de carbone est visible à partir de 100 m environ de propagation. On remarquera que l'évolution de la puissance rétrodiffusée collectée en fonction de l'altitude est similaire à celle de la fonction de recouvrement présentée ci dessus.

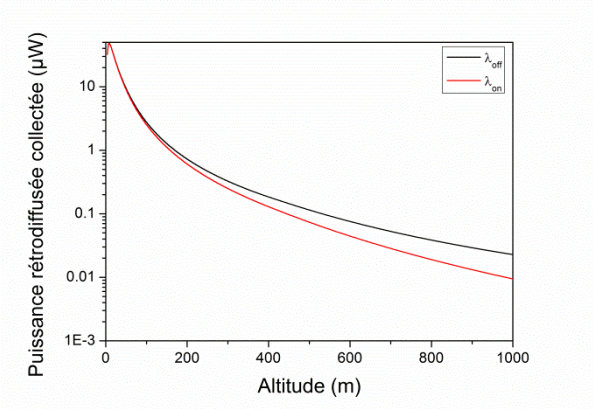


Figure 97 : Evolution de la puissance rétrodiffusée en fonction de l'altitude pour une longueur d'onde λ_{off} = 2051,24 nm (en noir) et une longueur λ_{on} = 2050,97 nm (en rouge). La simulation a été réalisée pour la raie R30 du CO_2 dans le cas d'une configuration quasi-monostatique pour une mesure depuis le sol.

De plus, si les trois modèles fusionnent il est alors possible d'estimer le Rapport Signal sur Bruit [RSB] sur chacune des longueurs d'onde émises par l'émetteur en fonction des conditions expérimentales (configuration émetteur / récepteur et détecteur). La variance du bruit total est la somme des variances de tous les bruits car ils sont indépendants. Ainsi, le RSB s'exprime par la relation suivante :

$$RSB(r) = \sqrt{K}\frac{P_R(\lambda, r)}{\sqrt{somme\ des\ variances\ des\ bruits}} \qquad (Eq.\ 64)$$

avec *K* le nombre d'impulsions moyennées.

Il est également possible d'évaluer la portée de l'instrument dans le cadre d'une mesure LIDAR DiAL. Ces deux derniers points sont abordés dans la partie suivante.

C.3.1. Calcul des RSBs attendus pour une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement pour une mesure du CO_2

L'objectif de ce paragraphe est d'estimer le rapport signal sur bruit de l'instrument pour les deux détecteurs disponibles et ainsi de comparer leur performance. Ensuite, à partir de la meilleure configuration il s'agit d'estimer la portée maximale de l'instrument dans le cas d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement depuis le sol.

	Conditions de simulation
Paramètres atmosphérique	Modèles de pression et température atmosphériques standard Données spectroscopiques de la raie R30 du CO_2 de la base HITRAN 2012.
Paramètres émetteur	Energie : 15 mJ ; durée de l'impulsion : 10 ns ; cadence : 30 Hz Waist signal : 20 mm ; M^2 = 2
Paramètres récepteur	Télescope de 200 mm d'ouverture avec une obturation centrale de 50 mm et une focale équivalente de 280 mm. Détecteur : MCT refroidi à l'azote liquide ou Photodiode Femto
Configuration	Quasi mono-statique – nombre d'impulsion moyennée : 10
Longueurs d'onde	λ_{on} = 2050,97 nm (sommet de la raie) et λ_{off} = 2051,24 nm

Tableau 35 : Les conditions de simulation utilisées pour les estimations de RSB

Dans cette première étape, les RSBs de l'instrument pour les deux détecteurs disponibles sont comparés dans le cadre d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement pour les conditions de simulations énoncées dans le *Tableau 35*. Les longueurs d'onde sélectionnées pour cette estimation de la portée correspondent à celles déterminées dans le paragraphe C.1.1. Le signal considéré pour ces simulations est le signal rétrodiffusé et collecté par le système de réception à une longueur d'onde fixée λ_{on} ou λ_{off}.

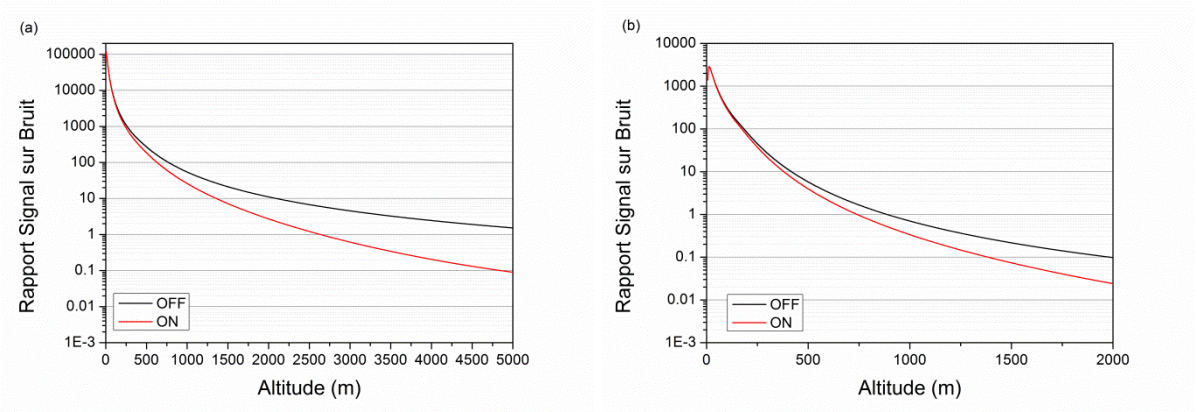


Figure 98 : Evolution du rapport signal sur bruit de la puissance rétrodiffusée pour le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide (a) et le détecteur Femto (b) en fonction de l'altitude pour la longueur d'onde λ_{off} = 2051, 24 nm (en noir) et la longueur d'onde λ_{on} = 2050,97 nm (en rouge). Ce calcul est réalisé en moyennant 100 impulsions.

La *Figure 98* montre l'évolution du RSB en fonction de l'altitude dans le cas d'une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement depuis le sol en moyennant 100 impulsions. Les performances obtenues avec le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide présentées sur la *Figure 98(a)* sont meilleures que celles obtenues avec la photodiode Femto présenté sur la *Figure 98(b)*. La portée est définie pour une valeur du RSB égale à 1. Ainsi, pour la mesure d'un signal de rétrodiffusion en dehors de toute absorption, la portée est d'environ 900 m pour la photodiode Femto alors que pour le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide celle-ci est de l'ordre de 5 km. De plus, pour la longueur d'onde "ON" sélectionnée située au sommet de la raie de CO_2 pour les mesures au sol, il est possible d'atteindre une portée de 2,5 km avec le détecteur MCT refroidi à l'azote liquide (*Figure 98(a)*).

Par ailleurs, il a été démontré expérimentalement des portées supérieures à 2 km en détection directe à 2,1 µm avec un détecteur refroidi à l'azote liquide en moyennant 100 impulsions [Sugimoto - 1990]. Le bloc de réception utilisé lors de ces mesures LIDAR est similaire à celui présenté dans la partie C.3.1. Par comparaison, ces résultats sont cohérents avec la simulation réalisée avec le détecteur refroidi à l'azote liquide. Les portées calculées à l'aide du code numérique sont optimistes. En effet, ici on ne prend pas en compte par exemple les problèmes d'imagerie.

Comme nous l'avons vu dans la section A.1, le signal d'intérêt pour une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement est proportionnel au rapport $P_R(\lambda_{on},r)/ P_R(\lambda_{off},r)$. Ainsi, il serait intéressant d'estimer le rapport signal sur bruit de l'instrument sur le signal utile.

En conclusion de cette partie, les outils de simulation développés permettent d'atteindre plusieurs objectifs :

- ✓ concevoir le bloc de réception ;
- ✓ réaliser des bilans de portée et estimer les performances de l'instrument LIDAR ;

✓ intégrer ces outils dans un code d'inversion de spectre.

C.3.2. Discussion

Ici, la démarche consiste à évaluer les conditions expérimentales de mesure LIDAR en termes du nombre de longueurs d'onde à émettre et du temps d'intégration par longueur d'onde. On se place dans le cas d'une mesure lidar sur le dioxyde de carbone à une concentration de 410 ppm depuis le sol sur une portée de 1 km.

Pour ce faire, trois cas de mesures lidar représentés sur la *Figure 99* sont évalués avec pour chaque cas une étude des performances en fonction du temps de mesure :

(i) une longueur d'onde ON située au sommet de la raie et une longueur d'onde OFF ;
(ii) une longueur d'onde ON située en flanc de la raie d'absorption et une longueur d'onde OFF ;
(iii) deux longueurs ON situées soit symétriquement soit anti-symétriquement par rapport au sommet de la raie d'absorption et une longueur d'onde OFF.

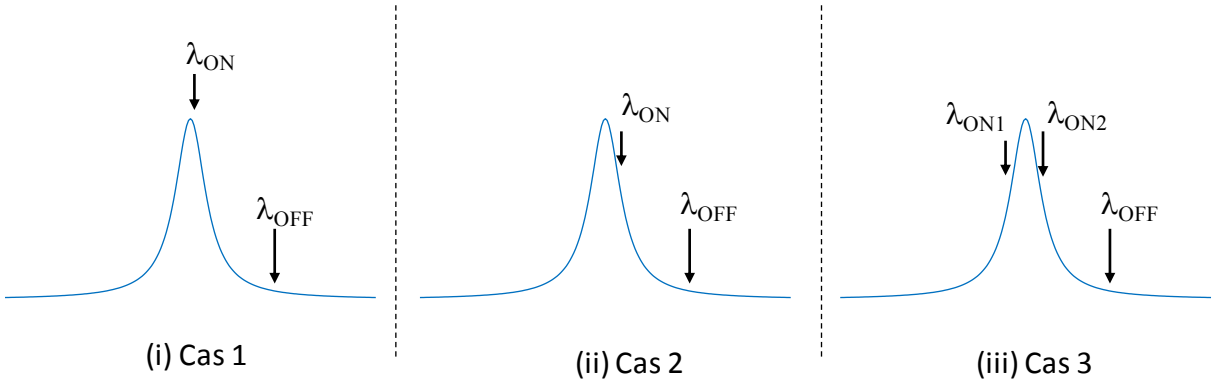


Figure 99 : Représentation graphique des trois cas étudiés autour de la raie R30 du CO_2

La démarche consiste à générer une mesure de transmission numérique à chacune de ces longueurs d'onde avec un bruit de fréquence et un bruit de transmission.

Le bruit de fréquence provient de la résolution du mesureur de longueur d'onde utilisé étant de 5 MHz à 2 µm. A partir de cette incertitude en fréquence, on calcule une erreur sur la transmission correspondant aux valeurs typique obtenues expérimentalement au chapitre B. On lui ajoute quadratiquement un bruit de transmission d'environ +/- 2%. L'incertitude sur la longueur d'onde mesurée est très faible conduisant à une erreur sur la transmission inférieure à 0,1 % même sur les flancs de raie. La longueur d'onde OFF est choisie égale à 2051,24 nm avec une transmission de 1 et un bruit de +/- 2%. La mesure est simulée pour différents nombre de points c'est-à-dire pour différents temps de mesure avant inversion. L'estimation de la concentration est réalisée à l'aide du programme d'inversion disponible au laboratoire s'appuyant sur la minimisation des moindres carrés dont le fonctionnement est décrit en Annexe A.1. L'erreur de concentration obtenue à l'aide de ce code d'inversion correspond à l'erreur du résidu d'inversion entre le spectre simulé et le spectre théorique. De plus, la base de données HITRAN 2008 est utilisée pour cette étude.

Cas 1 : une longueur d'onde ON située au sommet de la raie d'absorption du CO_2 (cas du DiAL classique)

La longueur d'onde ON est placée au sommet de la raie d'absorption du CO_2 c'est-à-dire à λ = 2050,97 nm correspondant à une transmission de 49 % pour une portée de 1 km correspondant à une épaisseur optique de 0,7.

Nombre de points par longueur d'onde émise	Temps de mesure par longueur d'onde émise	Concentration estimée	Erreur résidu
2 ON et 2 OFF	132 ms	407 ppm	±12 ppm
5 ON et 5 OFF	330 ms	407 ppm	± 8 ppm
10 ON et 5 OFF	495 ms	409 ppm	± 3 ppm
10 ON et 10 OFF	660 ms	408 ppm	± 3 ppm
15 ON et 15 OFF	990 ms	408 ppm	± 2 ppm
100 ON et 100 OFF	6,6 s	407 ppm	± 1 ppm

Tableau 36 : Estimation de la concentration en CO_2 sur une portée de 1 km en fonction du nombre de points par fréquence pour une configuration à deux longueurs d'onde : une longueur d'onde ON au sommet de la raie et une longueur d'onde OFF.

Le *Tableau **36*** présente les estimations de concentration en CO_2 et leurs précisions pour une longueur d'onde ON au sommet de la raie d'absorption et une longueur d'onde OFF en fonction du nombre de points mesurés par longueur d'onde. Nous remarquons que plus le nombre de points par longueur d'onde est important meilleure est la précision de l'estimation.

Cas 2 : longueur d'onde ON situé sur un flanc de raie du CO_2

La longueur d'onde ON est placé cette fois sur un flanc de la raie d'absorption du CO_2 c'est-à-dire à λ = 2050,94 nm correspondant à une transmission de 67,8 % pour une portée de 1 km correspondant à une épaisseur optique de 0,4. La longueur d'onde OFF est choisi égale à 2051,24 nm avec une transmission égale à 1 avec et un bruit de +/- 2%.

Nombre de points par longueur d'onde émise	Temps de mesure total	Concentration estimée	Erreur résidu
2 ON et 2 OFF	132 ms	414 ppm	±16ppm
5 ON et 5 OFF	330 ms	406 ppm	±10ppm
10 ON et 5 OFF	495 ms	410 ppm	± 7 ppm
10 ON et 10 OFF	660 ms	410 ppm	± 7 ppm
15 ON et 15 OFF	990 ms	407 ppm	± 4 ppm
100 ON et 100 OFF	6,6 s	412 ppm	± 3 ppm

Tableau 37 : Estimation de la concentration en CO_2 sur une portée de 1 km en fonction du nombre de points par fréquence pour une configuration à deux longueurs d'onde : une longueur d'onde ON en flanc de raie et une longueur d'onde OFF.

Pour une configuration à deux longueurs d'onde où la longueur d'onde ON est située sur un flanc de la raie d'absorption et la longueur d'onde OFF, les estimations de concentration en CO_2 et leurs précisions pour en fonction du nombre de points mesurés par longueur d'onde sont résumées le *Tableau **37***. De la même manière que pour la configuration à deux longueurs d'onde précédente plus le nombre de points par longueur d'onde est important meilleure est la précision de l'estimation. La précision d'estimation de ce cas 2 est moins bonne que celle du cas 1.

Comparaison des deux configurations à deux longueurs d'onde :

A l'issu de ces deux études, en comparant les précisions d'estimation obtenues, nous pouvons en déduire qu'il est préférable de choisir une longueur d'onde ON au niveau du sommet de la raie d'absorption plutôt qu'en flanc de raie. En effet, l'épaisseur optique est plus faible, et donc l'inversion est plus sensible à une erreur de transmission.

Cas 3 : deux longueurs d'onde ON sur la raie R30 du CO_2

Pour évaluer cette configuration nous proposons dans un premier temps un schéma d'émission avec deux longueurs d'onde ON placées symétriquement de part et d'autre du sommet de la raie d'absorption du CO_2, λ_1 = 2050,94 nm et λ_2 = 2050,99 nm correspondant à une transmission de 67,8 % correspondant à une épaisseur optique de 0,4.

Nombre de points par longueur d'onde émise	Temps de mesure par longueur d'onde émise	Concentration estimée	Erreur résidu
2 ON1, 2 ON2 et 2 OFF	198 ms	417 ppm	± 5 ppm
5 ON1, 5 ON2 et 5 OFF	495 ms	414 ppm	± 5 ppm
10 ON1, 10 ON2 et 10 OFF	990 ms	413 ppm	± 3 ppm
100 ON1, 100 ON2 et 100 OFF	9,9 s	410 ppm	±0,9ppm

Tableau 38 : Estimation de la concentration en CO_2 sur une portée de 1 km en fonction du nombre de points par fréquence pour une configuration à trois longueurs d'onde : deux longueurs d'onde ON symétrique par rapport au sommet de la raie et une longueur d'onde OFF.

Pour une configuration à trois longueurs d'onde où les deux longueurs d'onde ON sont situées sur les flancs de la raie d'absorption symétriquement par rapport au sommet, les estimations de concentration en CO_2 et leurs précisions en fonction du nombre de points par longueur d'onde sont résumées le *Tableau 38*.

Dans le cas d'une mesure DiAL résolue spatialement en visée horizontale, il est plus intéressant de favoriser une mesure DiAL classique où la longueur d'onde ON est située au sommet de la raie d'absorption du gaz étudié.
Pour les aspects de mesures lidar depuis l'espace en intégrée colonne, il semblerait qu'émettre deux longueurs d'onde ON de part et d'autre de la raie d'absorption permettent d'avoir une précision de l'estimation de la concentration équivalente à émettre qu'une seule longueur d'onde située en flanc de raie pour un même temps de mesure. En outre, cette configuration d'émission à trois longueurs d'onde permettrait d'évaluer la pression atmosphérique le long de la ligne de visée lors de l'inversion du spectre.
Cette étude numérique reste à approfondir et une validation expérimentale sera effectuée au cours des travaux suivants cette thèse.

C.3.3. Etude de la possibilité d'une mesure simultanée bi-espèces en utilisant les ondes signal et complémentaire issues de l'OPO

Dans le cadre de la mesure LIDAR spatiale, nous nous intéressons à une problématique plus large concernant l'utilisation des deux longueurs d'onde disponibles plutôt qu'une seule afin d'améliorer le rendement global de l'instrument. Pour répondre à cette problématique, une étude théorique est réalisée sur les possibilités de mesures LIDAR DiAL simultanées de deux gaz à effet de serre en utilisant l'onde signal et l'onde complémentaire dans le cas d'une mesure lidar spatiale. Dans ce cas nous aurions un émetteur unique, et par exemple un seul télescope couplé à deux détecteurs, l'un pour l'onde signal et l'autre pour l'onde complémentaire.

Signal autour de 2,05 µm et complémentaire autour de 2,2 µm

Dans la section C.2, le potentiel multi-espèces de l'émetteur développé a été démontré notamment en réalisant une mesure de spectre en cellule du CO_2 et du CH_4 sur deux gammes de longueurs d'onde complémentaires. Ainsi, une première étude est réalisée sur ces deux gammes spectrales comme illustré sur la *Figure 100*. On remarque qu'autour de 2,05 µm une seule espèce intéressante est présente, le CO_2. La gamme spectrale signal sélectionnée est alors comprise entre 2050 nm et 2053 nm. Rappelons ici que la conservation de l'énergie est vérifiée c'est-à-dire que la fréquence de pompe est égale à la somme des fréquences signal et complémentaire. Ainsi, pour une longueur d'onde de pompe égale à 1064,46 nm, la gamme spectrale complémentaire se situe alors entre 2210,5 nm et 2013,5 nm approximativement. Dans la gamme spectrale complémentaire associée, deux espèces sont présentes : le méthane et la vapeur d'eau.

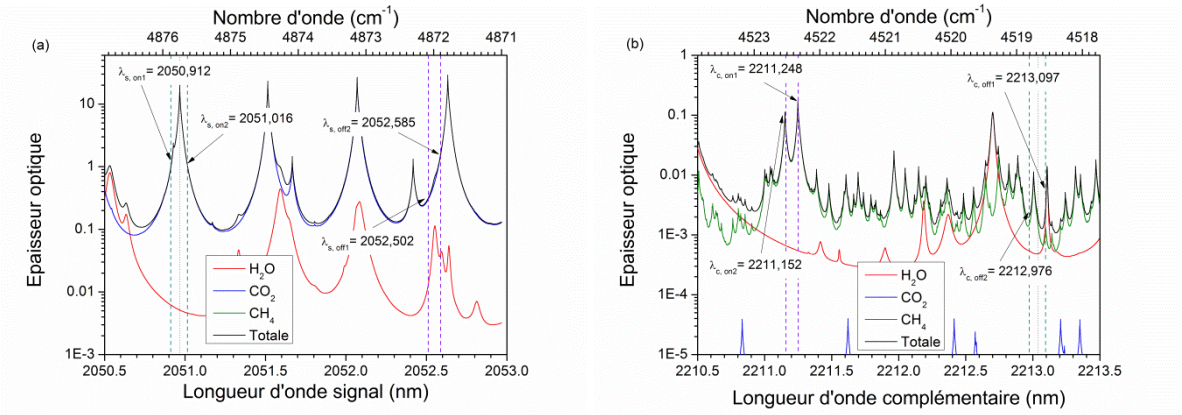


Figure 100 : Calcul des épaisseurs optiques de la vapeur d'eau (en rouge), du dioxyde de carbone (en bleu) et du méthane (en vert) pour l'onde signal autour de 2051 nm (a) et pour l'onde complémentaire associée autour de 2211 nm (b) pour une altitude de 65 km dans les conditions normales de pression et température. L'épaisseur optique totale en représentée en noir. Les concentrations respectives du CO_2, CH_4 et H_2O sont 410 ppm, 1,7 ppm et 1%.

La *Figure 100* représente les épaisseurs optiques des trois espèces d'intérêt (CH_4, CO_2 et H_2O) ainsi que l'épaisseur optique totale pour une altitude de 65 km dans les conditions normales de pression et température. Des raies du méthane sont mesurables dans cette gamme spectrale. Par ailleurs, l'épaisseur optique des espèces concernées doit être

suffisante pour permettre la mesure d'une concentration. En ajustant la longueur d'onde de pompe, il pourrait être possible de mesurer les deux espèces où les schémas d'accord en longueur d'onde et le nombre de longueurs d'onde à émettre restent encore à définir. Cependant les épaisseurs optiques correspondantes au méthane seront faibles avec au maximum une épaisseur optique de 0,17.

Signal autour de 2,056 µm et complémentaire autour de 2,2 µm

En calculant, de la même manière que pour le paragraphe précédent les épaisseurs optiques des trois espèces d'intérêt (CH_4, CO_2 et H_2O) dans les conditions normales de pression et température pour une gamme spectrale signal autour de la raie de H_2O entre 2055,5 nm et 2057,5 nm. La gamme spectrale complémentaire associée est comprise alors entre 2207,8 nm et 2205,5 nm approximativement pour une longueur d'onde de pompe égale à 1064,46 nm.

Longueur d'onde signal	OD		Longueur d'onde complémentaire	OD
$\lambda_{on,\ H2O}$ = 2056,568 nm	1	$\Rightarrow$	λ = 2206,55 nm	0,03
λ = 2056,39 nm	0,22	$\Leftarrow$	$\lambda_{on,\ H2O}$ = 2206,753 nm	1

Tableau 39 : Ensemble des couples longueur d'onde signal / complémentaire intéressants pour une mesure LIDAR simultanée du H_2O et du H_2O autour de 2,056 µm et 2,22 µm respectivement.

Dans la gamme spectrale complémentaire associée, seule la vapeur d'eau présente une épaisseur optique suffisante pour réaliser une mesure lidar spatiale. Le *Tableau 39* présente les résultats de ce calcul où l'on peut remarquer qu'une mesure simultanée est possible mais sur la même espèce. En effet, la longueur d'onde "ON" sélectionnée correspond à une longueur d'onde "OFF" dans la gamme spectrale associée.

Signal autour de 1,98 µm et complémentaire autour de 2,3 µm

En calculant, les épaisseurs optiques des trois espèces d'intérêt (CH_4, CO_2 et H_2O) pour une gamme spectrale complémentaire située autour de la raie de CH_4 entre 2299 nm et 2300 nm pour une altitude de 65 km dans les conditions normales de pression et température comme illustré en *Figure 101*. Pour vérifier la conservation de l'énergie, la gamme spectrale complémentaire associée est comprise alors entre 1981,5 nm et 1982,3 nm approximativement pour une longueur d'onde de pompe égale à 1064,46 nm.

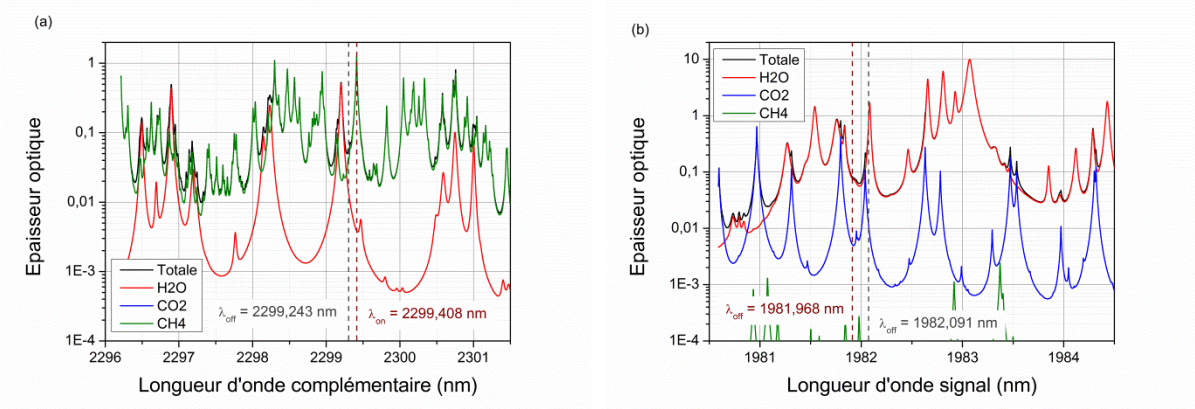


Figure 101 : Calcul des épaisseurs optiques de la vapeur d'eau (en rouge), du dioxyde de carbone (en bleu) et du méthane (en vert) pour l'onde signal autour de 1982 nm (a) et pour l'onde complémentaire associée autour de 2299 nm (b) pour une altitude de 65 km dans les conditions normales de pression et température. L'épaisseur optique totale en représentée en noir. Les concentrations respectives du CO_2, CH_4 et H_2O sont 410 ppm, 1,7 ppm et 1%.

Des raies du méthane sont mesurables dans la gamme spectrale du complémentaire et des raies de la vapeur d'eau sont mesurables dans la gamme spectrale signal associée. Par ailleurs, l'épaisseur optique des espèces concernées doit être suffisante pour permettre la mesure d'une concentration. En effet, en détection directe celle-ci doit être proche de 1.

Longueur d'onde complémentaire	OD		Longueur d'onde signal	OD
$\lambda_{on,\ CH4}$ = 2299,408 nm	1	⇒	$\lambda_{off,\ H2O}$ = 1981,968 nm	0,06
$\lambda_{on,\ CH4}$ = 2299,415 nm	1		$\lambda_{off,\ H2O}$ = 1981,963 nm	0,06
$\lambda_{off,\ CH4}$ = 2299,243 nm	0,09	⇐	$\lambda_{on,\ H2O}$ = 1982,091 nm	1

Tableau 40 : Ensemble des couples longueur d'onde signal / complémentaire intéressants pour une mesure LIDAR simultanée du CH_4 et de la vapeur d'eau autour de 2,3 µm et 1,98 µm respectivement.

Dans la gamme spectrale associée à la mesure du méthane autour de 2,3 µm, l'étude d'une mesure simultanée de deux espèces est présentée dans le *Tableau 40*. Les longueurs d'onde "ON" sont sélectionnées avec une épaisseur optique de 1 dans les deux gammes spectrales associées. Chaque longueur d'onde "ON" sélectionnée correspond à une longueur d'onde "OFF" dans la gamme spectrale associée. Pour ces deux gammes spectrales, il est possible de réaliser une mesure simultanée de la concentration du CH_4 et de H_2O.

Cette mesure est d'autant plus pertinente que les raies d'absorption du méthane à 2,3 µm sont proches de raies d'absorption de la vapeur d'eau qui peuvent polluées la mesure de la concentration en méthane.

Cette étude préliminaire autour de 2 µm afin d'utiliser l'onde signal et l'onde complémentaire simultanément montre la possibilité de cette mesure dans les gammes spectrales adaptées, notamment ici celles associées à la mesure du méthane.

Par ailleurs, des pistes restent encore à être explorées et exploitées notamment pour la gamme spectrale signal située entre 1,5 et 1,6 µm permettant d'adresser certains gaz à effet de serre et la gamme spectrale complémentaire associée située entre 3,3 et 3,7 µm permettant d'adresser notamment des polluants industriels. Cette extension de l'étude fera l'objet de la thèse d'E. Cadiou.

C.4. Perspectives

C.4.1. Améliorations à apporter à l'émetteur en vue d'une spatialisation

L'application LIDAR spatiale requiert des performances spatiales, temporelles, énergétiques et spectrales très sévères [Ehret - 2008]. Nous avons démontré au cours de la section C.2, des niveaux de performances de l'émetteur satisfaisants. En effet, du point de vue spatio-temporel et énergétique, l'émetteur délivre des impulsions signal avec une énergie de l'ordre de 20 mJ avec un $M^2 < 1,1$ avec une stabilité en intensité de l'ordre de 10 % sur 10 s. De plus, dans le cadre des applications spatiales, les performances spectrales de l'émetteur présentées dans le paragraphe C.2.3, sont également très satisfaisantes. En effet, notamment la stabilité de fréquence de l'émetteur en boucle ouverte est très proche de la spécification. L'étude théorique menées au DLR pour des mesures LIDAR sur CO_2, CH_4 et N_2O a démontré qu'une stabilité en fréquence de 2 MHz rms sur 10 s à 2 µm est suffisante pour réaliser une mesure de la concentration en CO_2 avec une précision de 0,2 % pour une longueur d'onde décalée de 3 GHz du centre de la raie R30 [Ehret - 2008].

Dans l'objectif de réaliser un démonstrateur LIDAR multi-espèces pour les applications spatiales, il existe trois principaux pôles d'amélioration :

- ✓ la robustesse ;
- ✓ le rendement de conversion ;
- ✓ la stabilité en fréquence à long terme.

La robustesse

Dans l'objectif d'une mesure LIDAR depuis l'espace, la robustesse de l'instrument et plus particulièrement de l'émetteur est un point critique. En effet, au moment du lancement d'un satellite, celui-ci ainsi que tous les instruments à bord sont soumis à des vibrations et des variations thermiques extrêmement importantes. Il est important d'améliorer la robustesse du banc émetteur afin qu'il supporte les niveaux de vibration et les cycles thermiques associés à une mission spatiale. Ainsi, l'amélioration de la robustesse du banc émetteur peut s'effectuer grâce à deux leviers :

- ➢ la rigidification de l'opto-mécanique et
- ➢ le remplacement des étages de KTPs en accord de phase par biréfringence nécessitant une action humaine lors d'un accord en fréquence permettant de passer d'une espèce à une autre.

La tenue aux vibrations de l'émetteur pourra être testée grâce à des pots vibrants disponibles au laboratoire. Ces développements sont en cours à DMPH/SLM au profit de l'ESA.

Le rendement de conversion

Les performances énergétiques de l'émetteur développé permettent d'obtenir un rayonnement monofréquence dans les gammes spectrales signal et complémentaire de 20 mJ et de 17 mJ respectivement. Néanmoins, ces niveaux d'énergie ne sont pas suffisants pour les mesures LIDAR spatiales en détection directe. Par conséquent, l'optimisation du rendement de conversion des étages d'amplification et le pompage avec un laser de pompe plus énergétique permettrait d'obtenir les niveaux énergies nécessaires pour les applications spatiales. L'optimisation du rendement de conversion des étages d'amplification s'effectue par :

- l'utilisation d'une lame de filtrage entre les étages d'amplification avec un traitement adapté à la gamme spectrale d'émission de l'OPO.
- le remplacement des cristaux de KTP massif en accord de phase par biréfringence de l'amplificateur par des cristaux non linéaires retournés périodiquement de grande épaisseur de type PPLN ou PPKTP. Des rendements de conversion élevés supérieurs à 76 % ont été démontrés avec ce type de cristaux récemment [Ishisuki - 2012].

Par ailleurs, des tests en radiation sur ces cristaux non linéaires seront nécessaires afin de vérifier l'effet des radiations sur les performances de ces cristaux.

C.4.2. Mesure LIDAR multi-espèces résolue spatialement depuis le sol

Au cours de ma thèse, il n'a pas été possible de réaliser une mesure LIDAR DiAL résolue spatialement par manque de temps car j'ai exploré beaucoup d'aspects en amont. Une des perspectives de ces travaux est la réalisation de cette mesure au cours de la thèse d'E. Cadiou. Ainsi, la mesure LIDAR DiAL multi-espèces résolue spatialement se décompose en trois étapes principales :

Dans une première étape, il conviendra de réaliser la mesure du signal rétrodiffusé par l'atmosphère. Cette première phase est importante car elle permettra la validation du modèle numérique présenté dans la section C.3. Le faisceau signal est émis avec un angle en hauteur de 20° depuis le sous-sol du bâtiment permettant l'accès à une cible topographique, un arbre, située à 50 ou 100 m du système de réception. Un pré-réglage du système sera effectué avec le retour de la cible. Par la suite l'angle de visée pourra être élevé à 30° afin de mesurer le signal rétrodiffusé par l'atmosphère.

Ensuite dans une seconde étape, il s'agira de réaliser une démonstration de principe de la mesure LIDAR sur le CO_2 atmosphérique au travers de campagnes de mesures extérieures. Le faisceau laser est émis vers l'extérieur du laboratoire, avec un angle en hauteur de 30° depuis le laboratoire. Par ailleurs, les spécifications du rayonnement signal généré par l'émetteur sont résumées dans le *Tableau 41*. Lors de cette étape, le faisceau signal sera collimaté sur un waist ω_0 de 6 mm. Dans ces conditions, la divergence naturelle du faisceau est suffisamment faible par rapport à l'ouverture de la réception permettant d'obtenir un recouvrement émission/réception le plus grand possible à longue portée. Il conviendra également de mettre en place une acquisition rapide, une numérisation des données et une inversion de spectre.

Longueur d'onde d'émission	2,05 µm
Energie par impulsion	18 mJ au maximum
Durée de l'impulsion	10 ns
Cadence	30 Hz
Waist ω_0	6 mm

Tableau 41 : Caractéristiques d'émission pour les mesures LIDAR de la seconde étape.

Dans ces conditions expérimentales, la Distance Nominale de Risque Oculaire, DNRO, est de l'ordre de 45 m (cf. Annexe D). Cette distance est supérieure à la distance parcourue par le faisceau à l'intérieur du sas du laboratoire, les conditions de sécurité oculaire ne sont pas respectées sur les premiers 40 m de propagation. Il faudra prendre les mesures de sécurité nécessaires près du laboratoire lors des essais LIDAR.

Enfin, la dernière étape consisterait à démontrer le potentiel multi-espèces de l'instrument pour la mesure LIDAR DiAL sur la vapeur d'eau et le méthane. Par ailleurs, la réalisation de tests de mesures LIDAR DiAL ou multi-longueurs d'onde sur au moins deux espèces simultanément pourrait avoir lieu à cette occasion.

C.5. Synthèse

Au cours de cette partie, nous avons mis en évidence le potentiel des sources laser procheIR s'appuyant sur la technologie NESCOPO développé pour le suivi de gaz à effet de serre par mesure LIDAR DiAL depuis l'espace. Elle s'articule autour de trois aspects :

- ✓ Le développement et la caractérisation de l'émetteur ;

Nous avons démontré au cours de la section C.2, des niveaux de performances de l'émetteur satisfaisants pour les applications spatiales. En effet, du point de vue spatio-temporel et énergétique, l'émetteur délivre des impulsions signal avec une énergie de l'ordre de 20 mJ avec un $M^2 < 1,1$ avec une stabilité en intensité de +/- 10 % sur 10 s. De plus, la stabilité en fréquence sans asservissement de la longueur d'onde est de l'ordre de 4 MHz rms sur 10 s. De premières expériences ont été initiées sur la stabilisation en fréquence par D. Mammez dans le cadre d'un Post-doctorat permettant d'atteindre des stabilités inférieures à 2 MHz rms sur 10 s. Par ailleurs, des mesures de spectres en cellule ont été réalisées sur le dioxyde de carbone à 2,05 µm et le méthane à 2,21 µm.

- ✓ Le développement d'un code de simulation de l'instrument ;

Un code numérique de modélisation directe à été développé au cours de cette thèse pour répondre à une problématique simple : l'estimation des performances de l'instrument DiAL résolu spatialement à 2 µm en détection directe. Il permet la conception du bloc de réception et la réalisation de bilans de portée. Par la suite, ce code numérique sera intégré à un code d'inversion. Par ailleurs, une étude préliminaire à été engagée pour répondre à la problématique suivante : pouvons-nous utiliser les deux ondes disponibles en sortie du banc pour la réalisation de mesures simultanées de plusieurs gaz. La conclusion de cette étude montre la possibilité de réaliser une mesure simultanée du méthane et de la vapeur d'eau autour de 2,3 µm et 1,9 µm respectivement.

- ✓ Les perspectives d'amélioration de l'émetteur et l'instrument.

Plusieurs pistes d'amélioration ont été proposées pour l'émetteur en termes de robustesse et de niveaux d'énergie, en particulier, par un choix judicieux de cristaux non linéaire d'amplification.

Conclusions générales - Perspectives

Au cours de ces travaux de thèse, deux instruments LIDARs multi-longueurs d'onde et multi-espèces basés sur des émetteurs mettant en œuvre un NesCOPO ont été développés afin de répondre aux problématiques liées aux deux applications suivantes :

- Le suivi de la qualité de l'air sur sites industriels
- Le suivi des gaz à effet de serre depuis l'espace.

L'instrument LIDAR IP-DiAL moyenne portée dans la gamme spectrale de 3,3 µm à 3,7 µm

Dans le cadre du suivi de la qualité de l'air en zone industrielle, nous avons développé un instrument de mesure IP-DiAL multi-espèces dans la gamme spectrale 3,3 µm à 3,7 µm permettant le suivi de gaz ou polluants industriels. Les points abordés au cours des travaux réalisés sont les suivants :

- ✓ Le développement et la caractérisation de l'instrument ;

L'émetteur est développé à partir d'un NesCOPO amplifié. Il délivre des impulsions de 5 µJ en régime nanoseconde accordable sur 14 nm, soit 13 cm^{-1}, à température fixée. La stabilité en direction du faisceau complémentaire en sortie de l'émetteur est très bonne et vaut environ 0,05 mrad. Les fluctuations en intensité de ce faisceau complémentaire sont de l'ordre de +/- 3 % sur 1 s en écart-type qui sont corrigées grâce à une voie de référence.

Le bloc de réception est constitué d'une lentille et d'un détecteur MCT refroidi azote. Afin de corriger les fluctuations en puissance de l'émetteur, une voie de référence a été mise en place. Le bloc d'acquisition utilise un boxcar afin d'améliorer le Rapport Signal sur Bruit lors de la mesure. Par ailleurs, un programme LabView développé au cours d'une thèse précédente permet l'acquisition des données et la génération des séquences de longueurs d'onde émises.

- ✓ La mise en œuvre de l'instrument à 3,3 µm pour des mesures de concentration multi-espèces sur le méthane et la vapeur d'eau atmosphériques sur une portée de 30 m ;

Des mesures de concentrations LIDAR intégrées colonne multi-espèces ont été réalisées pendant plusieurs jours. Une mesure de concentration a été réalisée en 7 minutes environ. A l'aide d'un outil d'inversion développé par A. Dobroc, il a été possible d'estimer la concentration en méthane à 1,77 ppm +/- 0,09 ppm et la concentration en vapeur d'eau à 9,44 ‰ +/- 0,37 ‰ soit une humidité relative de 38 % +/- 4 %. Les résultats obtenus lors de ces expériences montrent une bonne fiabilité de l'estimation en concentration du méthane avec une incertitude inférieure à 10 % malgré les fortes variations en vapeur d'eau atmosphérique.

- ✓ L'analyse du bruit de mesure de concentration ;

Plusieurs sources de bruit ont été étudiées, le bruit dû aux erreurs dites "systématiques" et le bruit dû aux erreurs dites "statistiques". Au cours de cette analyse nous avons mis en évidence deux sources d'erreurs importantes : le bruit de détection et l'incertitude sur la fréquence complémentaire émise. Cette seconde source d'erreur est actuellement la source d'erreur limitante de nos mesures. Deux solutions ont été proposées afin de limiter cette source d'erreur : réaliser une mesure précise et absolue de la longueur d'onde

complémentaire émise par l'instrument à l'aide d'une cellule de gaz de référence ou alors réaliser une mesure simultanée de la longueur d'onde signal émise par l'instrument et de la longueur d'onde de pompe.

- ✓ L'analyse des performances de l'instrument ;

A partir des résultats LIDAR obtenus avec une portée de 30 m, la portée maximale de l'instrument a été estimée à 190 m. Pour le méthane et la vapeur d'eau atmosphériques, la sensibilité de notre instrument permettrait d'obtenir une portée de 100 m. Cependant, sa sensibilité n'est pas suffisante pour permettre un suivi de la concentration atmosphérique des autres espèces présentes entre 3,3 et 3,7 µm.

- ✓ Perspectives : amélioration de la robustesse de l'émetteur ;

Enfin, l'Onera travaille depuis quelques années à la miniaturisation des OPO grâce à une méthode de collage UV. La nouvelle opto-mécanique permet d'obtenir une excellente stabilité en fréquence du NesCOPO en boucle ouverte sur le long terme. Sur le court terme, la fréquence du faisceau signal varie typiquement de 20 MHz sur quelques minutes. Ces fluctuations sont limitées par le bruit en fréquence du laser de pompe. Le premier NesCOPO collé a récemment été réalisé et implémenté dans un instrument IP-DiAL.

L'instrument LIDAR DiAL résolu spatialement longue portée autour de 2 µm

Dans le cadre du suivi des gaz à effet depuis l'espace, un instrument de mesure DiAL résolu spatialement multi-espèces dans la gamme spectrale autour de 2 µm a été réalisé. Les points abordés au cours des travaux de thèse sont les suivants :

- ✓ Le développement et la caractérisation de l'émetteur multi-espèces autour de 2 µm ;

Les performances de l'émetteur ont été améliorées au cours de cette thèse, en particulier, d'un point de vue spatio-temporelles et énergétiques. En effet, l'émetteur délivre des impulsions signal avec une énergie de l'ordre de 20 mJ au lieu de 12 mJ en conservant une très bonne qualité spatiale $M^2 < 1,1$. La stabilité en fréquence sans asservissement de la longueur d'onde est de l'ordre de 3 MHz équivalente aux travaux précédents. Par ailleurs, l'émetteur permet à présent d'adresser trois gaz à effet de serre (CO_2, CH_4 et H_2O). Enfin, il a été montré la possibilité de générer des séquences de longueurs d'onde contenant jusqu'à cinq fréquences tir à tir à une cadence de 30 Hz ce qui présente un intérêt dans les applications spatiales pour contrer les effets dus au mouvement du porteur au cours d'une mesure.

- ✓ Le développement d'un code numérique de modélisation de l'instrument ;

Au cours de cette thèse, un code numérique de modélisation directe à été développé permettant de réaliser des bilans de portée en détection directe à 2 µm. Il permet également de concevoir le bloc de réception et d'estimer alors les performances de l'instrument LIDAR DiAL résolue spatialement. Ce code numérique sera intégré à un code d'inversion. Une étude préliminaire à été menée pour répondre à la problématique suivante : pouvons-nous réaliser une mesure lidar en utilisant les deux ondes disponibles en sortie du banc pour permettre la mesure simultanées de plusieurs gaz. Cette première étude autour de 2 µm montre la possibilité de réaliser une mesure simultanée du méthane et de la vapeur d'eau autour de 2,3 µm et 1,9 µm respectivement.

- ✓ Les perspectives d'amélioration du banc émetteur ;

L'amélioration de la stabilité en fréquence est actuellement en cours d'étude par D. Mammez dans le cadre d'un Post-doctorat. La stabilisation en fréquence qui doit être mise en place doit être efficace que pour corriger des fluctuations lentes. Une rigidification du système permettrait une amélioration de la stabilité thermique et mécanique intrinsèque de l'émetteur et donc une meilleure stabilité sur les temps courts. Des études concernant la robustesse et l'optimisation du rendement de conversion feront l'objet de futurs travaux de thèse. Il sera notamment nécessaire de rigidifier l'opto-mécanique du banc émetteur et de remplacer les étages de KTPs en accord de phase par biréfringence par des cristaux de PPLN ou PPKTP en quasi-accord de phase de grande ouverture.

Perspectives

Au cours de mes travaux, j'ai démontré le potentiel multi-espèces des instruments basés sur une source paramétrique. Jusqu'à présent, une seule des deux ondes est utilisée pour réaliser les mesures LIDAR. Mais il serait peut-être possible d'utiliser l'onde signal et l'onde complémentaire simultanément pour réaliser des mesures de concentration dans deux gammes spectrales. Pour cela, une première étude à été réalisée autour de 2 µm montrant la possibilité de réaliser une mesure simultanée du méthane et de la vapeur d'eau. Des pistes restent encore à explorer, comme par exemple pour les gammes spectrales signal située entre 1,5 et 1,6 µm et complémentaire associée située entre 3,3 et 3,7 µm. Cette possibilité d'utiliser les ondes signal et complémentaire permettrait d'étudier simultanément les gaz à effet de serre présent autour de 1,5 µm et les polluants industriels présents autour de 3 µm.

Les développements réalisés ont été effectués aux longueurs d'onde inférieures à 5 µm permettant de répondre à deux applications : le suivi de polluants industriels et le suivi de gaz à effet de serre. Pour aller plus loin, il serait intéressant de réaliser des instruments de LIDAR pour la détection et la quantification de gaz de combats et d'explosifs dans la gamme spectrale comprise entre 8 et 12 µm. Actuellement, des développements de ce type sont en cours à l'Onera. Ils font notamment l'objet de la thèse de Q. Clément.

Annexes

Annexe A. Outils d'inversion utilisés au cours de cette thèse

Des codes d'inversion sont indispensables pour réaliser des estimations de concentrations à partir de spectre de transmission mesuré. Au cous de cette thèse, j'ai pu utiliser deux codes d'inversion différents. L'un a été développé dans l'unité SLM du DMPH par A. Mohamed et utilise la méthode de minimisation par les moindres carrés. L'autre a été développé au cours de la thèse A. Dobroc [Dobroc - 2013] du DOTA et s'appuie sur la méthode du maximum de vraisemblance.

Annexe A.1. Code d'inversion basé sur la méthode de minimisation par les moindres carrés

Ce premier code d'inversion est basé sur la méthode de minimisation de l'erreur de fit par rapport aux données expérimentales par les moindres carrés. Il a été développé par A. Mohamed de l'équipe SLM/DMPH. Le principe général de fonctionnement de ce premier code d'inversion est représenté sur l'organigramme de la *Figure 102*. C'est un processus itératif visant à améliorer à chaque itération un ensemble de paramètres initial X^0 par rapport à des données expérimentales en minimisant la fonction χ^2. La première étape consiste à définir les valeurs initiales des paramètres à déterminés X^0, si possible assez proche des valeurs réelles. Par rapport aux données expérimentales acquises, une première valeur de la fonction χ^2 est calculée. Ensuite, nous entrons dans la boucle itérative. Les dérivées partielles de chaque paramètre à estimer de la fonction χ^2 sont calculées au premier ordre. ΔX est le vecteur contenant l'ensemble des dérivées partielles. Un nouveau vecteur paramètre X est défini comme la solution initiale ou précédente dont chaque paramètre est incrémenter par la valeur de sa dérivée partielle soit $X = X + \Delta X$. Une nouvelle fois, la valeur de la fonction $\chi^2(X+\Delta X)$ est calculée. Si le test de convergence n'est pas vérifier, on réitère le processus. Si le test de convergence est vérifié alors les paramètres sont estimés et l'erreur est calculée.

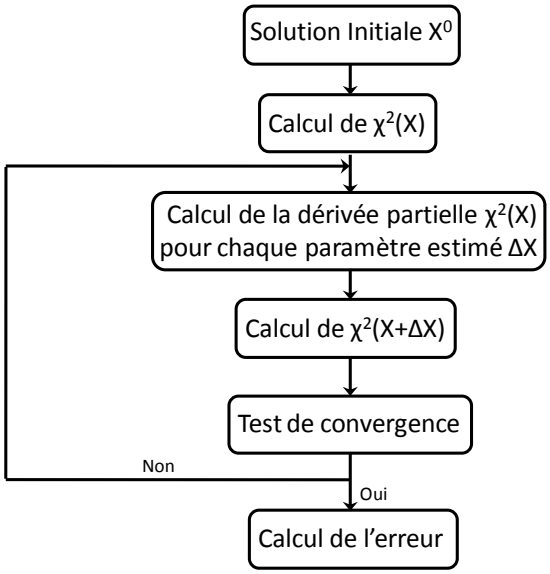


Figure 102 : Organigramme du principe de fonctionnement du code d'inversion basé sur la méthode de minimisation par les moindres carrés développés par A. Mohamed

Pratiquement, les paramètres de l'inversion pouvant être estimés sont les suivants : la pression P, la température T, les paramètres de la ligne de base, le nombre d'espèces gazeuses présentes sur la ligne de visée, la concentration des espèces recherchées n_Z et la vitesse des molécules v. La vitesse v correspond à un mouvement global de l'ensemble des molécules homogène en termes de direction c'est-à-dire que l'effet Doppler est pris en compte lors de l'inversion. La ligne de base est définie comme un polynôme de degré M avec (M+1) paramètres à estimer. Dans le cadre de nos mesures IP-DiAL, la pression P et la température T sont supposées connues et seuls deux espèces atmosphériques CH_4 et H_2O sont présentes. En effet, la température est mesurée et la pression est supposée égale à 1 bar. De plus, deux critères de convergence sont utilisés lors du processus itératif : (1) la valeur de la fonction χ^2 est inférieure à une valeur consigne et (2) le nombre d'itération maximale à réaliser. Par ailleurs, la ligne de visée peut être divisée en plusieurs couches distinctes dont les paramètres à estimer sont ajustable indépendamment les uns des autres dans chaque couche. Dans le cadre, de nos mesures de concentration intégrées sur la ligne de visée une seule couche est définie d'une longueur égale à la position de la cible par rapport à l'instrument. Le calcul de l'erreur en concentration est effectué à partir des erreurs du fit par rapport à chaque paramètre estimé. C'est une erreur statistique déterminée par la trace de la Jacobienne des paramètres. Cet estimateur est simple et robuste. Il ne nécessite aucune information sur la statistique de bruit du signal. Cependant, il peut être biaisé pour des valeurs de transmission faible inférieure à 0,3.

Annexe A.2. Code d'inversion basé sur la méthode du maximum de vraisemblance

Le second code d'inversion utilisé au cours de ces mesures de concentration multi-espèces intégrée sur la ligne de visée est basé sur la méthode du maximum de vraisemblance. Il a été développé par A. Dobroc de l'équipe SLS/DOTA au cours de sa thèse [Dobroc - 2013] et est aujourd'hui maintenu et utilisé par N. Cézard. Le principe général de fonctionnement ce premier code d'inversion est représenté sur l'organigramme de la *Figure 103*. Ce code est également basé sur un processus itératif cherchant cette fois à maximiser une grandeur appelée la vraisemblance du signal. Cette grandeur est définie comme la probabilité d'observer le signal S sachant X, le vecteur des paramètres à estimer. Cette méthode présente l'avantage d'être "asymptotiquement efficace" c'est-à-dire que la variance de l'estimateur atteint les Bornes de Cramer Rao [BCR] si l'on dispose d'un grand nombre d'observations. Néanmoins, elle nécessite de connaître parfaitement la statistique de bruit du signal mesuré. A partir d'une solution initiale du vecteur paramètre X^0, la valeur de la dérivée du logarithme de la vraisemblance est calculée. Suite à cette première étape, la boucle itérative commence. Le vecteur paramètre X est alors incrémenter d'une quantité ΔX et la valeur de la dérivée du logarithme de la vraisemblance est une nouvelle fois calculée. Si cette valeur de la dérivée vérifie le test de convergence alors l'erreur des paramètres estimés est calculée. Sinon, le processus est réitéré.

Dans le cadre de nos mesures de concentration, cinq paramètres sont à estimer : la concentration en méthane n_{CH4}, la concentration en vapeur d'eau n_{H2O}, les 3 paramètres du polynôme d'ordre 2 composant la ligne de base. La pression et la température sont supposées connues. L'initialisation des paramètres de concentration se déroule différemment par rapport au code précédent. En effet, les valeurs initiales de concentration en espèces sont le résultat d'une première inversion réalisée par la méthode de

minimisation du par les moindres carrés non pondérés sur signal linéarisé [MCNPSL]. Les critères de convergence utilisés lors de la boucle itérative sont : (1) l'annulation de la dérivée du logarithme de la vraisemblance par rapport au vecteur paramètre X et (2) la vérification du signe de la dérivée seconde du logarithme de la vraisemblance pour s'assurer qu'il s'agit bien d'un maximum (la dérivée seconde doit être négative). Par ailleurs, cet estimateur nécessite de connaître la statistique de bruit du signal mesuré. Le bruit de mesure simulé est composé de deux contributions : (1) un bruit blanc gaussien centré dont l'écart-type vaut 2 % et (2) un bruit de fréquence dû à l'incertitude de l'estimation de la valeur de la fréquence complémentaire de 160 MHz. Enfin, l'erreur d'estimation de la concentration est considérée égale à +/- $2\sigma_{BCR}$. Les BCR sont calculées à partir de la variance de bruit du signal mesuré. Cette variance est considéré égale à l'écart-type du résidu représentant la différence entre le signal mesuré et la meilleure régression.

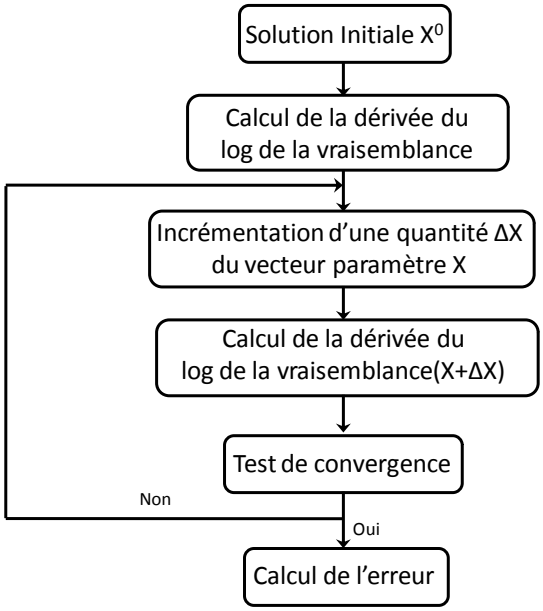


Figure 103 : Organigramme du principe de fonctionnement du code d'inversion basé sur la méthode de maximisation de la vraisemblance développé par A. Dobroc

Annexe B. Optimisation de la portée de mesure de l'instrument IP-DiAL à 3 µm

L'objectif ici est d'optimiser la portée de l'instrument décrit dans le chapitre B. Pour cet instrument, cela revient à augmenter l'énergie émise à une énergie de pompe donnée. Ainsi, cela nous conduit à augmenter le rendement de conversion de l'émetteur.

Annexe B.1. Mise en évidence d'un compromis gain et largeur de gain

Afin d'optimiser le rendement de conversion, la première solution testée consiste à augmenter la longueur du milieu non linéaire. Le gain d'amplification "petit signal" est directement proportionnel à la longueur du cristal non linéaire utilisé. En revanche la largeur du gain est inversement proportionnelle à la longueur du cristal :

$$Largeur\ de\ la\ bande\ de\ gain\ \propto 1/L \qquad (Eq.\ 65)$$

Cette méthode permet d'augmenter le gain d'amplification mais diminue la largeur de la bande de gain d'amplification d'autant plus que le cristal d'amplification est long. Dans le cadre d'application de mesures de concentration multi-espèces sur de large gamme spectrale, la diminution de la largeur de la bande de gain peut devenir une contrainte. Pour illustrer ce compromis gain et largeur de gain, nous avons comparé les performances d'amplification du cristal de 20 mm de long présenté dans la section B.1.3 et d'un cristal de 50 mm de long.

Dans cette configuration le faisceau complémentaire en sortie du NesCOPO est amplifié au maximum par un facteur 70. Ce gain important permet d'extraire jusqu'à 10 µJ sur l'onde complémentaire émise autour de 3,3 µm. Ceci conduit à un rendement optique - optique vers le complémentaire d'environ 5 % soit en considérant les deux ondes un rendement global d'environ 15 %.

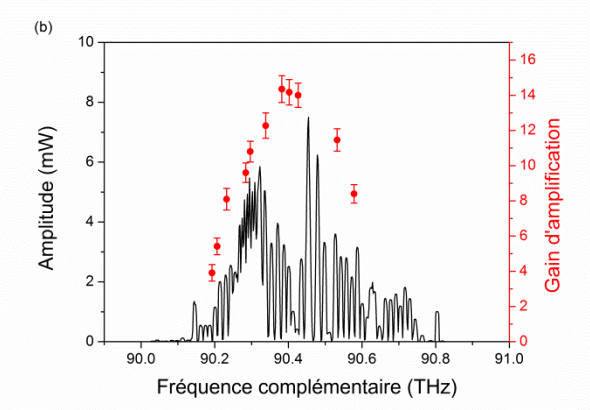


Figure 104 : Comparaison de la largeur d'émission de l'OPO (trait plein noir) et la largeur d'amplification de l'OPA (points rouge) avec le cristal de 50 mm à 3,3 µm à faible puissance de pompe incidente

La *Figure 104* montre la différence de largeur entre la bande de gain d'émission du NesCOPO et la bande de gain d'amplification avec le cristal de 50 mm de long. La bande de gain d'émission du NesCOPO est mesurée à l'analyseur de spectre optique en mesurant la longueur d'onde signal. Cette mesure montre que l'émetteur est accordable sur une gamme

spectrale de 250 GHz environ pour un étage d'amplification constitué d'un cristal de 50 mm de long. L'accord en fréquence disponible dans ces conditions permet quand même de réaliser une mesure multi-espèces du méthane et de la vapeur d'eau.
Le bilan des performances de ces deux étages d'amplification est résumé dans le *Tableau 42*. Nous pouvons remarquer que le produit gain par la largeur de bande de gain est du même ordre de grandeur pour ces deux expériences. Ces résultats montrent bien le compromis la largeur de la bande de gain d'amplification et gain en fonction de la longueur du cristal.

Longueur du cristal	Gain d'amplification	Largeur de la bande de gain
20 mm	38	400 GHz
50 mm	70	250 GHz

Tableau 42 : Bilan des performances des deux amplificateurs caractérisés

Afin de donner un ordre de grandeur des performances atteignables dans cette configuration, jusqu'à 10 µJ sur la longueur d'onde complémentaire sont disponibles en sortie de l'émetteur sur une plage spectrale de 250 GHz suffisante pour réaliser une mesure IP-DiAL du méthane et de la vapeur d'eau simultanément. Néanmoins, la dégradation du profil spatial du faisceau diminuera les performances d'une mesure LIDAR. Ce facteur 2 sur l'énergie permet en théorie, d'augmenter la portée de l'instrument jusqu'à 260 m et en supposant que les champs d'émission et de réception sont bien adaptés.
Dans le cadre de mesures de concentration multi-espèces ou d'espèces présentant des raies très larges longue portée, ce compromis peut être gênant. Une solution alternative est proposée dans le paragraphe suivant permettant d'avoir des largeurs de bande de gain importante tout en conservant un rendement de conversion élevé.

Annexe B.2. Les apports potentiels des cristaux en PPLN apériodiques

Dans ce paragraphe, l'objectif est de montrer l'intérêt que présente l'utilisation de ces cristaux spécifique dans un étage d'amplification pour nos applications. Les cristaux apériodiques permettent de mettre en forme la bande de gain d'un cristal par un dimensionnement spécifique des plages de retournement périodique du cristal ferroélectrique. Ils ont été particulièrement utilisés pour les domaines temporels des impulsions courtes en régime picoseconde ou femtoseconde car ils présentent l'avantage d'avoir des bandes de gain très larges [Tillman - 2007 ; Umeki - 2009]. Les perspectives offertes par ces cristaux sont intéressantes pour la mesure LIDAR multi-espèces.

Figure 105 : Schéma du cristal apériodique

Un cristal apériodique est un cristal dont le pas évolue linéairement sur toute la longueur du cristal comme illustré sur la *Figure 105*. Les cristaux apériodiques sont caractérisés par trois paramètres :

- le pas central du réseau ;

- le taux de chirp κ représentant la variation du pas du réseau en fonction de z et
- les paramètres d'apodisation μ et ν.

Le pas d'un réseau varie sur toute la longueur du cristal et s'exprime par la relation suivante [Charbonneau-Lefort - 2008] :

$$\Lambda(z) = \frac{2\pi}{K_g(z)} \qquad \textit{(Eq. 66)}$$

Le vecteur réseau $K_g(z)$ s'exprime de la manière suivante [Charbonneau-Lefort - 2008] :

$$K_g(z) = K_0 + \kappa\left(z - \frac{L}{2}\right) + \mu\left(\frac{2z}{L} - 1\right)^{\nu} \qquad \textit{(Eq. 67)}$$

$$\text{avec } \kappa = -\frac{dK_g(z)}{dz}$$

avec $K_0 = 2\pi/\Lambda_0$ le vecteur réseau central et L la longueur du cristal.

Les développements effectués autour de ces cristaux dans l'équipe s'orientent vers des applications de spectrométrie rapide à l'aide d'impulsions courtes en régime picoseconde qui font l'objet de la thèse de D. Descloux. Dans le cadre de ma thèse, les premiers tests expérimentaux ont été réalisés avec un cristal dimensionné pour la gamme spectrale situé autour de 4,2 µm dont les caractéristiques sont résumées dans le *Tableau 43*. Afin d'éviter les rebonds dans de la bande de gain trop important une apodisation est réalisée [Phillips - 2013]. Pour le cristal utilisé, une apodisation adaptée à chacun des cinq réseaux a été réalisée. Ce cristal a été conçu par C. Laporte au cours de sa thèse.

Réseau	Pas central	Taux de chirp κ (m^{-2})
1	29,2 µm	$1{,}8.10^4$
2		$2{,}8.10^4$
3		$3{,}2.10^4$
4		$3{,}9.10^4$
5		$4{,}75.10^4$

Tableau 43 : Bilan des caractéristiques des cinq réseaux du cristal en APPLN

Le cristal en PPLN de 60 mm de long est composé de 5 réseaux dont les propriétés de chirp sont différentes. Expérimentalement, seul deux des cinq réseaux ont été testés, à savoir les réseaux 1 et 4. Les valeurs des taux de chirp de ces deux réseaux étant très différentes, les propriétés de la bande de gain d'amplification sont différentes pour chacun d'eux.

Le principe de mesure de la bande de gain d'amplification de l'étage OPA est le même que celui décrit au paragraphe précédent. Néanmoins, la large accordabilité du NesCOPO, à température fixée, n'est pas suffisante pour mesurer la totalité de la bande de gain de l'étage d'amplification. Il est alors nécessaire de réaliser un accord en température du NesCOPO supplémentaire. Les mesures de gain d'amplification ont été réalisées avec ce cristal autour de 3,7 µm.

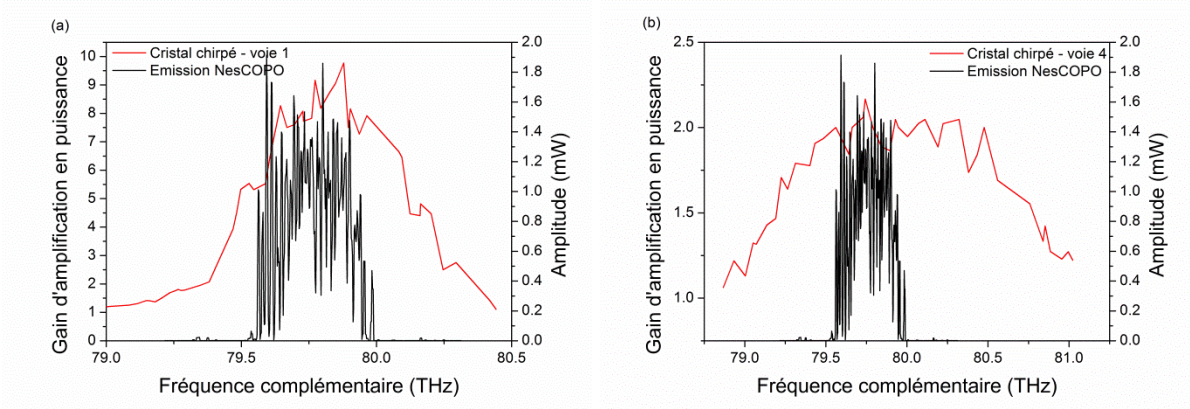


Figure 106 : Comparaison de la largeur d'émission de l'OPO (trait plein noir) et la largeur de gain d'amplification de l'OPA (points rouge) avec le cristal apériodique de 60 mm à 3,7 µm à faible puissance de pompe incidente

La bande d'émission du NesCOPO et la bande de gain d'amplification du cristal apériodique pour les deux voies testées sont représentées sur la *Figure 106*. Nous remarquons la largeur de la bande de gain de l'étage d'amplification dépend de la valeur du taux de chirp. En effet, plus le taux de chirp est faible plus la bande de gain d'amplification est large. Avec un taux de chirp important comme pour la voie 4, la largeur de la bande de gain d'amplification atteint trois à quatre fois la largeur de la bande d'émission du NesCOPO comme illustrer sur la *Figure 106(b)*. Il s'avère que même la voie 1 dont le taux de chirp est le plus faible permet d'amplifier l'ensemble de la bande d'émission de l'OPO.

Cristal	Réseau	Longueur	Longueur d'onde	Gain	Largeur de bande de gain
APPLN	1	60 mm	3,7 µm	9	600 GHz
	4			2	1,5 THz

Tableau 44 : Bilan des mesures de bande de gain des différentes configurations de l'étage d'amplification

Ce type de cristaux suscite un vif intérêt pour de nombreuses applications nécessitant des sources optiques énergétiques et très large bande. Pour finir avec cet étage d'amplification constitué du cristal APPLN non optimum en utilisant la voie 1, l'émetteur délivre jusqu'à 1 µJ sur la longueur d'onde complémentaire. Ainsi, la portée de l'instrument est estimée à 100 m environ. L'utilisation de ce cristal non optimum ne permet pas d'améliorer la portée de l'instrument. Les cristaux apériodiques peuvent se révéler très intéressants dans le cadre d'applications LIDAR longue protée multi-espèces nécessitant une énergie importante ainsi qu'une très large accordabilité. Ainsi, une des perspectives de cette thèse est le développement de cristaux spécifiquement dédiées aux applications de suivi de gaz par mesure IP-DiAL ou DiAL résolue spatialement permettant d'obtenir une bande de gain suffisamment large pour amplifié l'ensemble du spectre souhaité tout en conservant un gain important.

Annexe C. Expression et propriétés de la forme de raie

Rappelons ici que la diffusion Brillouin est un processus de diffusion inélastique mettant en jeu les modes acoustiques d'un ensemble de molécule. Dans ce paragraphe, nous ne prenons pas en compte le phénomène d'élargissement de la raie et de déformation du profil de raie liés à la diffusion Brillouin. En effet, l'impact de la diffusion Brillouin sur la raie d'absorption dans le domaine infrarouge est négligeable. Tout d'abord, rappelons que la section efficace d'absorption d'une molécule $\sigma_{abs}(\nu)$ pour une transition donnée s'exprime de la manière suivante :

$$\sigma_{abs}(\nu) = S \times f(\nu) \qquad \text{(Eq. 68)}$$

avec S l'intensité de la raie exprimée en $cm^{-1}/(molécules.cm^{-2})$ et $f(\nu)$ la forme de raie exprimé en cm^{-1}.

Sachant que l'intégrale de la section efficace d'absorption d'une transition donnée sur l'ensemble du spectre est égale à la force de raie S alors, la forme de la raie $f(\nu)$ vérifie la condition suivante :

$$\int_0^{+\infty} f(\nu)d\nu = 1 \qquad \text{(Eq. 69)}$$

Le modèle atmosphérique utilise les intensités de raies fournit par la base de données HITRAN 2012. Ces coefficients sont donnés pour une température T_0 = 296 K. Or en visée verticale la température de l'atmosphère varie en fonction de l'altitude. Ainsi, la relation suivante relie l'intensité de raie $S(T)$ avec la température T :

$$S(T) = S_0 \frac{T_0}{T} exp\left(-\frac{Ehc}{k_B} \times \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right) \qquad \text{(Eq. 70)}$$

avec S_0 la force de raie exprimée en $cm^{-1}/(molécules.cm^{-2})$, E l'énergie du niveau fondamentale de la transition, h la constante de Planck, k_B la constante de Boltzmann, c la célérité de la lumière dans le vide.

Une raie d'absorption atmosphérique peut adoptée plusieurs formes suivant les conditions de pression et température. En effet, l'élargissement spectral d'une raie atmosphérique peut être dû aux collisions intermoléculaires, à l'effet doppler ou à une combinaison de ces deux effets. Or ces derniers dépendent des conditions de pression et de température.

- L'élargissement des raies atmosphériques par effet Doppler

L'élargissement par effet Doppler provient soit de la désexcitation spontanée des molécules de l'atmosphère soit du mouvement des molécules. Cet élargissement dit naturel conduit à la largeur spectrale minimale de la raie. Cet effet est modélisé par une forme de raie gaussienne nommée la forme Doppler dont l'expression est fournie ci-dessous :

$$f(\nu) = \frac{1}{\alpha_D}\left(\frac{ln(2)}{\pi}\right)^{1/2} exp\left(-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\alpha_D}\right)^2 ln(2)\right) \qquad \text{(Eq. 71)}$$

avec α_D la mi-largeur à mi-hauteur et ν_0 la fréquence du centre de la raie.

La mi-largeur à mi-hauteur du profil Doppler α_D dépend uniquement de la température T. Elle est définie de la manière suivante :

$$\alpha_D(T) = \alpha_D(T_0)\left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/2} \qquad \textit{(Eq. 72)}$$

avec $\alpha_D(T_0)$ le coefficient d'élargissement radiatif (ou naturel) de la raie fournit par la base de données HITRAN à T_0 = 296 K.

L'élargissement par effet Doppler est prépondérant dans les couches atmosphériques de basses pressions. Ainsi, au sommet de l'atmosphère, on pourra approximer le profil de raie par un profil Doppler.

- L'élargissement des raies atmosphériques par collisions moléculaires

Le second processus provoquant un élargissement des raies atmosphérique est lié à la désexcitation des gaz par collisions. Il conduit à un élargissement homogène de la raie dont le profil est modélisé par la forme lorentzienne appelé profil de Lorentz dont l'expression est fournie ci-dessous :

$$f(\nu) = \frac{1}{\pi} \times \frac{\alpha_c}{(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_c^2} \qquad \textit{(Eq. 73)}$$

avec α_c la mi-largeur à mi-hauteur et ν_0 la fréquence du centre de la raie.

La mi-largeur à mi-hauteur du profil de Lorentz α_c dépend de la température T et de la pression P. Elle est définie par la relation suivante :

$$\alpha_c(T,P) = \alpha_c(T_0,P_0)\frac{P}{P_0}\left(\frac{T_0}{T}\right)^n \qquad \textit{(Eq. 74)}$$

avec $\alpha_c(T_0, P_0)$ le coefficient d'élargissement collisionnelle de la raie fournit par la base de données HITRAN à $T_0 = 296\ K$ et $P_0 = 1013{,}25\ hPa$ et n une valeur caractéristique de la molécule adressée.

La valeur du paramètre n généralement admise est 0,5. Par ailleurs, l'élargissement par collisions moléculaire est prépondérant dans les basses couches de l'atmosphère pour lesquelles la pression est forte. Ainsi, près du sol, le profil de raie pourra être approximé par un profil de Lorentz.

- L'élargissement des raies atmosphériques par une combinaison des deux effets

Dans le cas général où la pression n'est ni trop basse ni trop élevée, le profil de raie est défini par le profil de Voigt [Armstrong - 1967]. Ce dernier résulte de la convolution entre un profil Doppler et un profil Lorentzien défini par la relation suivante :

$$f(\nu) = \frac{1}{\alpha_c}\left(\frac{ln(2)}{\pi}\right)^{1/2}\frac{a}{\pi} \times \int_{-\infty}^{+\infty}\frac{e^{-x^2}}{a^2 + (t - x^2)}dx \qquad \textit{(Eq. 75)}$$

$$a(T,P) = \frac{\alpha_c(T,P)}{\alpha_D(T)}\sqrt{ln(2)} \qquad \textit{(Eq. 76)}$$

$$t = \frac{\nu - \nu_0}{\alpha_D(T)}\sqrt{ln(2)} \qquad \textit{(Eq. 77)}$$

Annexe D. Sécurité oculaire

L'émission de rayonnement dans l'atmosphère est soumise à des conditions de sécurité pour les yeux et la peau. Les conditions d'utilisation des sources laser sont définit par l'énergie maximale permise EMP par unité de surface [J.m^{-2}] fournie par les normes française et européenne NF EN 60825-1 de 2008. La valeur de l'EMP dépend de l'organe concerné, de la longueur d'onde émise et du régime temporel de fonctionnement du laser. L'énergie maximale permise est particulièrement faible dans le visible. Il sera plus simple d'avoir un système à sécurité oculaire dans les gammes spectrales infrarouge et ultraviolet où λ > 1400 nm et λ < 400 nm respectivement. Ainsi, pour évaluer le risque laser, la valeur de référence est la DNRO pour Distance Nominale de Risque Oculaire. Cette dernière est définit par la relation suivante [Laser Conseil] :

$$DNRO = \frac{1}{\Phi} \times \left(\frac{4E}{\pi EMP}\right)^{1/2} - a \qquad \textit{(Eq. 78)}$$

$$\Phi = 2arctan\left(\frac{\lambda}{\pi w_0}\right) \qquad \textit{(Eq. 79)}$$

avec ϕ la divergence du faisceau, $a = 2\omega_0$ la largeur totale du faisceau au waist à 1/e², *EMP* l'énergie maximale permise et *E* l'énergie par impulsion du faisceau.

De plus, le rayonnement utilisé est le rayonnement laser infrarouge produit par le banc existant autour de 2 µm. Or dans une gamme spectrale comprise entre 1,4 µm et 10 µm, l'œil est l'organe touché par une exposition trop importante au rayonnement laser. Par ailleurs, les spécifications du faisceau laser généré par l'émetteur sont résumées dans le *Tableau 45*. Ainsi, dans nos conditions expérimentales, l'EMP de l'œil vaut 1000 J.m^{-2} pour une seule impulsion. Pour un train d'impulsion, la valeur de l'EMP dépend également du nombre d'impulsions N reçu pendant 10 s. Elle définit comme suit :

$$EMP_{train} = EMP \times (N)^{-1/4} \qquad \textit{(Eq. 80)}$$

Ainsi, la valeur de L'EMP à prendre en compte pour le calcul de la DNRO est l'EMP correspondant à un train d'impulsion qui vaut 240 J.m^{-2}.

Longueur d'onde d'émission	2,05 µm
Energie par impulsion	18 mJ au maximum
Durée de l'impulsion	10 ns
Cadence	30 Hz
Waist ω_0	1 mm

Tableau 45 : Caractéristiques d'émission de la source optique

Pour cette première phase d'essais LIDAR atmosphérique en extérieur, le faisceau laser est émis vers l'extérieur du laboratoire, avec un angle en hauteur de 45° depuis le sous-sol du bâtiment. Cette première phase consiste à récolter le signal rétrodiffusé par l'atmosphère afin de permettre la validation du modèle numérique présenté dans la section C.3. La DNRO calculée pour ces paramètres d'émission pour lesquels on considère la divergence naturelle du faisceau est d'environ 7 m. Cette distance de sécurité est inférieure à la distance parcourue par le faisceau à l'intérieur du sas du laboratoire.
Ainsi, le rayonnement infrarouge utilisé divergeant naturellement est à sécurité oculaire à l'extérieur du laboratoire. Par ailleurs, l'angle de visée de 45° permet de nous assurer qu'aucun obstacle ne se dressera sur le trajet optique du faisceau.

Annexe E. Amplification d'un QCL émettant entre 8 et 12 µm

4046 OPTICS LETTERS / Vol. 38, No. 20 / October 15, 2013

Tunable optical parametric amplification of a single-frequency quantum cascade laser around 8 µm in $ZnGeP_2$

Quentin Clément, Jean-Michel Melkonian,* Jessica Barrientos-Barria, Jean-Baptiste Dherbecourt, Myriam Raybaut, and Antoine Godard

ONERA, the French Aerospace Laboratory, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

**Corresponding author: jean-michel.melkonian@onera.fr*

Received June 6, 2013; revised September 10, 2013; accepted September 11, 2013; posted September 12, 2013 (Doc. ID 191899); published October 7, 2013

We demonstrate optical parametric amplification in $ZnGeP_2$ (ZGP) of the radiation emitted by a single-frequency continuous-wave quantum cascade laser (QCL) in the range 7.8–8.4 µm. The ZGP amplifier is pumped by a single-frequency parametric source at 2210 nm. For a pump energy of 6 mJ, we report an average gain of 50 over this range and a maximum gain of 111 for 7.5 mJ. An exponential trend is observed when changing the pump energy, with very good agreement with theory. These features are of valuable interest for increasing the standoff detection range of hazardous chemicals and explosives by QCL-based backscattering spectroscopy systems. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4970) Parametric oscillators and amplifiers; (140.5965) Semiconductor lasers, quantum cascade; (140.3070) Infrared and far-infrared lasers.

http://dx.doi.org/10.1364/OL.38.004046

Long-range detection of chemical species by optical spectrometry requires infrared coherent sources emitting nanosecond pulses with high energy, narrow linewidth, and near diffraction limited beams. A spectral range of interest is the 8–12 µm transparency window of the atmosphere in the long-wavelength infrared (LWIR). Indeed, in this so-called "molecular fingerprint" region, many important hazardous chemicals and explosives display non-overlapping rovibrational lines [1], while laser attenuation is low enough to allow for propagation over several kilometers. Over the past 10 years, quantum cascade lasers (QCLs) have attracted a lot of attention for both local and short-range (<100 m) remote detection of chemical species [2,3]. Indeed, distributed-feedback QCLs (DFB-QCLs) and external-cavity QCLs (EC-QCLs) can provide a very narrow spectrum in the LWIR, which is mandatory for spectroscopic detection of molecules in the atmosphere where ambient air is often heavily loaded with interfering species [4]. However, the limited achievable peak power of QCLs (at most a few watts) precludes their direct use for long-range detection (km range), in particular when range-resolved (i.e., short laser pulses) measurements are needed.

An attractive solution to increase the energy of such a low-peak-power infrared source is to carry out optical parametric amplification (OPA) in nonlinear crystals.

Concerning the parametric amplification of QCLs, Bloom *et al.* recently reported on the amplification of a DFB-QCL emitting at 4.5 µm in an orientation-patterned GaAs OPA pumped at 2.09 µm by a multimode Ho:YAG laser, with a measured parametric gain as high as $2 \cdot 10^5$ [5]. However, the limited aperture achievable with this crystal does not allow handling of pump energies beyond a few hundred microjoules. Additionally, tunability and single-frequency operation were not addressed in this study. Nonetheless, energy scaling to 8 mJ of a low-peak-power source—an optical parametric oscillator (OPO)—was reached at 8 µm in a $ZnGeP_2$ (ZGP)-based OPA, with a typical gain of 100 [6].

To the best of our knowledge, amplification of QCL radiation has never been reported for wavelengths beyond 5 µm. Moreover, amplification of a QCL beam with a single-frequency pump, leading to a narrow-linewidth, high-peak-power output, has never been demonstrated so far. Here, we report on the amplification of the output of a tunable single-frequency continuous-wave (cw) QCL in a ZGP-based OPA.

Our experimental setup is schematically shown in Fig. 1. The cw QCL (EC-QCL from Daylight Solutions, USA) emits a tunable radiation in the 7.8–8.4 µm range with an output power of around 100 mW and a spectral linewidth narrower than 30 MHz. This particular QCL model can be switched to pulsed mode, but in this case thermal effects lead to a much broader linewidth [7]. The beam is slightly astigmatic but is almost Gaussian at a distance of 53 cm with a $1/e^2$ beam radius (waist) of 1.3 mm. Our parametric amplifier is based on a single 15-mm-long ZGP crystal (Eksma Optics, Lithuania), cut at $\theta = 49°$ for type I phase matching at the considered

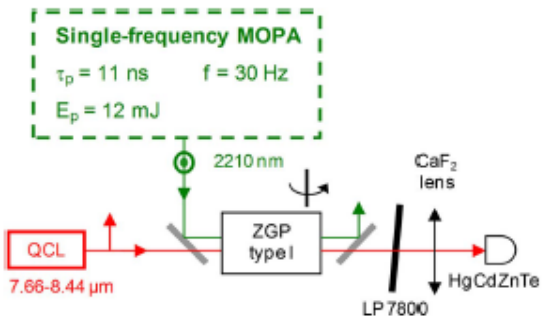


Fig. 1. Experimental setup of the parametric amplification experiment. The single-frequency pump and the QCL beams are overlapped in the type I ZGP crystal and the amplified beam in the range 7.66–8.44 µm is then collected by a detector after optical filtering.

0146-9592/13/204046-04$15.00/0 © 2013 Optical Society of America

wavelengths. We choose ZGP to benefit from its high nonlinear coefficient ($d_{14} = 75$ pm/V), high damage threshold (>1 J/cm^2), broad transparency range (2–10 μm), and large available aperture [8]. The crystal is antireflection coated, and we checked that the coatings could withstand a fluence of at least 1 J/cm^2, the maximum value reached in our experiments. The phase matching properties of this crystal have been checked by preliminary OPO experiments with a resulting idler tunability covering the full 4.6–9.2 μm spectral range with a very good agreement with calculated phase matching curves [9].

The pump source used in these experiments has been described previously [10]. It is a 1064 nm pumped parametric source based on a master-oscillator/power-amplifer (MOPA) scheme that delivers a linearly polarized idler beam at 2210 nm with a pulse duration of 11 ns, a repetition rate of 30 Hz, and a Fourier-transform spectral linewidth (~100 MHz). The maximum available pulse energy at 2210 nm for our experiments is 12 mJ.

The pump is slightly elliptic. Its waist at the location of the ZGP crystal is 1.5 × 0.9 mm (horizontal × vertical) enabling a reasonable match to the QCL beam size, so that additional beam shaping is not necessary. The spatial profiles of the pump and of the QCL beams are displayed in Fig. 2. The QCL emission being vertically polarized, we rotate the beam by 90° with two gold mirrors in order to make it extraordinary polarized as required by type I phase matching in ZGP.

After the amplifier, the pump beam is filtered out by a dichroic mirror (highly reflective at 2210 nm and highly transmittive around 8 μm). A long-pass filter with a cutoff wavelength of 7.8 μm is added in order to remove the leaking pump as well as the generated signal around 3 μm.

All the flux incoming from the amplified QCL beam is collected by a CaF_2 lens and focused onto an uncooled HgCdZnTe detector linked to an oscilloscope. The gain is given by the ratio between the peak voltage of the amplified QCL nanosecond pulse and the cw baseline. Measured voltages are averaged, and each measurement is repeated several times to reduce the measurement uncertainty due to the pump energy pulse-to-pulse fluctuations (which amount to ±5% peak to peak).

The measurements are corrected from the spectral transmissions of the collection and filtering optics, as measured with a Fourier-transform infrared spectrometer (FTIR). In particular, we take into account the overall transmission of the ZGP crystal, which was carefully measured with the FTIR and at several discrete wavelengths using OPO radiation and compared to published data. The transmission of the ZGP crystal is 63% for the pump at 2210 nm, half of this loss being due to bulk absorption. For the idler in the 7.8–8.4 μm range, the transmission is limited to 81% because of imperfect antireflection coatings, while multiphonon absorption only accounts for 5% of loss. To enable comparison with theory, one has thus to consider the effective pump energy in the crystal, which is lower than the available pump energy.

First, we study the evolution of the gain, at a fixed QCL wavelength of 8 μm, when increasing the pump energy from 0.5 to 12 mJ, which corresponds to an effective energy spanning from 0.3 to 7.5 mJ. As shown in Fig. 3, we notice an exponential increase of the gain when increasing the pump energy. Then, we compare our results with theoretical calculations carried out under the undepleted pump approximation. In our case this approximation is valid up to a theoretical gain of $6 \cdot 10^4$, where pump depletion reaches 5%.

Our calculation follows the approach derived by Barnes *et al.* [11], which we have extended to the case of elliptical beams. Spatial and temporal profiles are assumed to be Gaussian in each direction, an assumption very close to our experimental data. We calculate the spatial overlap of the two beams by integrating along the vertical and the horizontal directions as shown in Eq. (1):

$$G = \iint \frac{2}{\pi w_{\mathrm{QCL}}^2} \exp\left(-\frac{2x^2 + 2y^2}{w_{\mathrm{QCL}}^2}\right) \cosh^2(\Gamma L)\mathrm{d}x\mathrm{d}y, \quad (1)$$

where

$$\Gamma = \left[\frac{\mu_0 8\sqrt{\ln 2}\omega_i \omega_s d^2 E_p}{c n_p n_s n_i \pi^{\frac{3}{2}} \tau_p w_h w_v} \exp\left(-\frac{4 \ln 2 t^2}{\tau_p^2} - \frac{2x^2}{w_h^2} - \frac{2y^2}{w_v^2}\right)\right]^{\frac{1}{2}}. \quad (2)$$

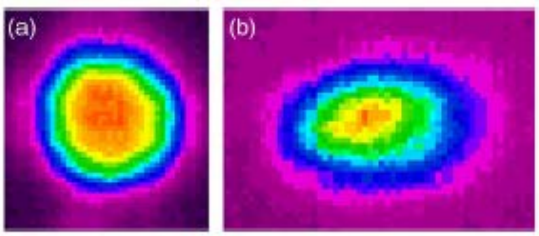


Fig. 2. Spatial profiles of the QCL and the pump beams at the location of the ZGP crystal. (a) QCL beam, $M^2 < 1.2$, Gaussian profile with 1.3 mm waist. (b) Pump beam, $M^2 < 1.5$, elliptic profile with a waist of 1.5 × 0.9 mm (horizontal × vertical).

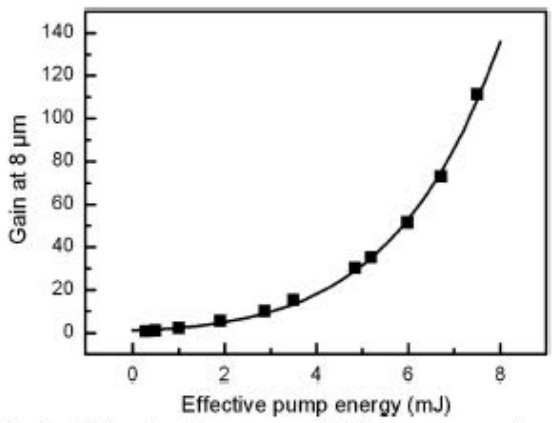


Fig. 3. OPA gain at 8 μm versus effective pump energy for a 15-mm-long ZGP crystal (squares: experimental measurements; line: theoretical calculations without adjustable parameter).

G is the intensity gain experienced by the QCL beam and Γ is the usual parametric gain coefficient derived from the nonlinear wave equations. Data relative to the pump are the energy E_p, the pulse duration τ_p, the beam waists w_h for the horizontal direction and w_v for the vertical direction. w_{QCL} is the QCL waist, L the length of the crystal, and d the nonlinear effective coefficient of ZGP, which is almost constant in the range 7.8–8.4 μm. We have taken $d = 75$ pm/V in our model [8]. This value is coincidentally identical to the value of d_{14} given in the literature for second harmonic generation at 9.6 μm, because the effect of the phase-matching angle is balanced by Miller's wavelength scaling rule when pumping at 2 μm [12]. Then, n stands for the optical index and ω for the angular frequency, where p, s, i, are the indices for the pump, signal, and idler, respectively. Finally, c is the speed of light, and μ_0 is the magnetic permeability in vacuum.

We see in Fig. 3 that the calculated gain G is in good agreement with the measurements without adjusting any parameter. For the highest effective pump energy of 7.5 mJ, we report a gain of 111 whereas we expect 108 from calculations. Starting from 1.1 nJ in the initial QCL beam (peak power of 100 mW), this leads to 122 nJ pulses after amplification (peak power of 11 W). With antireflection coatings transmitting 95%, the effective pump energy would be 11.4 mJ and we predict a theoretical gain of 544.

The temporal profile of the amplified QCL radiation is shown in Fig. 4. As expected it is identical to that of the pump.

Then, the OPA gain is measured by tuning the QCL wavelength from 7.8 to 8.4 μm. For this experiment we work with an effective pump energy of 6 mJ, which corresponds to a fluence of 0.45 J/cm^2 on the input coating, in order to have a safe margin below the damage threshold. The results are shown in Fig. 5. We report an average gain of 50 in this whole range, with an almost constant gain between 7.9 and 8.2 μm.

To complete our theoretical study, we have calculated the global gain of two identical ZGP crystals in a walk-off compensation configuration [13], with imperfect coatings as detailed above. As a signal wave is generated and the idler wave is amplified in the first crystal, the initial conditions for the calculation of the gain in the second ZGP crystal are different. Note that these initial conditions are also altered by the losses of the coatings between the two crystals. We derive a slightly more complicated formula for the gain of this two-crystal amplifier, which increases from 53 to 6170 at 8 μm, for an effective pump energy of 6 mJ. Cascading ZGP crystals is thus a straightforward way to efficiently enhance the gain.

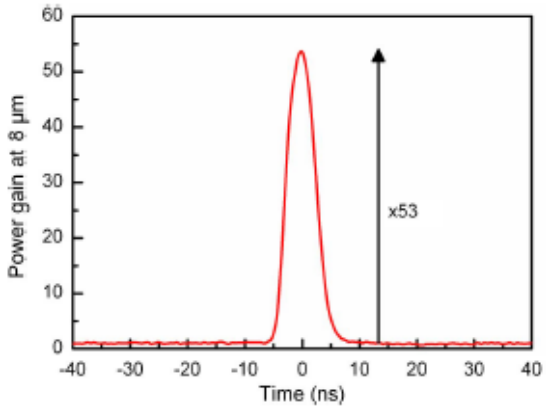


Fig. 4. Temporal profile of the amplified QCL radiation. The unamplified QCL power has been normalized to 1 so that the vertical axis is a direct measure of the gain.

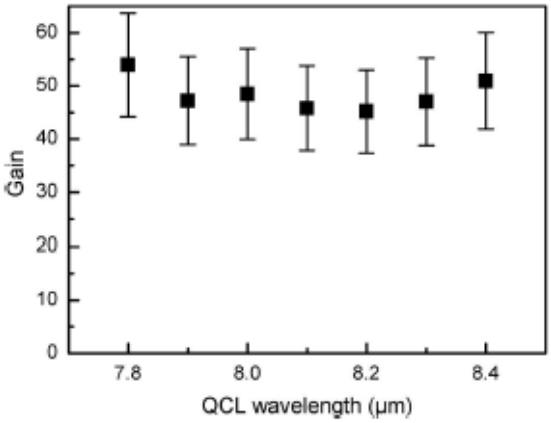


Fig. 5. Gain of the optical parametric amplifier versus QCL wavelength. The type I ZGP crystal was 15-mm-long, and the effective pump energy was 6 mJ.

In conclusion, we have demonstrated tunable OPA of a single-frequency EC-QCL in a ZGP-based OPA. An exponential gain has been measured when increasing the pump energy, with a good agreement with theoretical calculations. For 6 mJ of effective pump energy, an average gain of 50 has been achieved with a single crystal in the range 7.8–8.4 μm, only limited by the EC-QCL tunability. For an effective pump energy of 7.5 mJ, we reported a maximum gain of 111 at 8 μm. With improved coatings displaying a reasonable transmission of 95% at the pump wavelength and a slightly longer crystal of 20 mm, we anticipate a gain as high as 10^4 with a single crystal. Pulse energies higher than 10 μJ, which are not reachable by direct emission from any LWIR semiconductor-based laser source, should thus be expected from this approach. Further energy scaling up to the millijoule range can be achieved through OPA with higher energy lasers by cascading several crystals with larger apertures. This concept has already been validated with an OPO as the master oscillator and could be applied to QCLs as well [6,10]. Furthermore, since we use a single-frequency pump, the spectral properties of the QCL emission are preserved, whatever the value of the gain. Hence, OPA in ZGP is a relevant method for increasing the peak power of LWIR optical sources, paving the way to enhanced detection ranges of chemical species by absorption spectrometry.

We acknowledge Direction Générale de l'Armement (DGA) for funding.

References

1. M. E. Webber, M. Pushkarsky, and C. K. N. Patel, J. Appl. Phys. **97**, 113101 (2005).

2. E. Holthoff, J. Bender, P. Pellegrino, and A. Fisher, Sensors **10**, 1986 (2010).
3. F. Fuchs, S. Hugger, M. Kinzer, R. Aidam, W. Bronner, R. Lösch, Q. Yang, K. Defreif, and F. Schnürer, Opt. Eng. **49**, 111127 (2010).
4. C. K. N. Patel, Eur. J. Phys. Special Topics **153**, 1 (2008).
5. G. Bloom, A. Grisard, E. Lallier, C. Larat, M. Carras, and X. Marcadet, Opt. Lett. **35**, 505 (2010).
6. M. W. Haakestad, G. Arisholm, E. Lippert, S. Nicolas, G. Rustad, and K. Stenersen, Opt. Express **16**, 14263 (2008).
7. J.-M. Melkonian, M. Raybaut, A. Godard, J. Petit, and M. Lefebvre, Proc. SPIE **8546**, 854607 (2012).
8. D. N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey* (Springer, 2005).
9. S. Das, G. C. Bhar, S. Gangopadhyay, and C. Ghosh, Appl. Opt. **42**, 4335 (2003).
10. M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A. K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, and P. Kaspersen, Opt. Lett. **34**, 2069 (2009).
11. N. P. Barnes, K. E. Murray, M. G. Jani, P. G. Schunemann, and T. M. Pollak, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 232 (1998).
12. W. J. Alford and A. V. Smith, J. Opt. Soc. Am. B **18**, 524 (2001).
13. D. J. Armstrong, W. J. Alford, T. D. Raymond, A. V. Smith, and M. S. Bowers, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 460 (1997).

Annexe F. NesCOPO en pompage microseconde

July 1, 2013 / Vol. 38, No. 13 / OPTICS LETTERS 2165

Microsecond fiber laser pumped, single-frequency optical parametric oscillator for trace gas detection

Jessica Barrientos Barria, Sophie Roux, Jean-Baptiste Dherbecourt,* Myriam Raybaut, Jean-Michel Melkonian, Antoine Godard, and Michel Lefebvre

ONERA, the French Aerospace Lab, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France
**Corresponding author: jean-baptiste.dherbecourt@onera.fr*

Received April 5, 2013; accepted April 20, 2013;
posted May 21, 2013 (Doc. ID 188274); published June 18, 2013

We report on the first microsecond doubly resonant optical parametric oscillator (OPO). It is based on a nested cavity OPO architecture allowing single longitudinal mode operation and low oscillation threshold (few microjoule). The combination with a master oscillator-power amplifier fiber pump laser provides a versatile optical source widely tunable in the 3.3–3.5 μm range with an adjustable pulse repetition rate (from 40 to 100 kHz), high duty cycle ($\cong 10^{-2}$) and mean power (up to 25 mW in the idler beam). The potential for trace gas sensing applications is demonstrated through photoacoustic detection of atmospheric methane. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4970) Parametric oscillators and amplifiers; (300.6340) Spectroscopy, infrared; (140.3510) Lasers, fiber.
http://dx.doi.org/10.1364/OL.38.002165

Mid-IR laser sources for gas sensing applications, such as environmental monitoring have been continually progressing in order to provide large tunability ranges, narrow linewidth, and significant output power in the molecular fingerprint region. The appropriate combination of the most recent laser technologies with efficient detection schemes enables one to reach high sensitivity levels (down to sub-ppb mixing ratio), selectivity, and multicomponent analysis capabilities [1,2]. However, in the 3–4 μm spectral region where several pollutants display strong absorption lines, the availability of laser sources fulfilling all the requirements in terms of tuning range, single longitudinal mode (SLM) operation, high average power, and compactness remains a key issue. Indeed, solid state lasers emitting above 3 μm are scarce [3], and despite recent and promising progress in semiconductor technologies—including diode lasers, quantum cascade lasers, and interband cascade lasers [4]—it is still challenging to deliver a broadly tunable single-mode emission in the 3–4 μm region with high output power from a compact device operating without active cooling. On the other hand, parametric sources operate at room temperature and typically yield broad tunability with high power [5], which gives access to multispecies absorption spectrometry [6], but the reduction of their footprint is still challenging. The research for compact and deployable optical parametric oscillators (OPO) is thus attracting a lot of interest [7]. In this context, we previously introduced an OPO scheme consisting in a compact nested cavity doubly resonant OPO (NesCOPO), which provides SLM emission with a low oscillation threshold of only a few microjoules in the nanosecond regime [8]. Here, we report the first implementation of a NesCOPO pumped in the quasi-continuous wave (q-cw) regime by a microsecond fiber laser. This configuration is expected to provide several promising properties over conventional cw or nanosecond OPOs. First, the use of a master oscillator-power amplifier (MOPA) fiber laser pump can give access to advanced properties such as pulse shaping [9], repetition rate control, and wavelength tunability [10], which can be directly transferred to the OPO output. Furthermore, the high mean power q-cw regime and adaptive high repetition rate are interesting for trace gas sensing techniques like quartz enhanced photoacoustic (PA) spectroscopy [11]. Besides, microsecond OPO could provide Fourier-transform limited pulses with a narrower linewidth than nanosecond OPO, typically in the MHz range. Q-cw OPO can thus be considered as an interesting compromise between cw OPO and short-pulsed nanosecond OPO. In addition, to our best knowledge, very few reports on OPOs pumped by microsecond pulses can be found in the literature [10,12], and to date only singly resonant OPOs emitting multiple longitudinal modes have been proposed in this regime.

In this Letter, we describe, to our knowledge, the first SLM OPO pumped by microsecond pulses. The experimental setup is described in Fig. 1. The 1064 nm commercial pump source is based on a cw single frequency laser diode that seeds an ytterbium-doped fiber amplifier (Keopsys). With acousto-optic modulation of the laser diode, 1 μs pulses are emitted with an adjustable pulse repetition frequency (PRF) ranging from 40 to 100 kHz. The maximum mean pump power available at the entrance of the OPO cavity is 400 mW. The energy of a

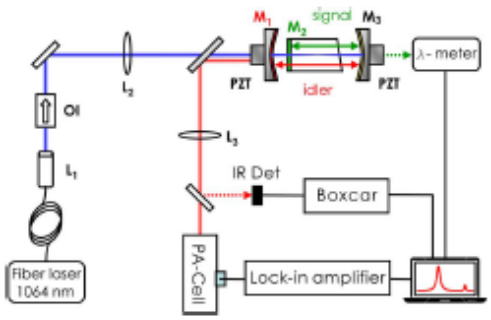


Fig. 1. Experimental setup describing the optical source and the photoacoustic (PA) spectroscopy setup. L1 and L3, collimating lenses; L2, pump focusing lens; OI, optical isolator; IR Det, infrared detector.

0146-9592/13/132165-03$15.00/0 © 2013 Optical Society of America

single pump pulse thus varies from 10 to 4 μJ respect with the PRF.

The collimated pump is focused to a beam waist radius of 60 μm inside the NesCOPO cavity. The nonlinear crystal is a 18 mm long type 0 (all waves are linearly extraordinary polarized) MgO-doped periodically poled lithium niobate (PPLN). Two different grating periods enable an idler wavelength coverage from 3.3 to 3.5 μm. The crystal end-face is wedged with a 0.35° angle to optimize the relative phase between the interacting waves in the backward direction [8]. The cavity is described in Fig. 1. It is composed of two external mirrors: the idler coupler M1 (with a reflectivity of 80% at 3.5 μm, and a radius of curvature of 20 mm) and the rear mirror M3 (gold coated with a 20 mm radius of curvature), which reflects the three waves. The signal mirror M2 is directly deposited on the PPLN entrance facet and displays high reflectivity (>99%) in the 1.47–1.60 μm range. The crystal end face has a broadband antireflection coating for the three waves. The signal cavity is thus composed of mirrors M2 and M3, while the idler cavity is composed of mirrors M1 and M3, which are both mounted on piezoelectric transducers (PZT) for fine cavity length control. By adjusting the relative differential length of these two nested cavities, a single pair of idler and signal resonating frequencies can be selected, which thus ensures SLM operation of the device, provided that the pump laser is single frequency [8]. The idler is then extracted for PA spectroscopy experiments, and the signal is retrieved for spectral characterizations using a wavemeter (λ-meter) or an optical spectrum analyzer (OSA).

Figure 2(a) shows the shape of the microsecond pulses generated by the fiber laser for different repetition rates between 50 and 100 kHz. The pulse's full width at half-maximum is constantly equal to 1 μs and the mean power is also constantly equal to 400 mW; the peak power thus varies from 8 to 4 W. Figure 2(b) shows the shape of the corresponding signal pulses emitted by the NesCOPO. Depending on the pump pulse rising edge and peak power, the parametric oscillation takes place a few hundreds of nanoseconds after the beginning of the laser pulse, and then follows the temporal shape of the pump. The buildup time is increased when the pump peak power is slightly reduced. As illustrated in Fig. 3, the experimental buildup time, which is chosen to be measured from a time reference located at 5% of the maximum of the laser pump pulse, varies from 0.8 μs at a peak power

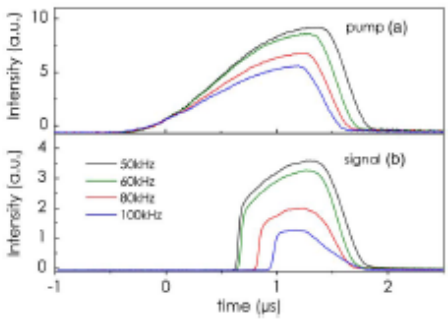


Fig. 2. (a) Pump and (b) signal pulse profiles for different PRF. The curves are averaged over 20 consecutive pulses.

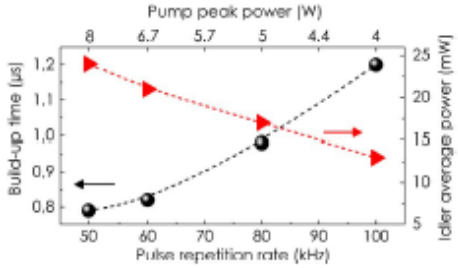


Fig. 3. Idler (3.5 μm) average output power (red triangles) and OPO buildup time (black dots) versus repetition rate (and pump peak power) at maximum average pump power (400 mW). Dashed lines are guides for the eyes.

of 8 W to 1.2 μs at a peak power of 4 W. As shown in Fig. 3, the reduction of the pump peak power with the PRF also results in the decrease of the idler maximum average power from 25 to 12 mW (at $\lambda_{\text{idler}} = 3.5$ μm) while the oscillation threshold is increased from approximately 150–250 mW. Taking into account the repetition rate, the idler output energy varies from 0.12 μJ (at 100 kHz) to 0.50 μJ (at 50 kHz), and the corresponding peak power from approximately 260–600 mW, respectively. The linear shape of these power characteristics indicates that the NesCOPO is operating in unsaturated regime.

Idler tuning is basically carried out over the accessible crystal range from 3.3 to 3.5 μm by adjusting the temperature of the PPLN crystal. Thanks to the NesCOPO architecture, one obtains SLM operation over this whole range of operation. Furthermore, at a given temperature, fine frequency tuning is obtained by PZT adjustment of the nested cavities. For illustration, Fig. 4 displays an experimental measurement of the parametric gain bandwidth (PGB) of the OPO for an idler wavelength around 3.5 μm (PPLN grating period = 30 μm, and temperature of 80°C) and at a pumping level two times above threshold. The PGB is retrieved by fast sweeping of the PZT in order to scan all the cavity modes during the acquisition of the signal spectrum using the OSA. At maximum pump power, the PGB is 150 GHz around 3.5 μm (Fig. 3). Consequently, several cm^{-1} can be scanned by PZT sweeping at set crystal temperature. For a given operating point of the PZT, the OPO displays single mode

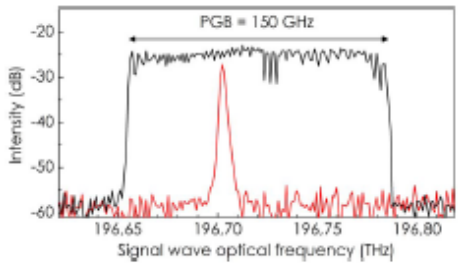


Fig. 4. Parametric gain bandwidth (PGB) at a set crystal temperature of 80°C, around $\lambda_{\text{signal}} = 1.53$ μm and $\lambda_{\text{idler}} = 3.5$ μm (black curve). The red curve is the NesCOPO single frequency signal spectral output for a given position of mirrors M_1 and M_3. The measurement linewidth is limited by the OSA resolution (2 GHz). The signal cavity free spectral range is 4 GHz.

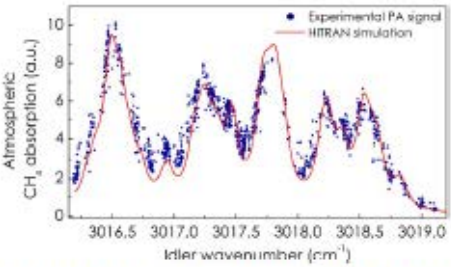


Fig. 5. Experimental PA spectrum of atmospheric methane recorded by excitation of the 9th harmonic of the PA cell resonance. The absorption calculation based on HITRAN database highlights the levels of amplitude and background noises.

operation with a side-mode suppression ratio better than 30 dB. These spectral characteristics are thus suitable for high-resolution spectroscopy experiments.

In order to demonstrate its potential for trace gas detection, the q-cw NesCOPO was implemented in a PA spectroscopy experiment dedicated to the detection of atmospheric methane. The detection setup is described in Fig. 1. The idler is collimated to a 4 mm diameter beam and injected in a single-pass, 4.3 cm long PA cell. A small part of the idler radiation, extracted before the PA cell, is used to produce a power reference signal. The signal emitted by the NesCOPO is recorded by a wavemeter in order to retrieve the idler wavelength. The PA signal is filtered and averaged over 100 ms by a lock-in amplifier. The first resonant acoustic harmonic of the bulk PA cell is at 4 kHz in air. Consequently, higher acoustic modes have to be excited in order to match with the high PRF available with this source. Hence, the CH_4 PA spectrum presented in Fig. 5 was recorded by exciting the ninth harmonic of the PA cell at 36 kHz, which is nonoptimal since the acoustic amplification provided by the PA cell is reduced by a factor 25 from an ideal situation where the first harmonic would be excited with the same optical power. Consequently, significantly higher signal-to-noise ratios (SNRs) can be expected from an optimized combination of the q-cw NesCOPO with high frequency resonant PA detection systems (quartz tuning forks for instance). Be that as it may, atmospheric methane could be detected around 3017 cm^{-1} where the CH_4 molecule displays strong absorption lines. The spectrum is recorded by use of the Vernier frequency sampling method, specifically elaborated for the NesCOPO architecture [13]. As illustrated by the calculation using the HITRAN database in Fig. 5, this tuning method enables the coverage of multiple CH_4 absorption lines with a good contrast. The SNR is approximately equal to 10. Considering that ambient CH_4 concentration is in the range of a few parts in 10^6, this result is highly promising in terms of achievable sensitivity with this optical source coupled and an optimized PA sensor.

In conclusion, we have reported on the first operation of a single frequency OPO emitting in the mid-IR, pumped by a MOPA fiber laser emitting 1 μs pulses. Depending on the pump peak power, the OPO generates 0.84–0.48 μs pulses at 3.5 μm for pulse repetition frequencies from 50 to 100 kHz, respectively (duty cycle > 4%). At a 50 kHz PRF the maximum idler average power is 25 mW. This source was used for atmospheric methane detection by PA spectrometry.

References

1. M. W. Sigrist, R. Bartlome, D. Marinov, J. M. Rey, D. E. Vogler, and H. Wächter, Appl. Phys. B **90**, 289 (2008).
2. M. Ebrahim-Zadeh and I. T. Sorokina, eds., *Mid-Infrared Coherent Sources and Applications*, NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics (Springer, 2008).
3. A. Godard, Comptes Rendus Physique **8**, 1100 (2007).
4. C. S. Kim, M. Kim, J. Abell, W. W. Bewley, C. D. Merritt, C. L. Canedy, I. Vurgaftman, and J. R. Meyer, Appl. Phys. Lett. **101**, 061104 (2012).
5. E. Andrieux, T. Zanon, M. Cadoret, A. Rihan, and J.-J. Zondy, Opt. Lett. **36**, 1212 (2011).
6. D. D. Arslanov, K. Swinkels, S. M. Cristescu, and F. J. M. Harren, Opt. Express **19**, 24078 (2011).
7. A. J. Henderson, P. M. Roper, L. A. Borschowa, and R. D. Mead, Opt. Lett. **25**, 1264 (2000).
8. B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre, Opt. Lett. **36**, 678 (2011).
9. S. Yonghang, S. U. Alam, C. Kang Kang, L. Dejiao, C. Shuangshuang, W. Bo, J. Peipei, A. Malinowski, and D. J. Richardson, IEEE Sel. Top. Quantum Electron. **15**, 385 (2009).
10. M. E. Klein, P. Adel, M. Auerbach, C. Fallnich, P. Gross, and K. J. Boller, Opt. Lett. **28**, 2222 (2003).
11. A. A. Kosterev, F. K. Tittel, D. V. Serebryakov, A. L. Malinovsky, and I. V. Morozov, Rev. Sci. Instrum. **76**, 043105 (2005).
12. H. Plaessmann, A. Drobshoff, and W. R. Bosenberg, Appl. Opt. **35**, 5964 (1996).
13. B. Hardy, M. Raybaut, J. B. Dherbecourt, J. M. Melkonian, A. Godard, A. K. Mohamed, and M. Lefebvre, Appl. Phys. B **107**, 643 (2012).

Annexe G. Réalisation des mesures lidar IP-DiAL à 3,3 µm sur le CH_4 et H_2O.

Appl. Phys. B
DOI 10.1007/s00340-014-5862-6

Applied Physics B
Lasers and Optics

Simultaneous remote monitoring of atmospheric methane and water vapor using an integrated path DIAL instrument based on a widely tunable optical parametric source

Jessica Barrientos Barria · Alexandre Dobroc · Hélène Coudert-Alteirac · Myriam Raybaut · Nicolas Cézard · Jean-Baptiste Dherbecourt · Thomas Schmid · Basile Faure · Grégoire Souhaité · Jacques Pelon · Jean-Michel Melkonian · Antoine Godard · Michel Lefebvre

Received: 23 October 2013 / Accepted: 18 May 2014
© Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2014

Abstract We report on the remote sensing capability of an integrated path differential absorption lidar (IPDIAL) instrument, for multi-species gas detection and monitoring in the 3.3–3.7 µm range. This instrument is based on an optical parametric source composed of a master oscillator-power amplifier scheme—whose core building block is a nested cavity optical parametric oscillator—emitting up to 10 µJ at 3.3 µm. Optical pumping is realized with an innovative single-frequency, 2-kHz repetition rate, nanosecond microchip laser, amplified up to 200 µJ per pulse in a single-crystal fiber amplifier. Simultaneous monitoring of mean atmospheric water vapor and methane concentrations was performed over several days by use of a topographic target, and water vapor concentration measurements show good agreement compared with an in situ hygrometer measurement. Performances of the IPDIAL instrument are assessed in terms of concentration measurement uncertainties and maximum remote achievable range.

J. Barrientos Barria (✉) · A. Dobroc · H. Coudert-Alteirac · M. Raybaut · N. Cézard · J.-B. Dherbecourt · T. Schmid · J.-M. Melkonian · A. Godard · M. Lefebvre
ONERA/DMPH the French Aerospace Lab, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France
e-mail: jessica.barrientos_barria@onera.fr

M. Raybaut
e-mail: myriam.raybaut@onera.fr

B. Faure · G. Souhaité
TeemPhotonics, 61 Chemin du vieux chêne, 38246 Meylan, France

J. Pelon
LATMOS, Université Pierre et Marie Curie, 4 Place Jussieu, Paris, France

1 Introduction

Remote sensing of low concentration chemical species in the atmosphere, like green-house gases (H_2O, CO_2, CH_4 …), or air pollutants, such as volatile organic compounds or coke oven gases, is a growing concern for a variety of applications related to security, environmental monitoring, leaks or contamination control in industrial plants. On-field applications demand operational systems with drastic requirements including multi-species capability, high sensitivity and selectivity in order to reduce detections errors in the case of complex gas mixture analysis. Standoff detection ability is also a key feature frequently required either for safety reasons (in the case of hazardous components detections) or for spatial resolution purposes. For long range remote sensing scenarios, direct detection and pulsed integrated path differential absorption lidar (IP-DIAL) technique have proved to be sensitive methods and are being actively developed with different approaches in order to provide reliable mean concentration measurements [1]. With this technique, one highly sought property is the retrieval of spectrally resolved absorption signatures for multiple species detection and interferents differentiation [2]. For these purposes, one of the most challenging issues is to provide an adequate laser transmitter, able to emit single-frequency and high peak power pulses within a broad wavelength tunability range in the mid-IR, especially in the 2–4 µm area, where most hydrocarbon species display strong absorption lines.

With regard to these general characteristics, mid-IR lasers provide efficient ways of detecting chemical species in the atmosphere [1, 3–5, 8]. However, above 2 µm, high-energy pulsed lasers are scarce, and their tunability generally limits the lidar systems to a single species. On the other hand, devices based on tunable parametric conversion

Published online: 07 June 2014

enable to extend the spectral coverage of laser sources and thus offer the opportunity to perform multi-wavelengths and multi-species measurements with a single instrument [6–9]. Besides wavelength conversion, parametric amplification is an efficient way to reach high-energy pulses; up to several tens of mJ [9–12]. DIAL systems employing such high-energy pulses are valuable for applications requiring high spatial and temporal resolution such as airborne or spaceborne lidar platforms. However, these high-energy transmitters often result in bulky instruments. With more moderate output energy transmitters, IPDIAL instruments could offer a good compromise between overall footprint and range of operation as they would enable the remote monitoring of fairly distant targets such as in an industrial site [8]. Consequently, the research for compact transmitters adapted to terrestrial applications requiring intermediate path lengths (from hundreds of meters to a few kilometers) is attracting a lot of interest [3, 6, 8, 13]. In such a context, we recently performed short range (up to 30 m) IPDIAL measurements on CO_2 with a compact low-energy (100 nJ) nested cavity optical parametric oscillator (NesCOPO) transmitter emitting near 4.2 μm [7]. Though it was still limited to a single species (CO_2), this experiment demonstrated the potential for multi-wavelength probing with a single optical source [6].

In this paper, we report on a portable IPDIAL system based on a compact parametric source well adapted for multiple species detection in the mid-IR, with a significantly increased output pulse energy (up to 10 μJ) from our previous work, paving the way to higher detection range (few hundreds of meters). The transmitter is based on a NesCOPO architecture providing single-frequency and high-purity radiation tunable over several hundreds of nanometers without any additional injection-seeding device [7]. The generated signal is in the 1.5–1.6 μm range and the idler in the 3.3–3.7 μm range. This spectral area is of high interest since most industrial pollutants display absorption lines, while their concentration measurement can be easily biased by atmospheric water vapor. Multi-species detection with a unique instrument is thus a prime asset regarding atmospheric interferent differentiation. For demonstration purposes, we simultaneously monitored atmospheric methane and water vapor over several days and could observe different concentration evolutions for these two greenhouse gases. Finally we experimentally investigate ways of extending the maximum detection range up to several hundreds of meters with this transmitter.

2 Compact IPDIAL instrument architecture

The experimental setup for the transmitter is described in Fig. 1. The pump source is a single-frequency laser at

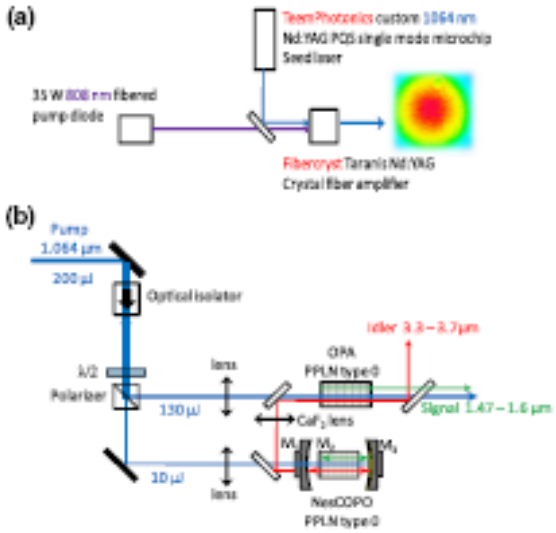


Fig. 1 (Color online) Transmitter architecture—Pump (a) and NesCOPO (b) master oscillator-power amplifier setups

1,064 nm delivering 8 ns pulses at a repetition rate of 2 kHz with an energy per pulse of 200 μJ and an excellent beam quality ($M^2 < 1.1$). The laser architecture is based on a co-propagative master oscillator-fiber amplifier architecture (Fig. 1a). The master oscillator is a compact passively Q-switched (PQS) Nd:Cr:YAG microlaser, specially tailored by Teemphotonics to produce single-frequency pulses at 1,064 nm with an energy per pulse of 15 μJ. Similar microlasers were previously used to directly pump NesCOPOs [7]. This laser is then used to seed a high-gain Nd-doped YAG crystal fiber (Taranis amplifier from Fibercryst). It is pumped by a 35 W fibered diode module emitting at 808 nm. Such single-crystal fiber amplifier has already been tested successfully to amplify subnanosecond PQS microlasers [14]. The seed laser, crystal fiber amplifier and pump diode have been integrated in a transportable package (whose footprint is 24 × 44 cm^2).

The parametric source is then described in Fig. 1b. It also consists in a master oscillator-power amplifier (MOPA) architecture, with a low-energy NesCOPO as the master oscillator and a periodically poled lithium niobate crystal (PPLN) for optical parametric amplification (OPA). Indeed, the main interest of the NesCOPO architecture is that, unlike usual nanosecond OPO devices which rely on the use of an additional injection-seeding lasers to achieve single-frequency operation, the NesCOPO can emit, by construction, a single frequency tunable over hundreds of nanometer. Such tuning capability is interesting (1) for multi-species gas detection and (2) to on-line adapt the instrument parameters to the gas quantity to be detected.

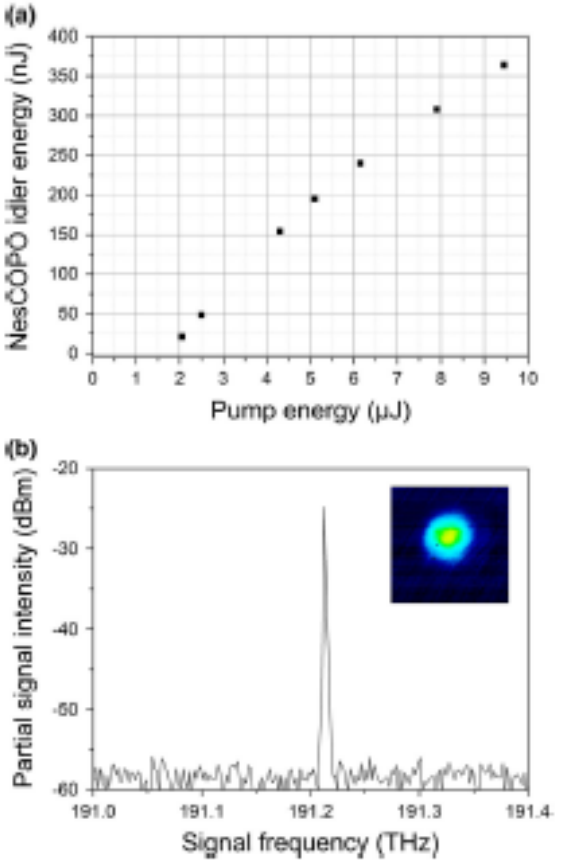


Fig. 2 (Color online) Idler NesCOPO output energy as a function of the incident pump energy at 3.3 μm (a). Transmitter performances at 3.3 μm—spectral purity of the amplified signal measured using a spectrum analyzer (*inset*: amplified idler beam profile) (b)

Indeed the optimal absorption depth lines can be addressed by tuning the NesCOPO. This is important to design high-dynamics instruments. Moreover, its specific cavity design is very compact and allows the design of easily transportable instruments.

Ten microjoules is extracted from the pump laser and focused onto a waist radius of 60 μm to pump the NesCOPO. The NesCOPO cavity is based on a 4 mm-long, MgO-doped PPLN crystal (HC Photonics) that comprises three parallel type-0 uniform quasi-phase matching gratings. The PPLN crystal, whose temperature is stabilized, is inserted in a short, linear cavity composed of two external mirrors: M_1, whose reflectivity at 3.5 μm is 80 % and M_3, which is gold coated and thus reflects the three interacting waves (signal, idler and pump). The signal mirror, M_2, is directly deposited on the PPLN entrance facet (Fig. 1b). The signal cavity is thus composed of mirrors M_2 and M_3, while the idler cavity is composed of mirrors M_1 and M_3, which are both mounted on piezoelectric transducers (PZT) for fine frequency tuning. Single-frequency operation of the device is ensured owing to a single coincident pair of signal and idler modes that can be obtained with an adequate dissociation of the two nested cavity lengths [7]. The NesCOPO has a 2-μJ threshold energy and emits 350 nJ pulses at 3.3 μm for an incident pump energy of 9.5 μJ per pulse (Fig. 2a). In order to limit detrimental saturation effects on the beam profile and the spectrum, we work with a pump energy of 4.5 μJ leading to 150 nJ pulses at 3.3 μm. After filtering optics, 125 nJ idler pulses, tunable between 3.3 and 3.7 μm, are available.

To enhance the detection range, amplification of the idler radiation is then carried out in an OPA stage. Different OPA crystal lengths were tested in order to assess potential detection range extension. In a first set of experiments, the OPA is based on a type 0, 20-mm-long, antireflection-coated PPLN crystal. The pump and idler beams are focused at the center of the crystal, onto 105 and 125 μm beam waist radii, respectively. The OPA-gain bandwidth is measured to be around 400 GHz, which is approximately two times narrower than the measured NesCOPO gain bandwidth for a set temperature, as can be expected given the NesCOPO and OPA respective crystal lengths. In this configuration, the spectral range available for IPDIAL monitoring without adjusting other parameters than the NesCOPO PZT is thus only limited by the OPA crystal to 400 GHz (corresponding to approximately a 14 nm or 13 cm^{-1} span for the idler wave). In the gain bandwidth located around 3.3 μm, close to the strong methane lines we targeted in our experiments, an energy amplification gain of 40 is obtained. After filtering the pump and the signal, up to 5 μJ of idler energy is thus available at the output of the transmitter. At the output of the NesCOPO, the 1.5 μm signal wave is retrieved for frequency and purity measurements. Optical frequency is measured with a wsu-6 HighFinesse wavemeter with a precision of 50 MHz, and the spectral purity is observed with a 2 GHz resolution optical spectrum analyzer, which allows us to measure a side mode suppression ratio >30 dB of the NesCOPO output (signal cavity-free spectral range, FSR of 15 GHz). As shown in Fig. 2b, the amplified idler radiation is single frequency and has a high quality nearly Gaussian spatial profile. At the output of the transmitter, the amplified beam is collimated over a 2.5 mm waist. Furthermore, the emitter unit can be transportable with a footprint around 60 cm × 60 cm. The overall spectrum coverage of the emitter is (1) a fast tuning over 13 cm^{-1} at a set temperature and (2) a wide tuning with the poling period and temperature change from 1.45 to 1.6 μm for the signal wave and from 3.3 to 3.8 μm for the idler wave. Such wide tunability is an interesting setup for multi-species detection capability and a high dynamic range of the

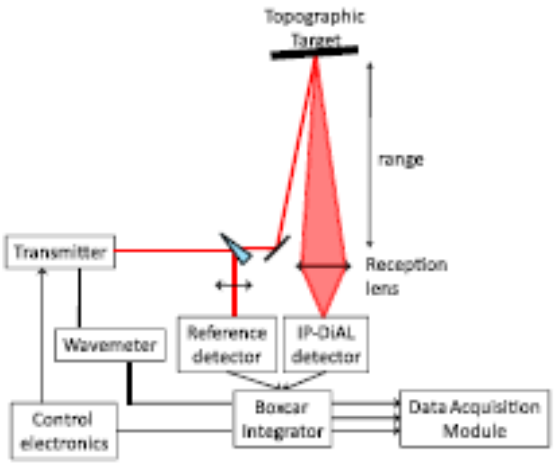


Fig. 3 (Color online) IPDIAL measurement setup

instrument. So this transmitter allows to choose adapted optical depth line to perform the measurement.

The transmitter is then integrated into the IPDIAL system. The IPDIAL instrument architecture is described in Fig. 3. It is composed of the transmitter unit, a receiver unit, control electronics and data acquisition modules. The idler beam is directed on a non-collaborative diffusive target (a quasi-lambertian sheet of paper) placed at a distance of 30 m. The control electronics and data acquisition module are composed of (1) a PZT controller for fine tuning of the idler frequency using the PZT-mounted mirrors M1 and M3, (2) a wavemeter for signal-frequency measurement (ws6-IR HighFinesse) whose resolution is 50 MHz and accuracy 200 MHz, with an integration time of 50 ms, (3) a TE-cooled infrared detector (VIGO) measuring around 1 % of the idler energy sampled by use of a calcium fluoride prism so as to correct the pulse-to-pulse output power variation (typically 6 % over 30 s), (4) and a boxcar integrator linked to a data acquisition card.

All these elements are linked to a computer for automated measurement sequences. The receiver module is composed of a 1 mm diameter nitrogen-cooled MCT detector and two high-aperture CaF_2 lenses, leading to a 0.14° reception field (semi angle). The MCT output is amplified and connected to the boxcar integrator. Each measurement point at a given wavelength is the mean value of 10 recorded data points. For each data point, the reference and lidar signal are separately integrated and averaged over 100 pulses using the boxcar integrator. As the time constant of the two detectors are different the boxcar integration time is adapted for each line: the reference signal is integrated over 150 ns and the lidar signal over 2 µs.

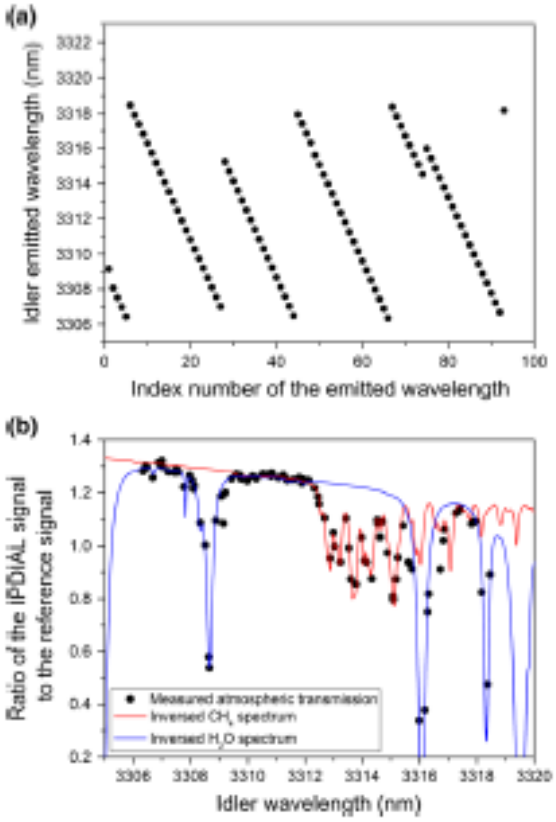


Fig. 4 (Color online) Full sequence of wavelengths emitted by the NesCOPO (a); transmission spectra of atmospheric water vapor and methane recorded using the IPDIAL instrument for a 30 m range (60 m absorption length) for a set NesCOPO temperature crystal of 81 °C (b)

3 Multi-species IPDIAL measurement

We tune the idler wave between 3,310 and 3,320 nm, so as to cover absorption lines of both atmospheric water vapor and methane. The measurements were performed in our laboratory corridor on the maximum possible distance (around 30 m). The water vapor and methane mean concentrations are thus retrieved from the atmospheric transmission over a total 60 m path. By use of the Vernier sampling method carried out by translation of NesCOPO mirrors M_1 and M_3 according to the procedure detailed in [6], we generate the sequence of 93 wavelengths shown in Fig. 4a. An example of such transmission measurement is given in Fig. 4b. The measurement time is the same for each data point in the spectrum. As previously estimated, the spectrum coverage of the parametric source at a set temperature allows the detection of both species over a 10-nm wide span.

To estimate the receiver performances, we characterized the noise of the detection chains (lidar and reference lines). In order to limit the background noise, we put in front of the nitrogen-cooled MCT detector a band pass filter with an optical transmission bandwidth of 4.5 µm (from 2 to 6.5 µm). We use the adjustable boxcar offset to remove the dark level of each line. The main major contribution to the detection limit is the noise due to the detection chain on each line. To characterize this effect on the overall transmission measurement, we monitored the lidar to reference ratio at a set wavelength, without gas absorption, over 10 s. The measured transmission fluctuation at a set wavelength is around $\sigma = \pm 2$ % over 10 s. A second contribution on the detection limit is the uncertainty on the idler wavelength value, which has some effect on the measure transmission on the absorption line sides. Due to the wavelength-tuning method and the wavemeter resolution, the mean emitted signal wavelength and the subsequent idler wavelength are known with a precision of ±30 MHz for all the data of each wavelength measurement point, assuming a constant pump wavelength. This effect is not sufficient to explain the measured typical transmission fluctuations of ±20 % for H_2O and ±4 % on CH_4 for the measurement points at the edge of the absorption lines (transmission of 50 %). However, the pump wavelength is not measured during the acquisition, and given its fluctuations of around ±75 MHz during the acquisition time scale, the idler wavelength uncertainty is of ±80 MHz for reach measurement point. These uncertainties imply ±12 % transmission fluctuations at the edge of the water vapor absorption lines and ±4 % transmission fluctuations at the edge of the methane absorption lines, which is in good agreement with the experiment.

The spectra inversion algorithm used in order to retrieve the concentrations of both species relies on a maximum likelihood estimator. Because of low variations in spectral transmission between the signal path and the reference path, a quasi-linear alteration of the baseline is also observed. Our inversion algorithm thus retrieves simultaneously five parameters: volume mixing ratios of CH_4 and H_2O and three coefficients for the so-assumed second-order polynomial baseline.

In a first step, we apply an unweighted least square estimator to the signal logarithm (filtering low transmission points to avoid strong estimation bias) in order to obtain "good enough" first-guess values and initialize a maximum likelihood estimator (MLE). Then, from observation of the first-guess estimator residuals, the measurement noise was assumed to be an addition of two terms: a white (wavelength-independent) Gaussian centered noise and a wavelength-dependent noise due to the small uncertainties about the idler frequency with a standard deviation of ±80 MHz. It is known that a MLE is asymptotically unbiased and

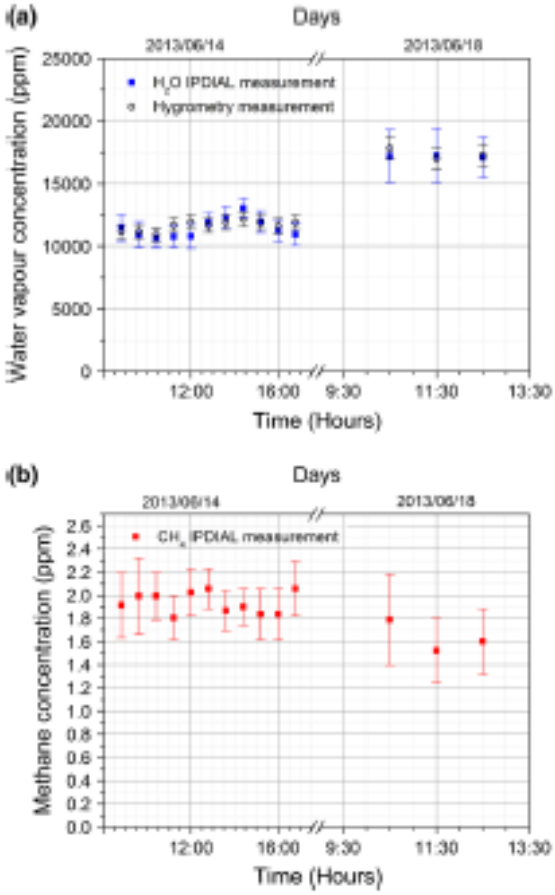


Fig. 5 (Color online) Simultaneous atmospheric water vapor (a) and methane (b) mean concentration measurements over a 30 m range with 5 µJ idler output energy (60 m absorption length), measured over two days, indoors, at Onera Palaiseau site (2013/06/14–2013/06/18) under the same instrumental conditions. The water vapor measurement is compared with a commercial hygrometer measurement

reaches the minimal standard deviation for estimates, namely the Cramer-Rao bounds (CRB) [15]. Here, this feature has been verified through statistical simulations for the considered experiments. The numbers of data points was sufficient to yield actually unbiased estimates and reach the CRB. As a consequence, all the error bars indicated below were computed as plus/minus two times the Cramer-Rao Bounds (95 % of estimates), and the CRB were calculated each time according to the relevant parameters of the undertaken experiment: (1) spectral position of data points and (2) signal-to-noise ratio for each one. Twice the CRB divided by gas concentration will also be referred below as the expectable relative random error (RRE) of a gas measurement.

For the two tested molecules, the fitted model is plotted in solid lines, revealing a clean contrast between the instrument's baseline and the complex absorption signal arising from the mixing water and methane lines at atmospheric pressure. Regarding sensitivity performances, in the experiment presented Fig. 4, the water vapor concentration is estimated to be 9,440 ± 396 ppm, and the natural atmospheric methane concentration is 1.77 ± 0.09 ppm, which is consistent with the usually acknowledged content of 1.8 ppm [16]. These measurement conditions are also interesting to demonstrate the potential of multi-wavelengths, multi-species IPDIAL measurement. Indeed, as methane and water vapor are measured simultaneously, the strong absorption background due to water does not disturb methane concentration retrieval since the interfering lines are fully considered in the inversion algorithm.

In order to confirm this property, we performed several identical experiments over two days (2013/06/14–2013/06/18), indoors, at the Palaiseau Onera site in France, in June 2013. Figure 5 shows the concentration evolution of both water vapor and methane. The acquisition time for a single-concentration measurement composed of several hundreds of data points is typically of 7 min. Let us keep in mind here that the measurement time was not optimized here, and the goal was to emit as many wavelengths as possible, to test the influence of the number of emitted wavelength on the measurement precision. Each point is deduced from a complete spectrum such as the one presented in Fig. 4b. Each spectrum is composed of a single-wavelength scan, with a mean acquisition time of 4.7 s for each wavelength.

A very noticeable aspect about this monitoring experiment is the fact that between day 1 and day 2, outdoor rainy weather induced an increase in water vapor concentration, which was clearly detected by the lidar. Regarding methane, despite the strong variation in the water vapor content between these two days, the measurement was not affected. This illustrates the advantageous ability of a multi-species instrument, with a wide spectral coverage of the transmitter, as concentration bias arising from interfering species can be avoided. During this period water vapor measurements accuracy was also assessed by comparing the retrieved concentration with an in situ commercial hygrometer. As shown on Fig. 5a, the mean water vapor content retrieved from our measurement is consistent with the hygrometer. During the first day, the error on concentration estimation provided by the inversion algorithm is kept below 6 % for both water and methane. This measurement precision is worse during the second day, but is kept below 9 % for both species.

To evaluate the contribution of the speckle noise, we also performed experiments with a diffusive target mounted on a rotating disk. If the rotating velocity is much faster than the integration time per wavelength the signal is then an average of different speckle patterns. The concentration errors on the two species are slightly better by a factor of 1.1 for CH_4 and 1.25 for H_2O with the rotating target. Only a slight part of the derived concentration error thus seems to originate from speckle noise. Furthermore, we measured a beam-pointing stability better <0.1 mrad. The collection total angle is 2.5 mrad, whereas the emission total angle is estimated to be 1.4 mrad (for an idler waist of 1.8 mm and M^2 value of 2 at the emitter ouput). Thence, errors due to beam-pointing instabilities are negligible.

4 Wavelengths sequence optimization

For the experiments illustrated in Figs. 4 and 5, we have used each time a large number of data points of 93 for example in Fig. 4 and estimated five coefficients to inverse the spectrum (concentration of CH_4 and H_2O plus three baseline coefficients). This strategy is not optimal for two reasons. First, in principle, it is possible to record the baseline shape alone over absorption-free spectral domains with high accuracy to flatten absorption measurements. Thus, the number of fitting coefficients can be reduced from five to three: two concentrations and a single-level coefficient of the flattened baseline. This reduction improves estimation accuracies for concentrations parameters. Second, we have to take into account the measurement time, as there must be a trade-off between measurement time and concentration accuracy. For example, instead of emitting 93 wavelengths and spending a short measurement time for each point, we could choose to reduce the number of wavelengths and increase each point measurement time.

On the one hand, by reducing the number of wavelengths the measurement accuracy theoretically decreases because less spectral information is available. As an illustration, Fig. 6 represents the expected evolution of the minimum relative random error (RRE) as a function of the number of experimental wavelengths N contained in the wavelengths sequence. As expected, we see that the RREs increase when reducing the number of wavelengths. Figure 6 highlights a trade-off between concentration accuracy and measurement time. Indeed, for a number of wavelengths divided by two in the spectrum, that is to say divided the measurement time by two, the RREs increase by 2 % for each configuration. On the other hand, under white noise assumption, increasing the point measurement time improves the accuracy. Indeed, the noise standard deviation can thus be assumed to be inversely proportional to the square root of the point measurement time. We may therefore wonder what is the optimal wavelengths sequence that must be emitted by the NesCOPO to yield

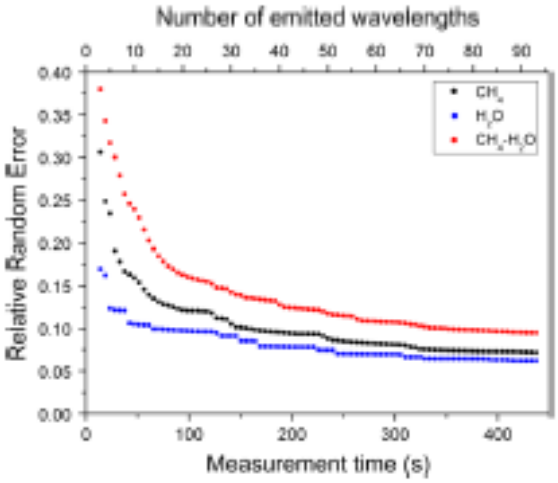


Fig. 6 (Color online) Evolution of the minimum value of the relative random errors for CH_4 (*red spots*), H_2O (*blue spots*) and the quadratic sum of CH_4 and H_2O (*black spots*) as functions of the number of experimental wavelengths in the spectrum (or the measurement time). Each data point value corresponds to the optimal successive wavelengths sequence minimizing the RRE value

the best concentration accuracy in a limited measurement time T?

We calculate here the optimal wavelengths sequence for the experimental measurement described by Fig. 4. We assume that there are only three parameters to estimate (concentration of CH_4 and H_2O plus one baseline coefficient). The pattern of emitted wavelengths is recalled in Fig. 7. For each wavelength point, the measurement time is $t' = T/N$ where T is the total measurement time and N is the number of wavelengths within the wavelengths sequence (the mirror displacement time is negligible). The corresponding noise standard deviation σ_N is given by

$$\sigma_N = \sigma_{93}\sqrt{\frac{N}{93}},$$

where σ_{93} is the noise standard deviation that was considered for inversion with full data in Fig. 4. As in Sect. 3, we assume a white (wavelength-independent) Gaussian centered noise and the expectable relative random error (RRE) for each estimated parameter are given by two times the Cramer-Rao Bounds.

At least, three wavelengths are needed for the three-parameter estimation problem to be solved. The RRE for CH_4 and H_2O concentrations are bidimensional functions of N, the number of successive wavelengths, and k, the starting index of the emitted N-wavelength sequence. A double loop calculation allows identifying the optimal wavelengths sequence $[N_{opt}, k_{opt}]$ that minimize the RRE for each gas species. The calculation shows that the best choice for CH_4 measurement is to use a 6-wavelength

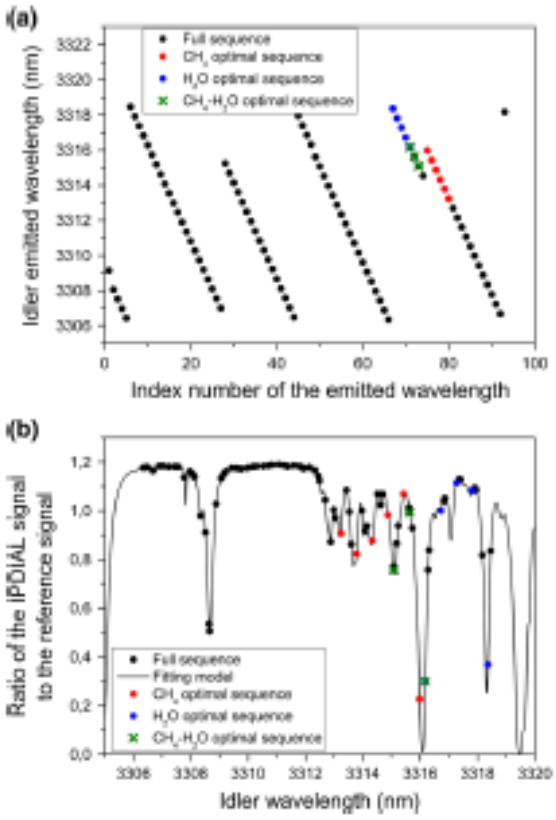


Fig. 7 (Color Online) Full sequence of 93 wavelengths emitted by the NesCOPO (*black spots*) (a) and the absorption signal corresponding to the wavelength sequences shown on Fig. 4 (b). 6-wavelength sequence minimizing the relative random error (RRE) for CH_4 (*red spots*); 5-wavelength sequence minimizing the RRE for H_2O (*blue spots*); 3-wavelength sequence minimizing the quadratic sum of CH_4 and H_2O RREs (*green crosses*). The baseline is supposed to have been flattened by an appropriate and accurately measured relative baseline curve

sequence between 3,312 and 3,314 nm, while a 5-wavelength sequence between 3,316 and 3,318 nm is optimal for H_2O measurements during the measurement time T. One may also want to get the best global compromise for a composite CH_4–H_2O measurement and seek the optimal wavelength sequence that minimizes the quadratic sum CH_4 and H_2O RREs. For this configuration, we find that a 3-wavelength sequence at 3,315–3,316 nm is optimal for the measurement time T. The best wavelength sequences for CH_4, H_2O, and composite CH_4–H_2O measurements are shown in Fig. 7a, b that represent, respectively, the total emitted 93-wavelength sequence and the measured spectrum with the fitting model.

If we use the optimal sequences of each configuration derived from the precedent study for our experimental data with a constant measurement time t' of 4.7 s at each

Table 1 Properties of the optimal wavelength sequences RREs for CH_4, H_2O, and quadratically-summed RREs, and corresponding RREs from the experimental data

	Full wavelength sequence	Optimal sequence for CH_4	Optimal sequence for H_2O	Optimal sequence for CH_4-H_2O
Number of wavelengths	93	6	5	3
RRE for CH_4 (%)	7.2	19	99	33
RRE for H_2O (%)	6.2	1,730	12	19
Quadratic sums of RREs (%)	9.5	1,730	99	38
Total measurement time T (%) (s)	440	28.2	23.5	14.1

Bold RRE values correspond to the RREs used to determined the optimal sequence of each configuration

wavelength, we obtain the RREs value given in Table 1. We can notice that the best sequence for CH_4 does not provide information about the water vapor concentration. Indeed, the water vapor is not in the spectral range of this best wavelength sequence for CH_4. In contrast, the best sequence for H_2O allows a concentration measurement of the CH_4.

To investigate further the potential benefit provided by the use of the optimal wavelengths sequences, we study the evolution of the RREs errors as functions of the measurement time. The results are illustrated in Fig. 8 for each configuration. In each case, the solid line represents the RREs theoretical limit as a function of the measurement time T for the optimal N_{opt}-wavelength sequence, while the measurement time t' at each wavelength is gradually increased with $t' = T/N_{opt}$. On the other hand, the dots curves illustrate the evolution the experimental RREs function of the measurement time. For this curve, t' is kept constant, with $t' = 4.7$ s, and the number of wavelength, N, is increased, starting from the optimal wavelength sequence and gradually adding new wavelength points on the border of the sequence to eventually recover the total 93-wavelength sequence for the longest measurement time $T = 440$ s. We can see that it is better to increase the point measurement time t' of the optimal wavelengths sequence with a set number of wavelengths than increase the number of wavelengths with a set point measurement time t'. For example, we could obtain the same methane concentration error of 7.2 % with a total measurement time of 200 s instead of 440 s. In the same way, we could obtain the same water vapor and composite methane–water vapor RREs of, respectively, 6.2 and 9.5 % with a reduced total measurement time of 100 and 250 s, respectively.

Identifying the optimal wavelength sequence is important for a NesCOPO, which is a highly versatile wavelength emitter. However, the results strongly depend of noise

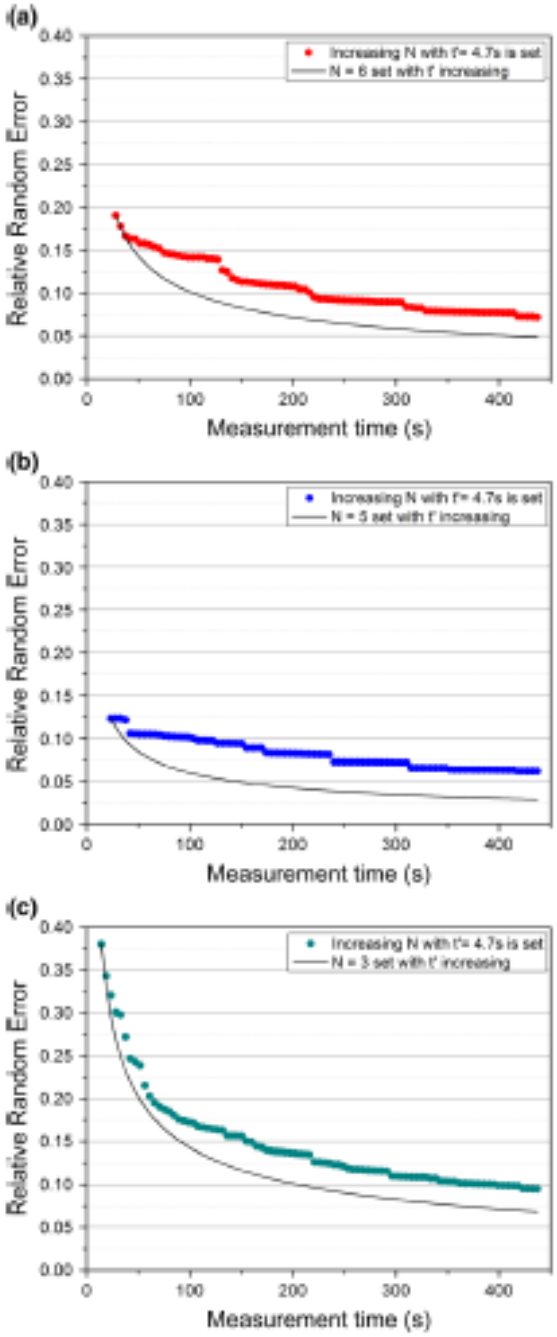


Fig. 8 (Color online) Evolution of the relative random errors as functions of the measurement time for CH_4 (a), H_2O (b) and the quadratic sum of CH_4 and H_2O (c). The first RREs values correspond to the optimal sequences for each configuration determined in Fig. 7. (*Dots* experimental relative random errors; *solid line* expected relative random errors)

properties and gas concentrations. Therefore, in practical case, extensive wavelength sequence may remain useful to get a first picture of the gas mixture content along the line of sight and derive first estimates of concentrations. These estimates may then be used, together with noise properties, in order to determine optimal wavelength sequence and spend the following measurement time more efficiently, in accordance with measurement objectives.

5 Estimation of the maximum range of operation

We then estimate an effective operating range reachable with our system for future outdoor measurements. For that purpose, we arbitrarily consider that a 10 % relative error on water and methane concentrations is acceptable for an operational system, and we carry out different experiments: (1) we assess the performances of the setup at a lower idler energy, and (2) we implement a more efficient amplifier stage to increase the available idler energy.

First of all, we perform a measurement with a 40 times attenuated transmitter output while keeping the same 30 m range as described previously. As shown on Fig. 9, in this configuration, the retrieved concentration measurement error is kept below 10 %. Since the retrieved idler power, P_{R}, is proportional to the inverse square range, d, and the transmitter output power, P_{idler}, as follows [17]:

$$P_{R} \propto P_{idler}/d^2,$$

we can then estimate the range, d, for which the signal-to-noise ratio on the detection unit without attenuation will be comparable to the one in this last experiment. Hence, with the 5 µJ available idler pulse energy, the estimated operational range would be around 190 m. Obviously, weaker absorption lines should then be used, which is possible owing to the wide tunability of the transmitter.

In a last experiment, we implement a more efficient OPA stage to extend the range of operation by increasing the 3.3 µm transmitter output energy. In order to increase the conversion efficiency from the pump to the idler wave, we use a 50-mm-long type 0, PPLN crystal for the amplifier. Up to 10 µJ of single frequency, idler radiation is thus available at the output of the transmitter. In this case, the experimental OPA bandwidth is reduced to less than 200 GHz, which is still sufficient to cover absorption lines of both atmospheric water vapor and methane. This increase in a factor 2 in terms of transmitter output energy will allow us in future work to extend our instrument detection range beyond 260 m.

6 Conclusion

We have developed a compact tunable optical source emitting single-frequency nanosecond pulses between 3.3 and 3.7 µm. It is pumped by a single-frequency, nanosecond microchip laser amplified up to 200 µJ per pulse in a single-crystal fiber amplifier. This parametric source based on a MOPA architecture delivers up to 5 µJ idler pulse energy. Thanks to this specific transmitter, we could demonstrate multi-wavelength and multi-species integrated path differential absorption Lidar (IPDIAL) measurements over a 30 m range. Simultaneous IPDIAL measurement of atmospheric water vapor and methane were performed with a measurement error below 6 %. Owing to an analysis based on the experimental data, we have been able to determine optimal wavelength sequences that can be used to potentially shorten the measurement time and/or improve the accuracy. The range of operation of this system for outdoor experiments has been finally estimated to be typically in the hundreds of meters on condition that an optimized parametric amplifier is implemented. Future

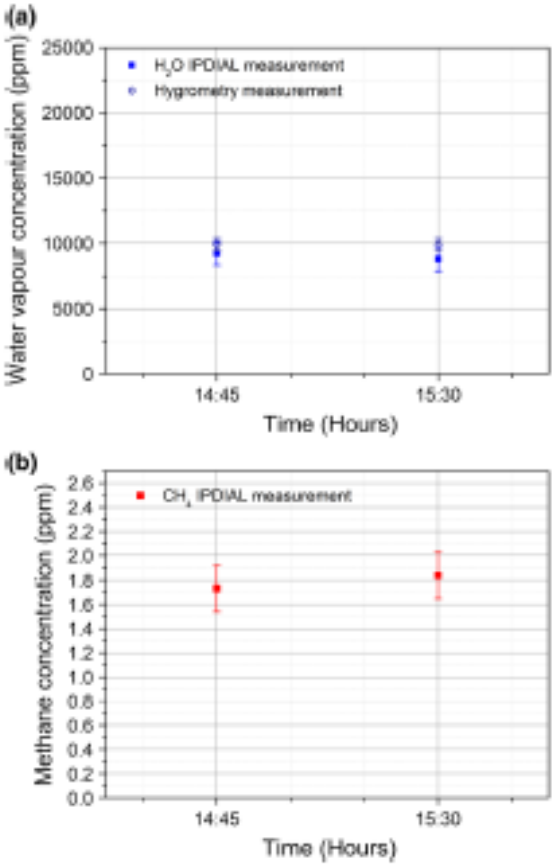


Fig. 9 (Color online) Simultaneous atmospheric water vapor (a) and methane (b) mean concentration measurements over a 30 m range with a 40 times attenuated transmitter output (60 m absorption length), measured 2013/06/25, indoors, at Onera Palaiseau site. The water vapor measurement is compared with a commercial hygrometer measurement

work will thus focus on outdoor measurements on both species and energy scaling of the transmitter to achieve range-resolved experiments.

Acknowledgments This work was partially supported by grants from Région Ile-de-France and Le Triangle de la Physique.

References

1. J.B. Abshire, H. Riris, C.J. Weaver, J. Mao, G.R. Allan, W.E. Hasselbrack, E.V. Browell, Appl. Opt. **52**(19), 4446–4461 (2013)
2. N.A. Macleod, R. Rose, D. Weidmann, Opt. Lett. **38**(19), 3708–3711 (2013)
3. J. Yu, B.C. Trieu, E.A. Modlin, U.N. Singh, M.J. Kavaya, S. Chen, Y. Bai, P.J. Petzar, M. Petros, Opt. Lett. **31**(4), 462–464 (2006)
4. F. Gibert, P.H. Flamant, D. Bruneau, C. Loth, Appl. Opt. **45**(18), 4448–4458 (2006)
5. D. Bruneau, P. Quaglia, C. Flamant, M. Meissonnier, J. Pelon, Appl. Opt. **40**(21), 3450–3461 (2001)
6. B. Hardy, M. Raybaut, J.B. Dherbecourt, J.M. Melkonian, A. Godard, A.K. Mohamed, M. Lefebvre, Appl. Phys. B **107**, 643–647 (2012)
7. B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard, M. Lefebvre, Opt. Lett. **36**(5), 678–680 (2011)
8. K. Numata, H. Riris, S. Li, S. Wu, S.R. Kawa, M. Krainak, J. Abshire, J. Appl. Remote Sens. **6**(1), 063561 (2012)
9. P. Weibring, H. Edner, S. Svanberg, Appl. Opt. **42**(18), 3583–3594 (2003)
10. M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A.K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, P. Kaspersen, Opt. Lett. **34**(13), 2069–2071 (2009)
11. M. Wirth, A. Fix, P. Mahnke, H. Schwarzer, F. Schrandt, G. Ehret, Appl. Phys. B **96**, 201–213 (2009)
12. A. Amediek, A. Fix, M. Wirth, G. Ehret, Appl. Phys. B **92**, 295–302 (2008)
13. R. Nehrir, K.S. Repasky, J.L. Carlsten, Opt. Express **20**(22), 25137–25151 (2012)
14. I. Martial, F. Balembois, J. Didierjean, P. Georges, Opt. Express **19**(12), 11667–11679 (2011)
15. Harry L. van Trees, "Detection, Estimation, and modulation Theory", (Wiley, 1997)
16. P. Bergamaschi, S. Houweling, A. Segers, M. Krol, C. Frankenberg, R. A. Scheepmaker, E. Dlugokencky, S. C. Wofsy, E. A. Kort, C. Sweeney, T. Schuck, C. Brenninkmeijer, H. Chen, V. Beck, C. Gerbig, Journal of Geophysical Research: Atmospheres (2013)
17. J. Bösenberg, Appl. Opt. **37**(18), 3845–3860 (1998)

Bibliographie

[Abshire - 2013] J. B. Abshire, H. Riris, C. J. Weaver, J. Mao, G. R. Allan, W. E. Hasselbrack, and E. V. Browell, "Airborne measurements of CO_2 column absorption and range using a pulsed direct-detection integrated path differential absorption lidar," Appl. Opt. **52**(19), 4446-4461 (2013).

[Amediek - 2008] Amediek, A. Fix, M. Wirth, and G. Ehret, "Development of an OPO system at 1.57µm for integrated path DIAL measurement of atmospheric carbon dioxide," Applied Physics B **92**, 295-302 (2008).

[Amhed - 1989] F. Ahmed, "Laser damage threshold of KTiOPO4," Appl. Opt. **28**(1), 119-122 (1989).

[Andrieux - 2011] E. Andrieux, T. Zanon, M. Cadoret, A. Rihan, and J.-J. Zondy, "500 GHz mode-hop-free idler tuning range with a frequency-stabilized singly resonant optical parametric oscillator," Opt. Lett. **36**(7), 1212-1214 (2011).

[Ansmann - 1985] A. Ansmann, “Errors in ground-based water-vapor DIAL measurements due to Doppler-broadened Rayleigh backscattering”,Applied Optics, Vol. 24, Issue 21, pp. 3476-3480 (1985).

[Arisholm - 2004] G. Arisholm, R. Nordseth, and G. Rustad, "Optical parametric master oscillator and power amplifier for efficient conversion of high-energy pulses with high beam quality," Optics Express **12**(18), 4189-4197 (2004).

[Armstrong - 1967] B. H. Armstrong, "Spectrum line profiles: The Voigt unction," Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **7**(1), 61-88 (1967).

[Barrientos Barria - 2013] J. Barrientos Barria, S. Roux, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, J.-M. Melkonian, A. Godard, and M. Lefebvre, "Microsecond fiber laser pumped, single-frequency optical parametric oscillator for trace gas detection," Opt. Lett. **38**(13), 2165-2167 (2013).

[Barrientos Barria - 2014] J. Barrientos Barria, A. Dobroc, H. Coudert Alteirac, M. Raybaut, N. Cezard, J.-B. Dherbecourt,T. Scmidt, B. Faure, G. Souhaité, J. Pelon, J.-M. Melkonian, A. Godard, A.-K. Mohamed, M. Lefebvre," Simultaneous remote monitoring of atmospheric methane and water vapor using an integrated path DIAL instrument based on a widely tunable optical parametric source", Appl. Phys. B, **98**, 217 (2014).

[Bergamaschi - 2013] P. Bergamaschi, S. Houweling, A. Segers, M. Krol, C. Frankenberg, R. A. Scheepmaker, E. Dlugokencky, S. C. Wofsy, E. A. Kort, C. Sweeney, T. Schuck, C. Brenninkmeijer, H. Chen, V. Beck, and C. Gerbig, "Atmospheric CH_4 in the first decade of the 21st century: Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements," Journal of Geophysical Research: Atmospheres, (2013).

[Berrou - 2008] A. Berrou, "Développement d'un oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie des gaz et ses applications", Thèse de doctorat, Ecole polytechnique (2008).

[Berrou - 2010] A. Berrou, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre, "High-resolution photoacoustic and direct absorption spectroscopy of main greenhouse gases by use of a pulsed entangled cavity doubly resonant OPO," Applied Physics B **98** (2010).

[Bjorkholm - 1969] J. E. Bjorkholm and H. G. Danielmeyer, "Frequency control of a pulsed optical parametric oscillator by radiation injection", Applied Physics Letters **15**(6), 171-173 (1969).

[Blau - 2008] P. Blau, S. Pearl, S. Fastig, and R. Lavi, "Single-Mode Operation of a Mid-Infrared Optical Parametric Oscillator Using Volume-Bragg-Grating Cavity Mirrors," Quantum Electronics, IEEE Journal of **44**(9), 867-871 (2008).

[Born - 1999] M. Born and E. Wolf, "Principle of optics", Livre, Septième Edition, Pergamon, ISBN 0-521-642221 (1980).

[Bösenberg - 1998] J. Bösenberg, "Ground-Based Differential Absorption Lidar for Water-Vapor and Temperature Profiling: Methodology," Appl. Opt. **37**(18), 3845-3860 (1998).

[Bovensmann - 1999] H. Bovensmann, J. P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. NoÃ«l, V. V. Rozanov, K. V. Chance, and A. P. H. Goede, "SCIAMACHY: Mission Objectives and Measurement Modes," J. Atmos. Sci. **56**(2), 127-150 (1999).

[Boyd - 1992] R. W. Boyd, "Nonlinear optics", Livre, ISBN 0-12-121680-2 (1992).

[Brown - 2008] D. M. Brown, K. Shi, Z. Liu, and C. R. Philbrick, "Long-path supercontinuum absorption spectroscopy for measurement of atmospheric constituents," Opt. Express **16**(12), 8457-8471 (2008).

[Browell - 1991] E. V. Browell, S. Ismail, and B. E. Grossmann, "Temperature sensitivity of differential absorption lidar measurements of water vapor in the 720-nm region", Appl. Opt. **30**(12), 1517-1524 (1991).

[Cahen - 1981] C. Cahen and G. Mégie, “A spectral limitation of range-resolved differential absorption lidar technique”, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, vol. **25**, pp. 151-157 (1981).

[Caron - 2009] J. Caron and Y. Durand, "Operating wavelengths optimization for a spaceborne lidar measuring atmospheric CO_2," Applied Optics **48**(28), 5413-5422 (2009).

[Chandra - 2000] S. Chandra, M. E. Wager, B. L. Clayton, A. G. Geiser, T. H. Allik, J. L. Ahl, C. R. Miller, P. A. Budni, P. A. Ketteridge, K. G. Lanier, E. P. Chicklis, J. A. Hutchinson, and W. W. Hovis, "2-µm-pumped 8-12-µm OPO source for remote chemical sensing," Proceedings SPIE (2000).

[Charbonneau-Lefort - 2008] M. Charbonneau-Lefort, B. Afeyan, M. M. Fejer, "Optical parametric amplifiers using chirped quasi-phase-matching gratings I: practical design formulas", J. Opt. Soc. Am. B **25**(4), 463-480 (2008).

[Cleary - 2002] P. A. Cleary, P. J. Wooldridge, and R. C. Cohen, "Laser-induced fluorescence detection of atmospheric NO2 with a commercial diode laser and a supersonic expansion", Appl. Opt. **41**(33), 6950-6956 (2002).

[Clément - 2013] Q. Clément, J.-M. Melkonian, J. Barrientos-Barria, J.-B. Dherbecourt, M. Raybaut, and A. Godard, "Tunable optical parametric amplification of a single-frequency quantum cascade laser around 8 µm in ZnGeP2," Opt. Lett. **38**(20), 4046-4049 (2013).

[Collis - 1976] R. T. H. Collis and P. B. Russell, "Lidar measurement of particles and gases by elastic backscattering and differential absorption," in E. D. Hinkley, Laser Monitoring of the Atmosphere, Vol. 14, Chap. 4, pp. 71-151 (1976).

[Cooney - 1970] J. Cooney, "Remote Measurements of Atmospheric Water Vapor Profiles Using the Raman Component of Laser Backscatter", J. Appl. Meteor. **9**(1), 182-184 (1970).

[Crisp - 2012] D. Crisp, B. M. Fisher, C. O'Dell, C. Frankenberg, R. Basilio, H. Bösch, L. R. Brown, R. Castano, B. Connor, N. M. Deutscher, A. Eldering, D. Griffith, M. Gunson, A. Kuze, L. Mandrake, J. McDuffie, J. Messerschmidt, C. E. Miller, I. Morino, V. Natraj, J. Notholt, D. M. O'Brien, F. Oyafuso, I. Polonsky, J. Robinson, R. Salawitch, V. Sherlock, M. Smyth, H. Suto, T. E. Taylor, D. R. Thompson, P. O. Wennberg, D. Wunch, and Y. L. Yung, "The ACOS CO_2 retrieval algorithm – Part II: Global X_{CO2} data characterization" (2012).

[Dahnke - 2001] H. Dahnke, D. Kleine, P. Hering, and M. Mürtz, "Real-time monitoring of ethane in human breath using mid-infrared cavity leak-out spectroscopy," Applied Physics B **72**(8),971-975 (2001).

[Desormeaux - 2005] A. Desormeaux, "Développement d'un oscillateur paramétrique optique monofréquence et réalisation d'un montage pour la spectroscopie infrarouge non linéaire", Thèse de doctorat, Paris XI Orsay (2005).

[Dobroc - 2012] A. Dobroc and N. Cézard, "Performance assessment and signal processing for range-integrated concentration measurement of gas species using supercontinuum absorption spectroscopy," Appl. Opt. **51**(35), 8470-8480 (2012).

[Dobroc - 2013] A. Dobroc, "Etude et réalisation de dispositifs optiques à large couverture spectrale pour la détection multi-gaz à distance", Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2013).

[Drag - 2001] C. Drag, I. Ribet, M. Jeandron, M. Lefebvre, and E. Rosencher, "Temporal behavior of a high repetition rate infrared optical parametric oscillator based on periodically poled materials," Applied Physics B **73**, 195-200 (2001).

[Edner - 1993] H. Edner, P. Ragnarson, S. Spännare, and S. Svanberg, "Differential optical absorption spectroscopy (DOAS) system for urban atmospheric pollution monitoring," Appl. Opt. **32**(3), 327-333 (1993).

[Ehret - 2008] G. Ehret, C. Kiemle, M. Wirth, A. Amediek, A. Fix, and S. Houweling, "Space-borne remote sensing of CO_2, CH_4, and N_2O by integrated path differential absorption lidar: a sensitivity analysis", Applied Physics B, pp. 593-608 (2008).

[Fejer - 1992] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances," Quantum Electronics, IEEE Journal of **28**(11), 2631-2654 (1992).

[Fix - 2011] A. Fix, C. Büdenbender, M. Wirth, M. Quatrevalet, A. Amediek, C. Kiemle, and G. Ehret, "Optical parametric oscillators and amplifiers for airborne and spaceborne active remote sensing of CO2 and CH4", Proceedings SPIE (2011).

[Fiorani - 2011] L. Fiorani, F. Colao, A. Palucci, D. Poreh, A. Aiuppa, and G. Giudice, "First-time lidar measurement of water vapor flux in a volcanic plume," Optics Communications **284**(5), 1295-1298 (2011).

[Fuchs - 2010] F. Fuchs, S. Hugger, M. Kinzer, R. Aidam, W. Bronner, R. Lösch, Q. Yang, K. Degreif, and F. Schnürer, "Imaging standoff detection of explosives using widely tunable midinfrared quantum cascade lasers," Optical Engineering **49**(11), 111127-111128 (2010).

[Grant - 1982] W. B. Grant, "Effect of differential spectral reflectance on DIAL measurements using topographic targets", Appl. Opt., Vol. 21, Issue 13, pp. 2390-2394 (1982).

[Gentry - 2000] B. M. Gentry, H. Chen, and S. X. Li, "Wind measurements with 355-nm molecular Doppler lidar," Opt. Lett. **25**(17), 1231-1233 (2000).

[Gibert - 2006] F. Gibert, P. H. Flamant, D. Bruneau and C. Loth, "Two-micrometer heterodyne differential absorption lidar measurements of atmospheric CO_2 mixing ration in the boundary layer", Appl. Opt. **45**(18), 4448-4458 (2006).

[Gibert - 2008] F. Gibert, P. H. Flamant, J. Cuesta, and D. Bruneau, "Vertical 2-µm Heterodyne Differential Absorption Lidar Measurements of Mean CO2 Mixing Ratio in the Troposphere," J. Atmos. Oceanic Technol. **25**(9), 1477-1497 (2008).

[Giordmaine - 1966] J. A. Giordmaine and R. C. Miller, "Optical Parametric Ocsillation in $LiNbO_3$ at Optical Frequencies", Physical Review Letters, **14** - 24, 973 (1965).

[Grant - 1982] W. B. Grant, “Effect of differential spectral reflectance on DIAL measurements using topographic targets”, Applied Optics, **21**(13), (1982).

[Hamazaki - 2005] T. Hamazaki, Y. Kaneko, A. Kuze and K. Kondo, “Fourier transform spectrometer for greenhouse gases observing satellite (GOSAT)”, Proc. SPIE, 5659, 73-80 (2005).

[Hardy - 2011 a] B. Hardy, "Façonnage du contenu spectral d'un OPO doublement résonant par maîtrise de la phase relative, applications pour la spectroscopie", Thèse de doctorat, Ecole (2011).

[Hardy - 2011 b] B. Hardy, A. Berrou, S. Guilbaud, M. Raybaut, A. Godard, and M. Lefebvre, "Compact, single-frequency, doubly resonant optical parametric oscillator pumped in an achromatic phase-adapted double-pass geometry," Opt. Lett. **36**(5), 678-680 (2011).

[Hardy - 2012] B. Hardy, M. Raybaut, J. Dherbecourt, J. Melkonian, A. Godard, A. Mohamed, and M. Lefebvre, "Vernier frequency sampling: a new tuning approach in spectroscopy application to multi-wavelength integrated path DIAL," Applied Physics B, pp. 643-647 (2012).

[Harry - 1997] Harry L. van Trees, "Detection, Estimation, and modulation Theory", (Wiley, 1997).

[Henderson - 2006] A. Henderson and R. Stafford, "Low threshold, singly-resonant CW OPO pumped by an all-fiber pump source," Opt. Express **14**(2), 767-772 (2006).

[Holthoff - 2010] E. Holthoff, J. Bender, P. Pellegrino, and A. Fisher,"Quantum Cascade Laser-Based Photoacoustic Spectroscopy for Trace Vapor Detection and Molecular Discrimination", Sensors **2010**, *10*(3), 1986-2002 (2010).

[Hugger - 2013] S. Hugger, F. Fuchs, J. Jarvis, M. Kinzer, Q. K. Yang, R. Driad, R. Aidam, and J. Wagner, "Broadband-tunable external cavity quantum cascade lasers for the spectroscopic detection of hazardous substances", Proceedings SPIE (2013).

[Hunt - 1988] J. M. Hunt, J. F. Holmes, and F. Amzajerdian, "Optimum local oscillator levels for coherent detection using photoconductors", Appl. Opt. **27**(15), 3135-3141 (1988).

[Ishizuki - 2012] H. Ishizuki and T. Taira, "Half-joule output optical-parametric oscillation by using 10-mm-thick periodically poled Mg-doped congruent LiNbO3", Opt. Express **20**(18), 20002-20010 (2012).

[Jacobsson - 2005] B. Jacobsson, M. Tiihonen, V. Pasiskevicius, and F. Laurell, "Narrowband bulk Bragg grating optical parametric oscillator", Opt. Lett., **30** - 17, 2281 - 2283 (2005).

[Jacobsson - 2009] B. Jacobsson, V. Pasiskevicius, F. Laurell, E. Rotari, V. Smirnov, and L. Glebov, "Tunable narrowband optical parametric oscillator using a transversely chirped Bragg grating," Opt. Lett. **34**(4), 449-451 (2009).

[Jin - 2004] Z. Jin, T. P. Charlock, W. L. Smith, and K. Rutledge, "A parameterization of ocean surface albedo," Geophysical Research Letters **31**(22), L22301 (2004).

[Kiemle - 2011] C. Kiemle, M. Quatrevalet, G. Ehret, A. Amediek, A. Fix, and M. Wirth, "Sensitivity studies for a space-based methane lidar mission", Atmos. Meas. Tech. Discuss. **4**(3), 3545-3592 (2011).

[Killinger - 1981] D. K. Killinger and N. Menyuk, "Effect of turbulence-induced correlation on laser remote sensing errors", Applied Physics Letters **38**(12), 968-970 (1981).

[Koch - 2008] G. J. Koch, J. Y. Beyon, F. Gibert, B. W. Barnes, S. Ismail, M. Petros, P. J. Petzar, J. Yu, E. A. Modlin, K. J. Davis, and U. N. Singh, "Side-line tunable laser transmitter for differential absorption lidar measurements of CO_2: design and application to atmospheric measurements", Applied Optics **47**(7), 944-956 (2008).

[Koch - 2009] K. Koch, C. Knoblauch, and D. Wagner, "Methanogenic community composition and anaerobic carbon turnover in submarine permafrost sediments of the Siberian Laptev Sea," Environmental Microbiology **11**(3), 657-668 (2009).

[Kogelnich - 1969] H. Kogelnik, "Coupled wave theory for thick hologram gratings", The Bell System Technical Journal, **48** - 9, 2909-2947 (1969).

[Kreuzer - 1969] L. B. Kreuzer, "Single mode oscillation of a pulsed singly resonant optical parametric oscillator", Applied Physics Letters, **15** - 8, 263 - 265 (1969).

[Kuze - 2009] A. Kuze, H. Suto, M. Nakajima, and T. Hamazaki, "Thermal and near infrared sensor for carbon observation Fourier-transform spectrometer on the Greenhouse Gases Observing Satellite for greenhouse gases monitoring," Appl. Opt. **48**(35), 6716-6733 (2009).

[Lawrance - 1977] A. J. Lawrance and P. A. W. Lewis, "An exponential Moving-Average Sequence and Point Process (EMA1)", Journal of Applied Probability Vol. **14**, No. 1, pp. 98-113 (1977).

[Lee - 1998] D. Lee and N. C. Wong, "Tuning characteristics of a cw dual-cavity KTP optical parametric oscillator," Applied Physics B **66** - 2, 133-143 (1998).

[Le Rille - 2002] O. Le Rille, "Etude et validation d'un Lidar hétérodyne émettant à 2 µm pour l'application à la météorologie et à l'environnement", Thèse de doctorat, Ecole (2002).

[Lowenthal - 1971] S. LOWENTHAL and D. JOYEUX, "Speckle Removal by a Slowly Moving Diffuser Associated with a Motionless Diffuser", J. Opt. Soc. Am. **61**(7), 847-851 (1971).

[Macleod - 2013] N. A. Macleod, R. Rose, and D. Weidmann, "Middle infrared active coherent laser spectrometer for standoff detection of chemicals," Optics Letters **38**(19), 3708-3711 (2013).

[Martial - 2012] I. Martial, F. Balembois, J. Didierjean, and P. Georges, "Nd:YAG single-crystal fiber as high peak power amplifier of pulses below one nanosecond," Opt. Express **19**(12), 11667-11679 (2011).

[Measures - 1984] R. M. Measures, "Laser Remote sensing - Fundamentals and applications", Wiley - Interscience (1984).

[Megie - 1980] G. Megie and R. T. Menzies, "Complementarity of UV and IR differential absorption lidar for global measurements of atmospheric species", Appl. Opt. **19**(7), 1173-1183 (1980)

[Mie - 1908] G. Mie, "Beiträge zur Optik trüber Medien Speziell Kolloidaler Metallösungen", Ann. Phys. vol. 25, pp. 337-445 (1908).

[Miller - 2007] Miller, C. E., Crisp, D., DeCola, P. L., Olsen, S. C., Randerson, J. T., Michalak, A. M., Alkhaled, A., Rayner, P., Jacob, D. J., Suntharalingam, P., Jones, D. B. A., Denning, A. S., Nicholls, M.E., Doney, S. C., Pawson, S., B¨osch, H., Connor, B. J., Fung, I. Y., O'Brien, D., Salawitch, R. J., Sander, S. P., Sen, B., Tans P., Toon, G. C.,Wennberg, P. O.,Wofsy, S. C., Yung, Y. L., and Law, R. M. "Precision requirements for space-based XCO2 data", J. Geophys. Res., 112, D10314, doi:10.1029/2006JD007659, (2007).

[Murray - 1976] E. R. Murray, R. D. Hake, J. E. van der Laan, and J. G. Hawley, "Atmospheric water vapor measurements with an infrared (10-µm) differential-absorption lidar system", Applied Physics Letters **28**(9), 542-543 (1976).

[Numata - 2012] K. Numata, H. Riris, S. Li, S. Wu, S. R. Kawa, M. Krainak, and J. Abshire, "Ground demonstration of trace gas lidar based on optical parametric amplifier," Journal of Applied Remote Sensing **6**(1), 063561-063561 (2012).

[Numata - 2014] K. Numata, S. Wu, and H. Riris, "Fast-switching methane lidar transmitter based on a seeded optical parametric oscillator," Applied Physics B, 1-8 (2014).

[Pack - 2004] M. V. Pack, D. J. Armstrong, and A. V. Smith, "Measurement of the χ(2) tensors of KTiOPO4, KTiOAsO4, RbTiOPO4, and RbTiOAsO4 crystals," Appl. Opt. **43**(16), 3319-3323 (2004).

[Patel - 2008] C. K. N. Patel, "Laser photoacoustic spectroscopy helps fight terrorism: High sensitivity detection of chemical Warfare Agent and explosives," The European Physical Journal Special Topics **153**, 1-18 (2008).

[Phillips - 2013] C. R. Phillips, C. Langrock, D. Chang, Y. W. Lin, L. Gallmann, and M. M. Fejer, "Apodization of chirped quasi-phasematching devices," J. Opt. Soc. Am. B **30**(6), 1551-1568 (2013).

[Pushkarsky - 2006] M. Pushkarsky, A. Tsekoun, I. G. Dunayevskiy, R. Go, and C. K. N. Patel, "Sub-parts-per-billion level detection of NO2 using room-temperature quantum cascade lasers ", Proceedings of the National Academy of Sciences **103** (29), 10846-10849 (2006).

[Rapport A-SCOPE] Rapport de la mission A-SCOPE.

[Rapport du GIEC - 2013] Rapport du GIEC (2013).

[Raybaut - 2009] M. Raybaut, T. Schmid, A. Godard, A. K. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, and P. Kaspersen, "High-energy single-longitudinal mode nearly diffraction-limited optical parametric source with 3 MHz frequency stability for CO_2 DIAL," Opt. Lett. **34**(13), 2069-2071 (2009).

[Rayleigh - 1871] L. Rayleigh, "On the ligth from the sky, its polarization and color", Philos. Mag. vol. 41, pp. 107-120 and 274-279 (1871).

[Ribet - 2001] I. Ribet, "Oscillateurs paramétriques optiques à cavités imbriquées pour l'étude de réseaux dynamiques créés par mélange à quatre ondes résolu en temps", Thèse de doctorat, Paris XI Orsay (2001).

[Riris - 2012] H. Riris, K. Numata, S. Li, S. Wu, A. Ramanathan, M. Dawsey, J. Mao, R. Kawa, and J. B. Abshire, "Airborne measurements of atmospheric methane column abundance using a pulsed integrated-path differential absorption lidar," Applied Optics **51**(34), 8296-8305 (2012).

[Robinson - 1995] R. A. Robinson, P. T. Woods, and M. J. T. Milton, "DIAL measurements for air pollution and fugitive-loss monitoring," SPIE proceeding (1995).

[Romanini - 1997] D. Romanini, A. A. Kachanov, N. Sadeghi, and F. Stoeckel, "CW cavity ring down spectroscopy", Chemical Physics Letters **264**, 316-322 (1997).

[Sakaizawa - 2009] D. Sakaizawa, C. Nagasawa, T. Nagai, M. Abo, Y. Shibata, M. Nakazato, and T. Sakai, "Development of a 1.6 µm differential absorption lidar with a quasi-phase-matching optical parametric oscillator and photon-counting detector for the vertical CO2 profile," Appl. Opt. **48**(4), 748-757 (2009).

[Sakaizawa - 2010] D. Sakaizawa, M. Nakajima, Y. Sawa, H. Matsueda, and S. Kawakami, "Ground-based demonstration of a CO2 remote sensor using a 1.57µm differential laser absorption spectrometer with direct detection," Journal of Applied Remote Sensing **4**(1), 043548-043548-043517 (2010).

[Scherrer - 1998] B. Scherrer, "Développement d'un oscillateur paramétrique optique monomode pour des mesures de température et de vitesse par Drasc temporellement résolue", Thèse de doctorat, Université Paris XIII Villetaneuse (1998).

[Scherrer - 2000] B. Scherrer, I. Ribet, A. Godard, E. Rosencher, and M. Lefebvre, "Dual-cavity doubly resonant optical parametric oscillators: demonstration of pulsed single-mode operation," J. Opt. Soc. Am. B **17**(10), 1716-1729 (2000).

[Schlup - 2000] P. Schlup, G. W. Baxter, and I. T. McKinnie, "Single-mode near- and mid-infrared periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator," Optics Communications, **176** - 1 -3, 267 - 271 (2000).

[She - 1992] C. Y. She, R. J. Alvarez, L. M. Caldwell, and D. A. Krueger, "High-spectral-resolution Rayleigh-Mie lidar measurement of aerosol and atmospheric profiles", Opt. Lett. **17**(7), 541-543 (1992).

[Sigrist - 1994] M. W. Sigrist, "Air monitoring by spectrocopic techniques", Livre, Edité par M. W. Sigrist, Chemical Analysis Series, Vol. 127, ISBN 0-471-55875-3 (1994).

[Sigrist - 2008] M. W. Sigrist, R. Bartlome, D. Marinov, J. M. Rey, D. E. Vogler, and H. Wächter, "Trace gas monitoring with infrared laser-based detection schemes," Applied Physics B **90**, 289-300 (2008).

[Stephan - 2011] C. Stephan, M. Alpers, B. Millet, G. Ehret, P. Flamant, and C. Deniel, "MERLIN: a space-based methane monitor", Proceedings SPIE (2011).

[Spiers - 2011] G. D. Spiers, R. T. Menzies, J. Jacob, L. E. Christensen, M. W. Phillips, Y. Choi, and E. V. Browell, "Atmospheric CO2 measurements with a 2µm airborne laser absorption spectrometer employing coherent detection," Appl. Opt. **50**(14), 2098-2111 (2011).

[Stothard - 2004] D. Stothard, I. Lindsay, and M. Dunn, "Continuous-wave pump-enhanced optical parametric oscillator with ring resonator for wide and continuous tuning of single-frequency radiation," Opt. Express **12**(3), 502-511 (2004).

[Sugimoto - 1990] N. Sugimoto, N. Sims, K. Chan, and D. K. Killinger, "Eye-safe 2.1-µm Ho lidar for measuring atmospheric density profiles", Opt. Lett. **15**(6), 302-304 (1990).

[Taczak - 1998] T. M. Taczak and D. K. Killinger, "Development of a tunable, narrow-linewidth, cw 2.066-µm Ho:YLF laser for remote sensing of atmospheric CO2 and H2O", Appl. Opt. **37**(36), 8460-8476 (1998).

[Tenti - 1974] G. Tenti, C. D. Boley, and R. C. Desai, "On the kinetic model description of RBS from molecular gases," Can. J. Phys. 52, 285 (1974).

[Tillman - 2007] K. A. Tillman and D. T. Reid, "Monolithic optical parametric oscillator using chirped quasi-phase matching," Opt. Lett. **32**(11), 1548-1550 (2007).

[Timofeyev - 2008] Yu M. Timofeyev and A. V. Vasil'ev, "Theoretical Fundamentals of Atmospheric Optics," publié par Cambridge International Science (2008).

[Umeki - 2009] T. Umeki, M. Asobe, T. Yanagawa, O. Tadanaga, Y. Nishida, K. Magari, and H. Suzuki, "Broadband wavelength conversion based on apodized $\chi^{(2)}$ grating," J. Opt. Soc. Am. B **26**(12), 2315-2322 (2009).

[van Herpen - 2003] M. M. J. W. van Herpen, S. E. Bisson, and F. J. M. Harren, "Continuous-wave operation of a single-frequency optical parametric oscillator at 4-5 µm based on periodically poled LiNbO3," Opt. Lett. **28**(24), 2497-2499 (2003).

[Vodopyanov - 2000] K. L. Vodopyanov, F. Ganikhanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback, and W. Ruderman, "ZnGeP2 optical parametric oscillator with 3.8 - 12.4-µm tunability," Opt. Lett. **25**(11), 841-843 (2000)

[Webber - 2005] M. E. Webber, M. Pushkarsky, and C. K. N. Patel, "Optical detection of chemical warfare agents and toxic industrial chemicals: Simulation", Applied Physics **97**(11) (2005).

[Weibring - 2003] P. Weibring, H. Edner, and S. Svanberg, "Versatile Mobile Lidar System for Environmental Monitoring," Appl. Opt. **42**(18), 3583-3594 (2003).

[Winker - 2004] D. M. Winker, W. H. Hunt, and C. A. Hostetler, "Status and performance of the CALIOP lidar," Proceedings SPIE (2004).

[Young - 2009] S. A. Young and M. A. Vaughan, "The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data: Algorithm Description", J. Atmos. Oceanic Technol. **26**(6), 1105-1119 (2009).

[Yu - 1999] C. S. Yu and A.H. Kung, "Grazing-incidence periodically poled LiNbO3 optical parametric oscillator," J. Opt. Soc. Am. B, **16** - 12, 2233 - 2238 (1999).