



HAL
open science

Utilisation de lasers femtoseconde peigne de fréquences pour des applications de détection simultanée multi-espèces de gaz à distance

Jérémy Oudin

► **To cite this version:**

Jérémy Oudin. Utilisation de lasers femtoseconde peigne de fréquences pour des applications de détection simultanée multi-espèces de gaz à distance. Optique [physics.optics]. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASS055 . tel-03098521

HAL Id: tel-03098521

<https://theses.hal.science/tel-03098521>

Submitted on 5 Jan 2021

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.

Utilisation de lasers
femtoseconde peigne de
fréquences pour des
applications de détection
simultanée multi-espèces de
gaz à distance

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 572, Ecole Doctorale Ondes et Matière
EDOM

Spécialité de doctorat: lasers, molécules, rayonnement
atmosphérique

Unité de recherche: Université Paris-Saclay, ONERA, Physique,
Instrumentation, Environnement, Espace, 92322, Châtillon, France
Réfèrent: : Faculté des sciences d'Orsay

**Thèse présentée et soutenue en visioconférence totale, le
25/05/2020, par**

Jérémy OUDIN

Composition du jury:

Anne Lafosse Professeur des universités, Institut des Sciences Moléculaire d'Orsay	Présidente
Weidong Chen Professeur des universités, Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère	Rapporteur & Examineur
Bertrand Parvite Professeur des universités, Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique	Rapporteur & Examineur
Sandrine Galtier Maître de conférences, Institut Lumière Matière	Examinatrice
Ajmal Khan Mohamed HDR, Office Nationale d'Etudes et Recherches en Aérospatiales	Directeur de thèse
Philippe-Jean Hébert Ingénieur, Centre National d'Etudes Spatiales	Invité

Table des matières

Table des matières	iii
Liste des acronymes	1
Introduction	3
1 Contexte et enjeux de la spectrométrie d'absorption laser à deux peignes de fréquences	5
1.1 Les enjeux de la spectrométrie d'absorption	6
1.1.1 La caractérisation des gaz à effet de serre	6
1.1.2 Physique moléculaire fondamentale	7
1.1.3 Autres applications	7
1.2 Les méthodes de spectrométrie d'absorption	8
1.2.1 Rappel sur la spectrométrie d'absorption et définition de quelques grandeurs	8
1.2.2 Spectrométrie de Fourier	10
1.2.3 Spectroscopie laser	13
1.2.4 Conclusion	15
1.3 Le laser peigne de fréquences	16
1.3.1 Principe	16
1.3.2 Spectroscopie avec un laser peigne de fréquences	19
1.3.3 Autres applications	21
1.3.4 Conclusion	22
1.4 La spectroscopie à deux peignes de fréquences	22
1.4.1 Principe	22
1.4.2 Point de vue temporel	24
1.4.3 Point de vue fréquentiel	27
1.4.4 Avantages de la méthode	27
1.4.5 Choix des paramètres expérimentaux	28
1.5 Conclusion	31
1.6 Références	31
2 Analyse du potentiel et des limitations d'un spectromètre de Fourier à deux peignes de fréquences disponible au laboratoire	39
2.1 Présentation du système et objectifs	40
2.1.1 Description du système	40
2.1.2 Objectifs de mesure lors de cette thèse	43
2.2 Stabilisation des lasers peigne de fréquences	43
2.2.1 Stabilisation des lasers peignes de fréquences et conséquences en DCS	44
2.2.2 Asservissement des fréquences de répétition appliqué à notre système	49

2.2.3	Asservissement des fréquences d'offset appliqué à notre système . . .	52
2.2.4	Conséquences du niveau de stabilisation obtenu	58
2.2.5	Correction post acquisition et moyennage des spectres d'absorption	60
2.3	Protocole de mesure, erreurs et pistes d'amélioration	63
2.3.1	Source d'erreur et quantification sur l'exemple de l'acétylène	63
2.3.2	Protocole de mesure	78
2.3.3	Pistes d'amélioration du système	79
2.4	Mise en pratique du protocole de mesure sur des cellules de gaz	80
2.4.1	Mesure en cellule d'acétylène	80
2.4.2	Mesure en cellule de dioxyde de carbone	84
2.5	Conclusion	86
2.6	Références	87
3	Premiers tests de détection de gaz à effet de serre à courte portée (27m) et moyenne portée (140m)	89
3.1	Etat de l'art	90
3.2	Mesure de la concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré courte portée (27m)	92
3.2.1	Montage expérimental	92
3.2.2	Mesure de la concentration de la vapeur d'eau en contenu intégré courte portée (27 m)	94
3.3	Détection atmosphérique multi-espèces en contenu intégré à moyenne portée (140m)	99
3.3.1	Montage expérimental	99
3.3.2	Mesure de concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré moyenne portée (140m)	100
3.3.3	Détection du dioxyde de carbone	104
3.4	Conclusion	105
3.5	Références	106
4	Mesures Lidar par spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences	107
4.1	Mesures LiDAR IPDA	108
4.1.1	Equation du signal	108
4.1.2	Utilisation d'une cible diffusante	110
4.1.3	Extrapolation mesures longues portées	117
4.2	Mesures résolues spatialement	121
4.2.1	Laser haute cadence et distance d'ambiguïté	122
4.2.2	Utilisation d'un pulse picker	123
4.2.3	Utilisation d'une configuration d'imagerie Scheimpflug	128
4.3	Conclusion	133
4.4	Références	133
5	Conclusion générale	137
A	Annexes	I
A.1	Propagation des impulsions femtosecondes	I
A.1.1	Fibre monomode à maintien de polarisation	I
A.1.2	Coupleur monomode à maintien de polarisation	IV
A.2	Caractérisation des détecteurs	VI
A.2.1	montage expérimental	VI

A.2.2	Saturation	VI
A.2.3	Effets de bords	VII
A.2.4	Réponses fréquentielles	VIII
A.3	Non-linéarité du détecteur	IX
A.4	Mesures dans le domaine visible	IX
A.4.1	Génération d'un peigne de fréquences dans le visible par génération de seconde harmonique	X
A.4.2	Application à la mesure de dioxygène O ₂ en espace libre	XI
A.5	Références	XIII

Liste des acronymes

DCS : Dual Comb Spectroscopy

FC : Frequency Comb

LiDAR : Light Detection And Ranging

IPDA : Integrated Path Differential-Absorption

DiAL : Differential Absorption Lidar

TDLAS : Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy

TF : Transformation de Fourier

BRDF : Bidirectional Reflectance Distribution Function

SHG : Second Harmonic Generation

DFG : Difference Frequency Generation

FTIR : Fourier-Transform InfraRed spectroscopy

PM : (Fibre PM) Polarization Maintaining

ADEV : Allan DEVIation

TOF : Time of Flight

CRDS : Cavity Ring Down Spectroscopy

RF : Radio Fréquences

BP : Bande Passante

PID : Proportionnel Intégral, Dérivé

RSB : Rapport Signal sur Bruit

FWHM : Full Width at Half Maximum

ILS : Instrument Line Shape

Introduction

Motivations scientifiques

Le réchauffement globale de la planète est un fait, la température moyenne a augmenté de $0,85^{\circ}\text{C}$ entre le début d'enregistrement des températures en 1880 et 2012. Un article rédigé par R. Neukom et al démontre que le réchauffement climatique est globale, il s'étend à l'ensemble du globe, 98% de la planète s'est réchauffé après la révolution industrielle. Cela n'est jamais arrivé lors des 2000 dernières années. La mini ère glaciaire médiévale (1300-1850) est un épisode souvent cité pour justifier que le réchauffement climatique actuel est un événement s'inscrivant dans un cycle climatique naturel. Cependant les différentes fluctuations de climat ayant eu lieu ces 2000 dernières années sont le résultat de réchauffement climatique à des échelles régionales. Les causes de ces fluctuations étaient naturelles comme de puissantes éruptions volcaniques par exemple. Il est désormais admis que le changement climatique actuel est dû aux émissions de gaz à effet de serre dont l'émission est principalement causée par les activités humaines. Nous pouvons citer les transports, les résidences, l'industrie, la production d'énergie et l'agriculture comme sources principales de dioxyde de carbone ainsi que les énergies fossiles, les déchets ménagers, l'industrie et encore l'agriculture (élevage et culture du riz), comme sources principales de méthane. C'est pourquoi la connaissance des quantités de gaz à effet de serre ainsi que leur répartition sur l'ensemble du globe est un enjeu majeur pour mieux comprendre et lutter contre le réchauffement climatique.

De nombreux systèmes de mesure existent pour réaliser ce travail, des systèmes au sol (ICOS, SYRTA), ainsi que des systèmes embarqués à bord de satellites (OCO, GOSAT, IASI, MICROCARB, MERLIN), avions ou ballons.

Ces systèmes utilisent la spectrométrie d'absorption pour détecter les gaz, cette méthode permet d'analyser la composition chimique de la matière qu'elle soit solide, liquide ou gazeuse. Cette méthode trouve de nombreuses applications dans beaucoup de domaines de la physique mais aussi dans l'industrie. Différentes méthodes ont été développées ayant différentes caractéristiques : résolution spectrale, temps d'acquisition et couverture spectrale.

L'une des techniques les plus répandue est la spectroscopie par transformation de Fourier. Cette technique voit le jour à la fin des années 1950, elle est basée sur l'utilisation d'un interféromètre de Michelson permettant d'enregistrer des spectres d'absorption sur de larges domaines spectraux. L'invention du laser peigne de fréquences se fait dans les années 1990 et conduit son inventeur T.W Hänsch à recevoir le prix Nobel de physique en 2005. Cette source laser permet de réinventer la spectroscopie par transformation de Fourier grâce à l'utilisation simultanée de deux de ces sources lasers. Cette nouvelle méthode de spectroscopie voit le jour dans les années 2000, elle est nommée en anglais : Dual Comb Spectroscopy (DCS). L'utilisation de ces sources lasers permet d'améliorer les performances de la spectroscopie par transformation de Fourier classique qui jusqu'ici

utilisait des sources de lumière large bande incohérentes.

Dans cette thèse nous utilisons la spectrométrie d'absorption dans le but de réaliser de la détection multi-espèces de gaz à effet de serre à distance en utilisant la spectroscopie par transformation de Fourier à deux peignes de fréquences.

Démarche et plan du manuscrit

Ce travail s'inscrit dans la continuité des travaux de l'ONERA et notamment de l'équipe Source Laser et Métrologie portant sur la détection de gaz à distance pour des applications civiles ou militaires.

L'objectif principal de cette thèse est d'évaluer les performances d'un système de DCS composé de deux lasers femtosecondes à peigne de fréquences (du fournisseur Menlo-Systems) ainsi que de mettre en œuvre des mesures intégrées de concentrations de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Un deuxième objectif consiste à étudier la faisabilité de réaliser des mesures de concentration de gaz résolues spatialement grâce à la rétrodiffusion de la lumière sur des aérosols. Afin de décrire les travaux réalisés pour atteindre cet objectif le manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Le chapitre 1 contextualise le travail de cette thèse en présentant les enjeux de la spectroscopie. Il introduit également le laser peigne de fréquences ainsi que la DCS.
- Le chapitre 2 présente le système DCS disponible au laboratoire. Ces performances sont estimées notamment en réalisant des premières mesures de concentration intégrées en cellule de gaz. Les résultats obtenus nous permettent de mettre au point un protocole de mesure qui sera utilisé dans le chapitre suivant.
- Le chapitre 3 est la mise en œuvre du système pour des mesures de concentrations intégrées de gaz en atmosphère. Tout d'abord à courte portée (27 m) puis à moyenne portée (140 m).
- Le chapitre 4 s'intéresse aux mesures Lidar IPDA et DiAL en utilisant la DCS. Dans une première partie nous estimons les performances en terme de portée pour notre système pour des mesures Lidar IPDA utilisant une cible diffuse. Dans une seconde partie on s'intéresse aux mesures en rétrodiffusion sur les aérosols. Nous décrivons l'incompatibilité des lasers hautes cadences avec la méthode classique de localisation des impulsions par leur temps de vol. Deux solutions sont proposées pour contourner cette difficulté.

Chapitre 1

Contexte et enjeux de la spectrométrie d'absorption laser à deux peignes de fréquences

Sommaire

1.1 Les enjeux de la spectrométrie d'absorption	6
1.1.1 La caractérisation des gaz à effet de serre	6
1.1.2 Physique moléculaire fondamentale	7
1.1.3 Autres applications	7
1.2 Les méthodes de spectrométrie d'absorption	8
1.2.1 Rappel sur la spectrométrie d'absorption et définition de quelques grandeurs	8
1.2.2 Spectrométrie de Fourier	10
1.2.3 Spectroscopie laser	13
1.2.4 Conclusion	15
1.3 Le laser peigne de fréquences	16
1.3.1 Principe	16
1.3.2 Spectroscopie avec un laser peigne de fréquences	19
1.3.3 Autres applications	21
1.3.4 Conclusion	22
1.4 La spectroscopie à deux peignes de fréquences	22
1.4.1 Principe	22
1.4.2 Point de vue temporel	24
1.4.3 Point de vue fréquentiel	27
1.4.4 Avantages de la méthode	27
1.4.5 Choix des paramètres expérimentaux	28
1.5 Conclusion	31
1.6 Références	31

L'objectif de ce chapitre est de présenter les enjeux de la spectroscopie ainsi que ses applications dans différents domaines. De rappeler différentes méthodes de spectrométrie d'absorption ainsi que leurs avantages et limitations pour introduire le peigne de fréquences et l'intérêt de la spectroscopie laser à deux peignes de fréquences.

1.1 Les enjeux de la spectrométrie d'absorption

La spectroscopie permet l'étude des interactions entre la lumière et la matière. Elle joue un rôle important dans la caractérisation et la compréhension de phénomènes physiques et chimiques. Dans cette partie nous citons quelques applications dans lesquelles la spectrométrie d'absorption joue un rôle essentiel.

1.1.1 La caractérisation des gaz à effet de serre

De nos jours la caractérisation des gaz à effet de serre (telle que CO_2 , CH_4 , les NO_x) à l'échelle planétaire est un enjeu majeur. Identifier les sources et puits de ces diverses espèces chimiques à l'aide d'instruments de grande précision est aujourd'hui l'objet d'études approfondies. Le développement d'instruments spectroscopiques de large couverture spectrale, précis et sensibles est ainsi nécessaire. Des réseaux d'observations basés sur des détecteurs ponctuels commerciaux tel qu'ICOS [ICO] sont d'ores et déjà existants. Des missions spatiales sont existantes (OCO [Crisp et collab., 2004], GOSAT [Yoshida et collab., 2019], IASI [Hilton et collab., 2012]) et d'autres sont à venir ayant pour objectif de caractériser des gaz à effet de serre. La mission MicroCarb dont le lancement de l'instrument est prévu pour 2021 a pour objectif scientifique le suivi et la caractérisation des flux de CO_2 à la surface de notre planète. Les échanges entre les sources et les puits constitués par l'atmosphère, l'océan, les sols et la végétation seront étudiés [Pasternak et collab., 2017]. Le dioxyde de carbone étant le gaz à effet de serre présent en plus grande quantité à l'échelle mondiale, ces données ont un triple intérêt. Premièrement une meilleure connaissance des flux de carbone est nécessaire pour améliorer la connaissance des mécanismes d'échange au niveau des sources et des puits ainsi que leur évolution en réaction au changement climatique. Deuxièmement il est nécessaire d'identifier les paramètres qui contrôlent les échanges de carbone. Et, enfin, elles permettront de valider et améliorer les modèles du cycle de vie du carbone afin de prévoir son évolution en fonction des scénarios climatiques envisageables. Pour ce faire, la mesure de concentration en CO_2 sera réalisée en récoltant la lumière du soleil réfléchi à la surface de la Terre à l'aide d'un télescope. La lumière récoltée sera envoyée sur un spectromètre à réseau dispersif afin d'exploiter les raies d'absorption du CO_2 présentes dans le proche infrarouge autour de 1,6 μm et 2,0 μm .

La mission spatiale MERLIN à venir pour 2024 a pour objectif de mesurer avec une grande précision la distribution spatiale et temporelle de la concentration de méthane à l'échelle de la planète [Pierangelo et collab., 2016]. Le méthane est considéré comme le second gaz à effet de serre. Son potentiel de réchauffement global lui confère à quantité égale un impact sur le réchauffement climatique plus important que le dioxyde de carbone. Les mesures dont nous disposons sur le méthane ne sont que partielles. Le lidar embarqué à bord de MERLIN doit permettre de mieux mesurer la contribution du méthane au réchauffement climatique.

Par ailleurs, afin de garantir la qualité des mesures, il est nécessaire d'étudier en laboratoire de manière très précise les profils des transitions moléculaires. Des données expé-

riminales de grandes précisions permettraient d'envisager une caractérisation très fine des profils spectraux. Des approches de spectroscopie laser et de spectroscopie de Fourier sont utilisées pour caractériser les transitions moléculaires. La volonté d'étudier des effets de plus en plus fins nécessite des approches de spectroscopie toujours plus précises et plus sensibles [Boulet, 2004].

1.1.2 Physique moléculaire fondamentale

D'un point de vue fondamental la spectroscopie moléculaire a pour objectif d'étudier les fonctions d'onde et les niveaux énergétiques des molécules. L'analyse des raies d'absorption permet d'améliorer les connaissances sur les structures géométriques des molécules. Elle permet ainsi d'améliorer, de valider ou réfuter les modèles théoriques existants [Ding et collab., 2003]. Le postulat de symétrisation qui permet de décrire la fonction d'onde d'un système composé de plusieurs particules identiques est à l'origine des règles de sélections qui définissent les transitions optiques autorisées [Cohen-Tannoudji et collab., 2018]. L'observation d'une transition optique non autorisée violerait le postulat de symétrisation [De Angelis et collab., 1996]. La spectroscopie moléculaire ultrasensible apparaît donc comme le bon outil pour la réalisation de ces tests fondamentaux. Certaines constantes fondamentales peuvent être déterminées avec précision grâce à des mesures spectroscopiques. C'est le cas de la constante de Boltzmann k_B qui est reliée à la largeur à mi-hauteur d'une raie d'absorption moléculaire dont la largeur est principalement due à l'effet Doppler :

$$\Delta\nu_{doppler} = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2k_B T N_A \ln 2}{M_{mol}}} \quad (1.1)$$

où ν_0 est la fréquence de la transition considérée, c est la célérité de la lumière dans le vide, T la température du milieu, M_{mol} la masse molaire de la molécule et N_A le nombre d'Avogadro. La mesure d'une largeur de raie à température connue permet donc en théorie de remonter à la constante de Boltzmann [Siegmán, 1986]. Cependant le profil de la raie est influencé par d'autres effets tels que l'élargissement naturel de la transition et l'élargissement collisionnel, ainsi que l'éventuelle déformation due à l'instrument de mesure utilisé.

Par ailleurs, la constitution de banques de données spectroscopiques est un enjeu important. Ces banques s'avèrent très utiles car elles peuvent ensuite être utilisées dans différentes applications afin d'interpréter les observations. Pour être le plus utilisable possible ces données doivent être précises, couvrir un grand nombre d'espèces et le plus grand domaine spectrale possible.

1.1.3 Autres applications

Dans le domaine de la sécurité, la spectrométrie d'absorption peut être utilisée pour détecter des gaz dangereux comme des agents biologiques [Moore, 2004], [Armougom et collab., 2018], des gaz explosifs ou diagnostiquer une fuite de gaz. Dans l'industrie, des contrôles de la qualité des aliments sont réalisés. L'avantage de la spectroscopie est d'être une méthode non destructive. Par exemple des mesures de la quantité de sucre, la fermeté et l'acidité des fruits peuvent être réalisées [Camps et collab., 2008]. Ces applications profitent du développement des sources laser sensibles comme les oscillateurs paramétriques optiques [Todd et collab., 2002], et des lasers à cascades quantique [Waechter et collab., 2008] et des diodes laser. Cependant ces sources laser restreignent le domaine

spectral qu'il est possible de sonder et donc le nombre d'espèces moléculaires différentes à détecter en une seule acquisition. Dans le domaine médical, certaines maladies provoquent chez le patient atteint la présence de molécules spécifiques dans l'air qu'il expire. Plus de mille biomarqueurs différents en faible quantité sont contenus dans cet air expiré. L'analyse de cet air constituerait un diagnostic rapide et non invasif. Mais les méthodes sensibles utilisées aujourd'hui sont en général dédiées à la détection d'une seule espèce moléculaire, elles ne sont donc pas efficaces pour ce type d'application. De nouveaux outils sont nécessaires, devant permettre la détection simultanée de différentes molécules à l'état de traces sur un large domaine spectral.

1.2 Les méthodes de spectrométrie d'absorption

Le nombre d'applications fondamentales et techniques utilisant la spectrométrie d'absorption ne cesse d'augmenter. Les instruments actuels basés sur les lasers accordables ou la spectroscopie de Fourier permettent de répondre à de nombreux besoins, néanmoins les attentes actuelles sont de plus en plus exigeantes. Cette partie a pour but de rappeler les différentes méthodes existantes ainsi que leurs avantages et leurs limitations.

1.2.1 Rappel sur la spectrométrie d'absorption et définition de quelques grandeurs

Nous commençons par rappeler quelques notions de spectroscopie qui seront utilisées dans la suite du manuscrit. La spectroscopie d'absorption, régie par la loi de Beer-Lambert, peut être définie comme l'étude de l'interaction entre la lumière et le milieu dans lequel elle est transmise. Cette loi énonce que l'intensité transmise par un milieu absorbant décroît de façon exponentielle avec le produit de l'épaisseur traversée et du coefficient d'absorption :

$$I_t(\nu) = I_i(\nu)e^{-\alpha(\nu)L} \quad (1.2)$$

Où $I_i(\nu)$ est l'intensité incidente à la fréquence ν et $I_t(\nu)$ l'intensité transmise à la fréquence ν par le milieu d'épaisseur L et de coefficient linéique d'absorption $\alpha(\nu)$ à la fréquence ν .

La sensibilité

On appelle communément la sensibilité, le plus petit coefficient d'absorption détectable α_{min} . Si celui-ci est petit, alors la loi de Beer-Lambert peut se réécrire en effectuant un développement de Taylor au premier ordre :

$$I_t(\nu) \approx I_i(\nu)(1 - \alpha_{min}(\nu)L) \quad (1.3)$$

$$\alpha_{min}(\nu) \approx \frac{I_i(\nu) - I_t(\nu)}{I_i(\nu)} \times \frac{1}{L} \quad (1.4)$$

Dans le cas où l'on désire connaître le plus petit signal d'absorption détecté, cela signifie que l'intensité absorbée $I_a(\nu) = I_i(\nu) - I_t(\nu)$ est d'amplitude comparable au bruit. Le signal lui est d'intensité comparable à $I_i(\nu)$. On en déduit l'expression approchée de la sensibilité :

$$\alpha_{min}(\nu) \approx \frac{1}{RSB \times L} \quad (1.5)$$

Avec RSB le rapport signal sur bruit du spectre mesuré. La sensibilité est généralement donnée en cm^{-1} , plus sa valeur est faible meilleure est la sensibilité. Deux solutions existent pour améliorer la sensibilité. Augmenter la longueur d'interaction L sans dégrader le RSB ou bien minimiser le bruit afin d'augmenter le RSB.

Noise equivalent absorption (NEA)

Se définit comme le plus petit coefficient d'absorption qu'il est possible de détecter, pour une seconde de temps d'intégration et par élément spectral.

$$NEA = \alpha_{min} \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (1.6)$$

Avec T le temps d'intégration de la mesure et M le nombre d'éléments spectraux enregistrés. M correspond à la largeur du spectre acquis divisée par la résolution spectrale. Le NEA s'exprime généralement en $cm^{-1}Hz^{-1/2}$ et permet de rendre compte de la sensibilité atteinte pour un temps de mesure donné. En revanche le NEA ne permet pas de distinguer des techniques aux caractéristiques différentes comme une technique peu sensible mais enregistrant un grand nombre d'éléments spectraux et une technique plus sensible mais enregistrant peu d'éléments spectraux. Il n'y a donc pas de critère universel pour comparer les différentes techniques entre elles.

Le domaine spectral

Il représente l'étendue spectrale d'une mesure spectroscopique. Le domaine spectrale est en général limité par l'étendue spectrale de la source laser utilisée ou bien par la réponse du détecteur si celui ci est le facteur limitant.

Fonction d'appareil

La fonction d'appareil d'un spectromètre à transformation de Fourier trouve son origine dans la définition de l'autocorrélation du champ électrique. Cette autocorrélation définie comme une intégrale sur le domaine réel \mathbf{R} ne peut être réalisée. La plage de variation du délai temporel que l'on introduit est limitée ce qui revient à intégrer non pas sur \mathbf{R} mais sur des bornes finies. Dans le domaine de Fourier ces bornes finies engendre une convolution du spectre et de la fonction d'appareil. La conséquence de cette convolution est la déformation du spectre réel par le spectromètre. La fonction d'appareil est principalement caractérisée par sa largeur à mi-hauteur. Plus la fonction d'appareil est large plus le spectre sera déformé par la convolution.

Limite de résolution instrumentale

$\delta_{instrument}$ est la largeur à mi hauteur de la fonction d'appareil de l'instrument utilisé. Cette grandeur s'exprime en Hz ou cm^{-1} .

Limite de résolution spectrale

δ_v la limite de résolution spectrale correspond à la distance séparant deux éléments spectraux distincts d'un spectre. Cette limite résulte du produit de convolution entre la fonction d'appareil de l'instrument de mesure avec les raies spectrales de l'échantillon étudié. La limite de résolution spectrale est limitée par la limite de résolution instrumentale.

1.2.2 Spectrométrie de Fourier

La spectroscopie par transformation de Fourier se base sur les travaux de Peter Felgett et Pierre Jacquinot au début des années 1950. Ils ont mis en évidence les avantages de la spectroscopie multiplexe en utilisant un interféromètre de Michelson plutôt qu'un réseau dispersif. A la fin des années 1950, Janine Connes cherchant un instrument de spectroscopie afin d'accéder au domaine infrarouge apporte une contribution décisive à la spectroscopie de Fourier. Elle réalise la première étude détaillée de la méthode [Connes, 1961]. La spectroscopie de Fourier permet une analyse simultanée d'une couverture spectrale large avec des temps de mesures allant de quelques secondes à plusieurs heures pour une limite de résolution allant de quelques dizaines de GHz à quelques dizaines de MHz. Grâce à ses caractéristiques, la spectroscopie par transformation de Fourier a révolutionné l'instrumentation scientifique. Les premiers instruments commerciaux sont apparus au cours des années 1970. Étant robustes, simples d'utilisation et proposés par plusieurs compagnies industrielles, ils demeurent aujourd'hui encore parmi les outils les plus utilisés pour l'étude de spectres d'absorption dans le domaine infrarouge.

Principe

La spectroscopie par transformation de Fourier repose sur le principe de démultiplication des fréquences optiques vers un domaine plus basse fréquence. Le but est d'envoyer les fréquences optiques vers un domaine de fréquences où celles ci seront mesurables à l'aide d'une photodiode. Son fonctionnement simple en fait un outil simple d'utilisation. Le faisceau provenant de la source lumineuse est divisé en deux parties à l'aide d'une lame séparatrice comme illustré sur la figure 1.1. La partie réfléchi est envoyée sur un miroir fixe et la partie transmise de l'onde incidente est réfléchi sur un miroir mobile se déplaçant à la vitesse ν_M . La partie transmise et réfléchi parcourent des chemins optiques différents. Le bras mobile de l'interféromètre introduit alors un déphasage ré-

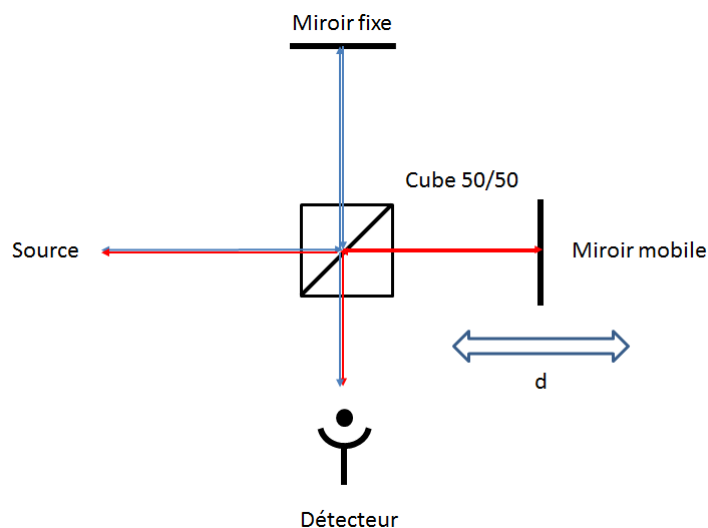


FIGURE 1.1 – Schéma de principe d'un spectromètre par transformation de Fourier basé sur l'interféromètre de Michelson : Le faisceau collimaté issu de la source de lumière est séparé en deux parts égales par le cube séparateur 50%/50%. La lumière est ensuite réfléchi par chacun des deux bras de l'interféromètre par un miroir fixe et par un miroir mobile introduisant une différence de marche. Les deux faisceaux sont ensuite recombinés sur le détecteur qui enregistre le signal interférométrique.

sultant de la différence de marche entre les deux bras. Les deux faisceaux sont ensuite recombinaés et interfèrent sur le détecteur. L'étude du signal interférométrique permet de déterminer les caractéristiques spectrales du rayonnement incident. Pour expliquer son fonctionnement on considère une onde plane monochromatique de fréquence ν envoyée dans l'interféromètre. Son champ électrique s'écrit :

$$E(t) = \frac{A_\nu}{2} (e^{i2\pi\nu t} + e^{-i2\pi\nu t}) \quad (1.7)$$

$$E(t) = A_\nu \cos(2\pi\nu t) \quad (1.8)$$

Où A_ν représente l'amplitude spectrale de l'onde à la fréquence ν . L'onde passée par le bras fixe arrivant sur le détecteur a acquis un déphasage lié à la longueur optique d_{fixe} parcourue. Le champs électrique s'écrit :

$$E_{fixe}(t) = \frac{A_\nu}{2} \cos[2\pi(\nu t - \frac{\nu d_{fixe}}{c})] \quad (1.9)$$

L'onde passée par le bras mobile et arrivant sur le détecteur acquiert quant à elle un déphasage supplémentaire lié à la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre notée Δ . Le champ électrique s'écrit [Smith, 2011] :

$$E_{mobile} = \frac{A_\nu}{2} \cos[2\pi(\nu t - \frac{\nu \times (\Delta + d_{fixe})}{c})] \quad (1.10)$$

La différence de marche Δ peut être exprimée en fonction de la vitesse de déplacement du miroir mobile :

$$\Delta = 2\nu_M t \quad (1.11)$$

Les deux faisceaux se recombinaent après leur retour sur le cube 50/50 puis arrivent sur le détecteur qui mesure l'intensité résultante du battement des deux champs électriques :

$$I(t) \propto |E_{mobile}(t) + E_{fixe}(t)|^2 \quad (1.12)$$

$$I(t) \propto A_\nu^2 (1 + \cos[2\pi \frac{\nu 2\nu_M t}{c}]) \quad (1.13)$$

On mesure en effet à la sortie de l'interféromètre une nouvelle onde de fréquence ν_f (non optique). Cette onde résulte du battement entre l'onde de fréquence ν réfléchiée par le miroir fixe, et l'onde réfléchiée par le miroir mobile dont la phase est modifiée par la différence de marche Δ . Le passage de l'onde de fréquence ν en entrée d'interféromètre vers l'onde de fréquence ν_f en sortie d'interférogramme est appelé démultiplication de fréquence. Le facteur de conversion vaut $\frac{2\nu_M}{c}$. Cette expression peut être généralisée à un continuum de densité spectrale d'énergie $B(\nu)$:

$$I(t) \propto \int_0^\infty B(\nu) (1 + \cos[2\pi \frac{\nu 2\nu_M t}{c}]) d\nu \quad (1.14)$$

Ce signal est composé d'une partie constante :

$$I_0 \propto \int_0^\infty B(\nu) d\nu \quad (1.15)$$

et une partie modulée :

$$I'(t) \propto \int_0^\infty B(\nu) \cos[2\pi \frac{\nu 2\nu_M t}{c}] d\nu \quad (1.16)$$

C'est cette partie modulée qui contient les informations spectroscopiques de la source, elle est nommée interférogramme. Son analyse spectrale passe par la transformation de Fourier d'où le nom donné à cette méthode :

$$B(\nu) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I'(t) \cos\left[2\pi \frac{\nu 2\nu_M t}{c}\right] dt \quad (1.17)$$

Cependant on rappelle que $2\nu_M t$ correspond à la différence de marche Δ introduite par le miroir mobile. Cette équation ne prend pas en compte le fait que la course du miroir mobile est limitée de quelques centimètres à plusieurs mètres pour les instruments les plus résolus. Cette limite impose les bornes de l'intégrale de la transformation de Fourier. Cette limitation revient à multiplier cet interférogramme s'étalant à l'infini par une fonction porte de largeur t_{max} correspondant au temps de mesure maximal. $I(t)$ se réécrit :

$$I(t) \propto \prod\left(\frac{t}{t_{max}}\right) \int_0^{\infty} \frac{B(\nu)}{2} (1 + \cos[2\pi \frac{\nu 2\nu_M t}{c}]) d\nu \quad (1.18)$$

Avec $\prod\left(\frac{t}{t_{max}}\right) = 1$ si $-t_{max} \leq t \leq t_{max}$ et $\prod\left(\frac{t}{t_{max}}\right) = 0$ si $|t| > t_{max}$

Expérimentalement les spectres observés résultent de la transformation de Fourier de ce type d'interférogramme. Dans le domaine spectrale cette fonction porte va modifier le spectre de la source. Le spectre observé correspond au spectre de la source convolué par la transformation de Fourier de la fonction porte. La transformation de Fourier de la fonction porte étant un sinus cardinal le spectre observé $B'(\nu)$ s'écrit en fonction du spectre $B(\nu)$ de la source :

$$B'(\nu) = B(\nu) * F_{appareil}(\nu) \quad (1.19)$$

$$B'(\nu) \propto 2t_{max} \int_{-\infty}^{+\infty} B(\nu') \text{sinc}[2\pi(\nu - \nu')t_{max}] d\nu' \quad (1.20)$$

Avec la transformation de Fourier de la fonction porte $F_{appareil}(\nu)$ qui correspond à la fonction d'appareil du spectromètre. En pratique la fonction d'appareil de l'interférogramme regroupe également d'autres effets de nature instrumentale comme les variations d'intensité et d'étendue du faisceau au cours du déplacement du miroir mobile. Cette fonction d'appareil limite la résolution spectrale de l'interféromètre. En principe la largeur à mi hauteur de cette fonction d'appareil décroît avec la longueur de course du miroir mobile qui augmente.

Avantages de cette méthode

Cette technique de spectroscopie s'est rapidement développée grâce à ses quatre avantages.

Le premier est la largeur du domaine spectral d'analyse simultanée enregistré avec un seul détecteur. Cet avantage est connu sous le nom d'avantage multiplex ou de Fellgett [Fellgett, 1958], [Loewenstein, 1966]. Si l'on compare un spectre obtenu grâce à l'interféromètre de Fourier avec un spectre obtenu avec un spectromètre dispersif comportant chacun M éléments spectraux. Cet avantage permet une augmentation du RSB d'un facteur \sqrt{M} si le principal apport de bruit est celui de la chaîne de détection. Prenons le cas d'une acquisition de durée T . Dans le cas du spectromètre de Fourier, le signal va croître proportionnellement à T et le bruit de détection proportionnellement à \sqrt{T} , le RSB sera alors proportionnel à \sqrt{T} . Dans le cas du monochromateur, chacun des M éléments spectraux est enregistré pendant un temps T/M et donc observé avec un RSB proportionnel à

$\sqrt{T/M}$. On a donc bien pour le spectromètre de Fourier un gain du RSB de \sqrt{M} par rapport aux spectromètres dispersifs. Cela revient à dire que pour enregistrer un spectre avec le même RSB, le spectromètre dispersif utilisant un seul détecteur nécessitera M fois plus de temps que le spectromètre de Fourier. Dans un spectromètre de Fourier toutes les fréquences de la lumière sont observées en même temps. Cependant il existe également des barrettes CCD permettant d'enregistrer les M éléments spectraux en même temps mais les bandes passantes disponibles sont plus faibles que pour une photodiode PIN.

Le second avantage appelé avantage de Jacquinot est celui de l'étendue géométrique. A limite de résolution identique, le spectromètre de Fourier possède une pupille d'entrée de surface plus grande que les spectromètres dispersifs utilisant une fente. Pour des flux identiques, le spectromètre de Fourier récolte donc une quantité de lumière plus importante ce qui apporte une réduction du temps de mesure de un ou deux ordres de grandeurs.

Le troisième avantage est la limite de résolution atteignable. Elle dépend de la différence de marche introduite entre les deux bras de l'interféromètre. Pour les instruments les plus performants, cette différence de marche peut aller jusqu'à plusieurs mètres permettant d'obtenir une limite de résolution de quelques dizaines de MHz [Guelachvili, 1977]. Elle peut être jusqu'à 1000 fois supérieure à la résolution qu'il est possible d'obtenir avec un spectromètre dispersif.

Le quatrième et dernier avantage est sa précision spectrale. Le spectromètre donne un étalonnage uniforme de l'échelle des nombres d'onde car l'ensemble du domaine spectral est enregistré simultanément.

Les limites

Les limitations de cette méthode proviennent de l'interféromètre de Michelson et des sources incohérentes.

En raison de la différence de marche limitée par l'encombrement, la résolution de l'instrument est limitée. Pour les instruments les plus résolus, la différence de marche représente un encombrement conséquent et nécessite une conception mécanique très précise. L'utilisation des sources incohérentes limite la sensibilité de l'interféromètre en raison de leur faible luminance spectrale. Atteindre un NEA de l'ordre de $10^{-6} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-1/2}$ avec une résolution de l'ordre de la centaine de MHz nécessite des temps d'acquisition qui peuvent aller jusqu'à une dizaine d'heures, ce qui en fait un instrument mal adapté à l'observation de phénomènes rapides.

1.2.3 Spectroscopie laser

Principe

Avec l'apparition du laser dans les années 1960, de nouvelles méthodes de diagnostic optique extrêmement sensibles ont émergé. Le principe de la spectroscopie laser est plus simple que la spectroscopie de Fourier. Il s'agit de balayer la longueur d'onde du laser le long d'une ou plusieurs transitions. L'utilisation d'une source de lumière cohérente permet d'obtenir une très bonne sensibilité qui peut être meilleure que par la spectroscopie de Fourier mais bien souvent sur un domaine spectral plus réduit, en jouant sur différents paramètres.

Augmentation de la longueur d'interaction

Comme cela a été évoqué en début de section, un des moyens permettant d'augmenter la sensibilité d'une mesure spectrométrique est d'allonger la longueur d'interaction entre le faisceau et l'échantillon. L'utilisation d'une cellule multi-passages permet d'augmenter simplement la longueur d'interaction. Différents types de cellules existent, les plus connues sont la cellule de White [White, 1942] et la cellule de Herriott [Herriott et Schulte, 1965]. Déjà utilisées avec la spectroscopie de Fourier, ces cellules permettent de passer d'une longueur d'interaction de quelques centimètres au kilomètre [Courtois, 2009]. A partir de cette idée la Spectroscopie Intra-Cavité Laser (ICLAS) est apparue [Baev et collab., 1999]. Cette méthode consiste à placer la cellule de gaz à l'intérieur de la cavité laser et d'observer le spectre d'absorption en sortie comme représenté sur la figure 1.2. L'ICLAS permet d'atteindre de très grandes longueurs effectives, jusqu'à 70000 km [Sierks

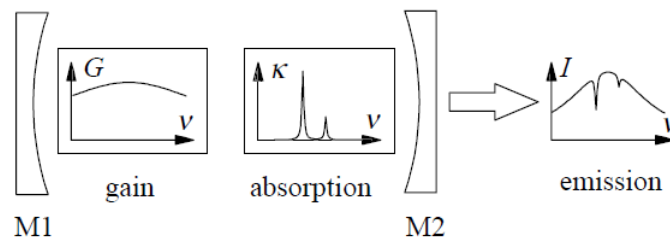


FIGURE 1.2 – Schéma de principe de la méthode ICLAS issu de [Baev et collab., 1999] : Le milieu absorbant étudié est placé à l'intérieur de la cavité laser. Le spectre d'absorption est obtenu en sortie de cavité.

et collab., 1996] car le milieu amplificateur permet d'augmenter le temps de vie de la cavité en compensant une partie des pertes dues aux réflexions sur les miroirs de la cavité. L'utilisation d'un milieu amplificateur ayant un large spectre d'émission permet de sonder simultanément plusieurs centaines de cm^{-1} .

Une autre méthode appelée Cavity RingDown Spectroscopy (CRDS) utilisée à l'ONERA lors de thèses précédentes [Debecker, 2006], [Courtois, 2009] consiste à envoyer une impulsion lumineuse dans une cavité de haute finesse contenant un échantillon absorbant et de mesurer le temps de décroissance de l'intensité lumineuse en sortie comme représenté sur la figure 1.3. Il faut ensuite répéter l'opération mais cette fois ci à vide sans l'échantillon absorbant dans la cavité laser ou le faire à une longueur d'onde non absorbée par le gaz. Dans ce cas la décroissance de l'intensité lumineuse est due aux pertes sur les miroirs. Dans le cas où l'échantillon est placé dans la cavité, la décroissance est due non seulement aux pertes sur les miroirs mais également à l'échantillon. Le coefficient d'absorption de l'échantillon absorbant est obtenu en comparant les temps de décroissance des deux expériences. La longueur effective d'interaction entre le faisceau laser et l'absorbant est proportionnelle à la finesse de la cavité. La CRDS nécessite un montage expérimental compliqué, l'alignement optique doit être précis et la vitesse de l'électronique doit être rapide notamment. Néanmoins cette technique permet d'atteindre des NEA de l'ordre de $10^{-12} cm^{-1} Hz^{-1/2}$ [Spence et collab., 2000].

La Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy (CEAS) consiste également à utiliser une cavité de haute finesse. Dans cette expérience plus simple à mettre en œuvre, on ne mesure plus le temps de décroissance mais la transmission de la cavité contenant l'absorbant [Peeters et collab., 2000]. Combiné à une diode laser la CEAS est une solution idéale pour construire un spectromètre compact et robuste. Un NEA de l'ordre de $3.10^{-11} cm^{-1} Hz^{-1/2}$ a pu être atteint [Baer et collab., 2002].

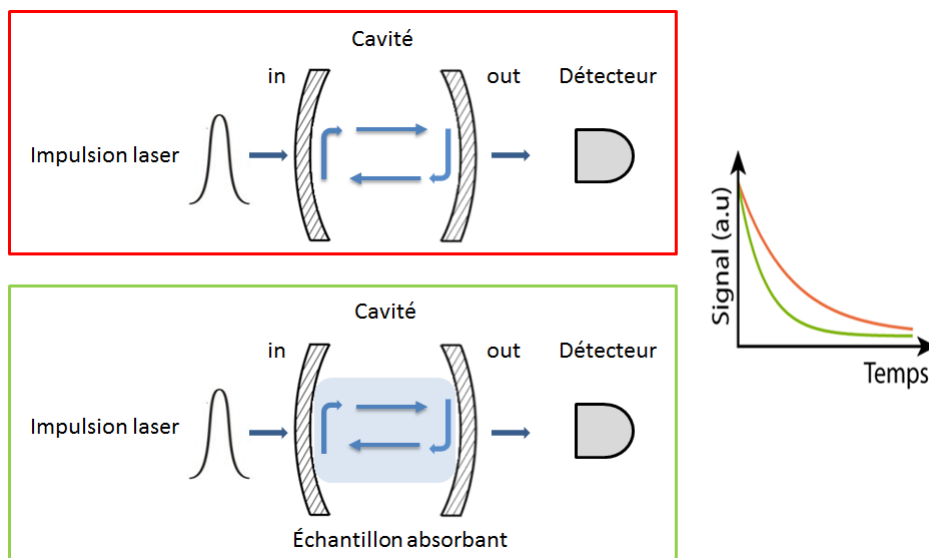


FIGURE 1.3 – Schéma de principe de la méthode d'une mesure de CRDS : Une impulsion laser est envoyée dans une cavité de haute finesse. Le temps de décroissance de l'intensité lumineuse en sortie est mesurée. Courbe de décroissance rouge : cavité à vide. Courbe de décroissance verte : la cavité contient l'échantillon absorbant.

Une autre méthode en cours d'évaluation à l'ONERA est la photo-acoustique, consistant à mesurer les ondes sonores émises par désexcitation des molécules après absorption [Aoust, 2016].

Avantages

Ces techniques de spectroscopie laser ont pour avantage d'avoir un bon NEA et l'absence de parties mobiles rend leur conception moins contraignante. L'utilisation de diodes laser rend notamment la méthode CEAS peu encombrante comparativement à un spectromètre de Fourier mais également peu coûteuse. La limite de résolution de spectromètres laser dépend de la source utilisée mais atteint couramment quelques MHz.

Les limites

Le principal inconvénient des méthodes évoquées est qu'elles dépendent de la disponibilité des sources lasers accordables et de leur plage de balayage spectral. Les méthodes sensibles sont en général inaptes à balayer de grands domaines spectraux et donc à sonder plusieurs espèces chimiques simultanément. La principale limite de la CRDS est la détection multi-espèces. De plus la mesure CRDS se fait en deux temps, avec une mesure contenant l'échantillon absorbant et une mesure à vide ou bien une mesure à une longueur d'onde non absorbée par le gaz. Cela laisse le temps au système de dériver, ce qui entraînera une détérioration du résultat final. La CEAS ne nécessite pas de mesure de référence mais cela la rend plus sensible aux fluctuations d'intensité de la source laser, ce qui peut détériorer le résultat.

1.2.4 Conclusion

Les enjeux actuel de la spectroscopie nécessitent de nouveaux instruments combinant les avantages de la spectroscopie de Fourier et de la spectroscopie laser. Afin de

répondre de manière satisfaisante à ces enjeux, ces nouveaux instruments doivent permettre des mesures rapides sur de grands domaines spectraux, avec une grande sensibilité et avec une excellente résolution.

1.3 Le laser peigne de fréquences

Dans cette section, nous allons décrire les peignes de fréquence ainsi que différentes façons de les générer. Nous terminerons en présentant les avantages et les limitations de la spectroscopie avec ce type de laser.

1.3.1 Principe

Inventés à la fin des années 1990, les peignes de fréquences ont permis de révolutionner les mesures précises de temps et de fréquence. Ces lasers issus des modes verrouillés en phase d'une cavité laser produisent un spectre présentant une structure de peigne. Des millions de dents correspondants aux modes de la cavité laser composent ce peigne.

Description temporelle

Les caractéristiques d'un laser peigne de fréquences dans le domaine temporel sont illustrés sur la figure 1.4. Ce peigne de fréquences est obtenu en utilisant un milieu ampli-

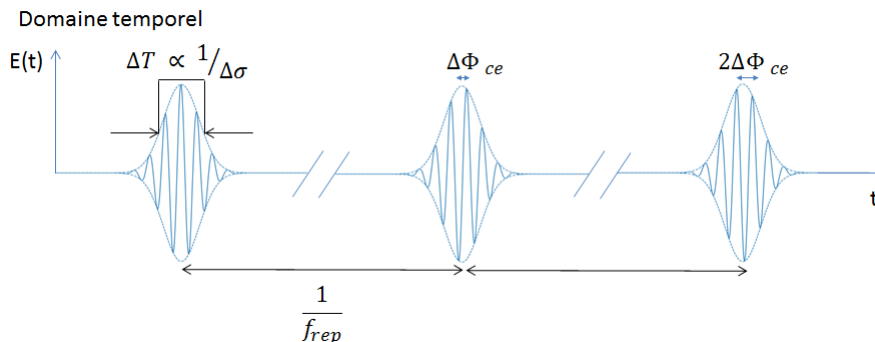


FIGURE 1.4 – Représentation temporelle du laser peigne de fréquences. La largeur temporelle de l'impulsion ΔT est inversement proportionnelle à la largeur spectrale de laser $\Delta\sigma$. La période d'émission des impulsions est inversement proportionnelle à f_{rep} . La différence de phase entre la porteuse et l'enveloppe est incrémentée d'une valeur constante $\Delta\Phi_{ce}$

ficateur avec une large bande spectrale d'émission. Cette large bande spectrale recouvre un grand nombre de modes longitudinaux de la cavité laser. Initialement, c'est à dire sans blocage des modes chacun d'eux oscille indépendamment sans relation de phase entre eux. La phase du champ électrique de chaque mode peut varier de façon aléatoire à cause par exemple des fluctuations thermiques ce qui conduit à une intensité en sortie de laser aléatoire ou quasiment constante. C'est grâce à la mise en phase de ces modes par que l'on appelle le blocage de modes que le peigne de fréquence est créé. Le blocage de mode consiste à fixer leur relation de phase. Les modes du laser interfèrent alors constructivement de manière périodique ce qui produit d'intenses impulsions lumineuses. La figure 1.5 montre 20 champs électriques oscillant à des fréquences différentes représentant les modes longitudinaux d'une cavité. La relation de phase fixe entre ces modes au cours du temps génère des impulsions brèves, intenses et régulières.

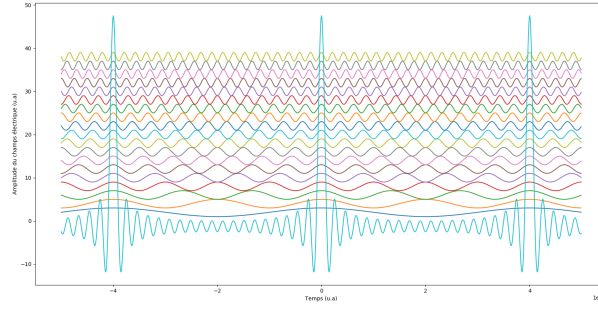


FIGURE 1.5 – Modes possédant une relation de phase fixe au cours du temps. Le champ électrique résultant forme des impulsions brèves, intenses et régulières.

On différencie les méthodes de verrouillage en phase des modes dites actives où on contrôle des modulations du gain ou des pertes par le biais d'un signal externe, et les méthodes dites passives où aucun signal externe n'est utilisé mais où l'on place un élément dans la cavité laser qui induira des modulations des pertes, par exemple un absorbant saturable [Keller, 1994]. Toutes les ondes de fréquences différentes, qui correspondent aux différents modes voient leur phase imposée à une valeur ϕ_0 et s'additionnent constructivement en un point, conduisant à une impulsion lumineuse intense et courte de la lumière [Diels et Rudolph, 2006]. La fréquence d'émission f_{rep} de ces impulsions courtes et intenses est définie par la longueur de la cavité laser $f_{rep} = \frac{c}{2l}$, avec c la célérité de la lumière et l la longueur de la cavité laser. Le milieu amplificateur étant dispersif, le champ électrique accumule une phase temporelle due à la différence entre la vitesse de phase v_ϕ et la vitesse de groupe v_g . Cela se traduit par un déphasage pulse à pulse de la porteuse par rapport à l'enveloppe, qui s'écrit [Ye et Cundiff, 2005] :

$$\Delta\Phi_{ce} = \left(\frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_\phi}\right)2\pi\nu_p \quad (1.21)$$

Où ν_p est la fréquence de la porteuse du champ électrique. Le champ du peigne de fréquences s'écrit comme la somme des champs électriques de chaque mode n de la cavité laser, en tenant compte du déphasage pulse à pulse $\Delta\Phi_{ce}$:

$$E(t) = \sum_{n=0}^{+\infty} A\left(t - \frac{n}{f_{rep}}\right) \exp\left(i\left[2\pi\nu_p t - n\left(2\pi\nu_p \frac{1}{f_{rep}} - \Delta\Phi_{ce}\right)\right]\right) \quad (1.22)$$

Un peigne de fréquences femtoseconde se distingue ainsi des autres sources lasers femtosecondes par sa cadence d'émission f_{rep} et son déphasage porteuse-enveloppe $\Delta\Phi_{ce}$ qui demeurent constants au cours du temps. Une source ayant ces caractéristiques temporelles se représente fréquentiellement comme une série de fréquences discrètes réparties uniformément sur son domaine d'émission.

Description fréquentielle

Si la fréquence de répétition, le déphasage porteuse-enveloppe ainsi que la forme de l'enveloppe restent constants au cours du temps, le peigne est alors complètement stable. La transformation de Fourier du champ électrique $E(t)$ émis par la source laser nous donne :

$$E(\nu) = \text{TF}\{E(t)\} = A(\nu - \nu_p) \sum_{n=0}^{+\infty} \exp\left[-in\left(\frac{2\pi\nu}{f_{rep}} - \Delta\Phi_{ce}\right)\right] \quad (1.23)$$

Cette expression rend bien compte de la composition du spectre par une multitude de

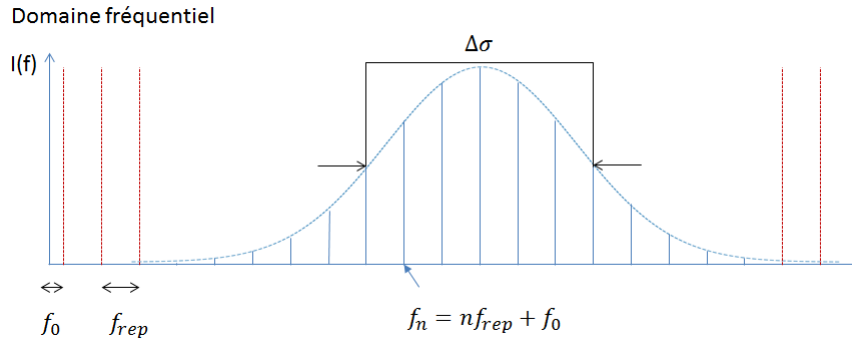


FIGURE 1.6 – Représentation fréquentielle du peigne de fréquences. Une multitude de fréquences discrètes équidistantes composent le spectre. L'écart entre les dents correspond à la fréquence de répétition du laser. Le décalage à l'origine de ces dents est dû au déphasage porteuse-enveloppe.

fréquences discrètes comme représenté sur la Figure 1.4. Ces fréquences équidistantes les unes des autres sont séparées de f_{rep} tel que l'autorise la cavité laser. Cependant, nous ne retrouvons pas forcément les harmoniques exactes de f_{rep} . Cela est dû à la phase temporelle correspondant au déphasage porteuse-enveloppe qui se traduit dans le domaine fréquentiel par un décalage à l'origine des dents du spectre. Cette fréquence d'offset f_0 vaut :

$$f_0 = \frac{\Delta\Phi_{ce}f_{rep}}{2\pi} \quad (1.24)$$

Chacune des dents du peigne se notent donc :

$$\nu_n = f_0 + n f_{rep} \quad (1.25)$$

Avec n le numéro de la dent considérée.

Génération d'un laser peigne de fréquences

Aujourd'hui plusieurs moyens existent pour générer des peignes de fréquences. Nous décrivons brièvement ici les différents systèmes.

Le premier système permettant de générer un peigne de fréquences, traditionnellement utilisé jusque la fin des années 1990 consiste à coupler une source laser continue à un modulateur électro optique (MEO) positionné à l'intérieur d'une cavité Fabry-Pérot [Kouroggi et collab., 1993]. A chaque aller-retour de l'onde dans la cavité, le MEO produit des bandes de fréquences latérales de part et d'autre de la fréquence d'origine. La fréquence de modulation du MEO doit correspondre à l'intervalle spectral libre de la cavité, afin que les nouvelles fréquences générées soient en résonance avec la cavité. Ces nouvelles fréquences vont elles aussi passer dans le modulateur et créer de nouvelles bandes latérales, elles aussi en résonance avec la cavité. La répétition de ce phénomène aboutit à la création d'un peigne de fréquences. Le spectre du signal optique est composé de fréquences optiques liées par une relation de phase et distantes de la fréquence du signal électronique appliqué au modulateur. Les peignes de fréquences générés ainsi couvrent un domaine spectral limité non seulement à cause de la dispersion des miroirs de la cavité optique de haute finesse mais surtout à cause du MEO dont l'efficacité de modulation dépend de la fréquence de l'onde électromagnétique qui le traverse. Il est toutefois possible de générer un peigne de fréquences dont l'étendue spectrale couvre 300cm^{-1} soit 70 nm dans le visible et proche infrarouge [Saitoh et collab., 1996]. Ce type de système est

aujourd'hui souvent remplacé par la génération de peignes de fréquences avec des lasers à modes verrouillés en phase [Reichert et collab., 1999]. Ce système possède de multiples avantages par rapport au système précédent. Le principal est celui de pouvoir obtenir un spectre d'émission couvrant plus d'une octave constitué de millions de dents. L'une des premières sources à modes verrouillés en phase générant un peigne de fréquences a été réalisée avec un laser Ti :Saphire [Spence et collab., 1991]. A la fin des années 1990, l'équipe de T.W Hänsch réalise la première expérience de spectroscopie avec un laser femtoseconde à modes verrouillés en phase [Udem et collab., 1999]. Aujourd'hui de nombreux lasers à modes verrouillés en phase existent, on peut citer le Ti :Saphire émettant à 850 nm, l'ytterbium émettant à 1 μm , l'erbium à 1,5 μm , le $Cr^{2+} : ZnSe$ à 2,4 μm , le $Cr^{2+} : CdSe$ émettant entre 2,0 μm et 3,5 μm . Grâce à des techniques de conversion de fréquence non linéaires, l'extension vers l'ultraviolet et le lointain infrarouge est possible. La génération de différence de fréquences (DFG) permet d'atteindre l'infrarouge en utilisant un laser Ti :Saphire [Foreman et collab., 2003], ou encore un laser à fibre erbium Meek et collab. [2014]. L'utilisation d'oscillateurs paramétriques optiques (OPO) pompés avec un laser Ti :Saphir femtoseconde [Kartaloglu et collab., 1998] ou un laser à fibre erbium femtoseconde [Leindecker et collab., 2011] permet également d'obtenir un peigne de fréquences dans l'infrarouge [Vodopyanov et collab., 2011]. Les Lasers à cascade quantique permettent également d'obtenir un spectre peigne de fréquences dans le domaine de l'IR [Hugi et collab., 2012]. La source Ti :Saphire permet également d'étendre le spectre vers le domaine ultraviolet par le biais de génération d'harmoniques d'ordres élevés [Gohle et collab., 2005].

L'utilisation de fibres à cristaux photoniques ou des fibres fortement non linéaires permet d'élargir le domaine spectral d'émission des lasers à modes verrouillés en phase. Un autre moyen est le couplage d'un laser continu à un micro-résonateur qui permet de confiner très fortement la lumière. Ce confinement génère des effets non linéaires (mélange à 4 ondes) qui redistribuent l'énergie optique vers les modes de la cavité et qui conduisent à un peigne de fréquences. Ces sources permettent de générer des spectres couvrant plus d'une octave dans le proche infrarouge [Del'Haye et collab., 2008]. La figure 1.7 tirée de [Picqué et Hänsch, 2019] illustre la couverture spectrale des lasers peignes de fréquences issus de différentes technologies. Ce tableau graphique non exhaustif représente la fréquence de répétition de la source en fonction de sa couverture spectrale. La fréquence de répétition est liée à la technologie. Les références [Okubo et collab., 2015] et [Bernhardt et collab., 2010] représentent les lasers femtosecondes. [Rösch et collab., 2018], [Sterczewski et collab., 2017], [Link et collab., 2017] et [Villares et collab., 2014] représentent les semiconducteurs. Les peignes de fréquence obtenus en couplant un laser continu et un microresonateur possèdent les fréquences de répétition les plus élevées [Suh et collab., 2016], [Dutt et collab., 2018] et [Yu et collab., 2018]. Les références [Seidel et collab., 2018], [Ycas et collab., 2018] et [Finneran et collab., 2015] sont les sources obtenues par DFG. [Maidment et collab., 2016] et [Muraviev et collab., 2018] sont des sources obtenues à partir d'OPO permettant de couvrir une large gamme spectrale du moyen IR. [Millot et collab., 2016] est un peigne de fréquence obtenu à partir de modulateurs électro-optiques.

1.3.2 Spectroscopie avec un laser peigne de fréquences

Les caractéristiques spectrales des lasers peigne de fréquences les rendent attractifs pour la spectroscopie d'absorption sur de larges bandes spectrales. Les premières techniques de spectroscopies à utiliser ces sources s'inspirent de celles des lasers accordables.

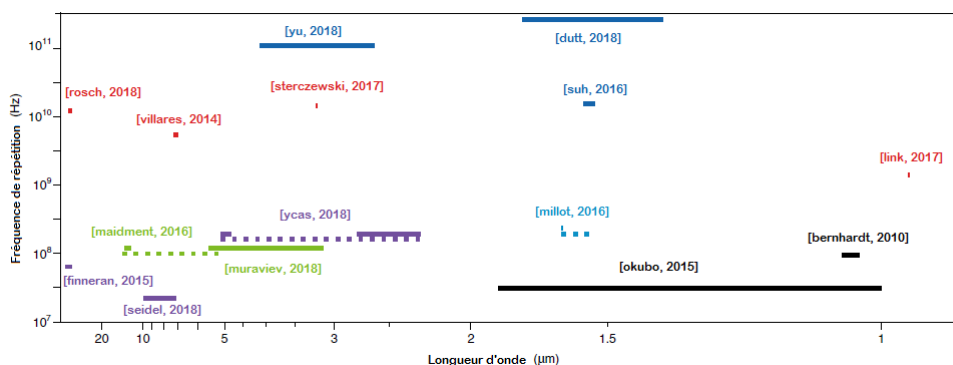


FIGURE 1.7 – Couverture spectrale des sources peignes de fréquences tirée de [Picqué et Hänsch, 2019]. En noir les lasers femtoseconde, en rouge les semiconducteurs, en bleu les micro-résonateurs, en violet les sources issues d'un processus de DFG, en vert les OPO et en cyan un peigne obtenu à partir de MEO.

Utilisation d'un spectromètre à réseau

En 2002 Gherman et al. couplent une source laser Ti :Saphire à modes verrouillés en phase avec une cavité de haute finesse ainsi qu'à un spectromètre à réseau. Ils appellent la méthode Mode-Locked CEAS [Gherman et Romanini, 2002]. En 2006 Thorpe et al. proposent une expérience de CRDS avec un laser verrouillé en phase Ti :Saphire couplé à un spectromètre à réseau [Thorpe et collab., 2006]. En 2007 Thorpe et al reproduisent l'expérience avec un laser à fibre dopée erbium verrouillé en phase couplé à un spectromètre à réseau pour une nouvelle mesure CRDS [Thorpe et collab., 2007]. Cette méthode procure un NEA de $2.10^{-8} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-1/2}$. La limite de résolution de 25 GHz du spectromètre à réseau ne permet pas de résoudre les dents du peigne espacées de 80 MHz. En 2007 une méthode proposée par Diddams et al. permet de résoudre les dents du peigne [Diddams et collab., 2007]. La méthode utilise un VIPA (Virtually Imaged Phased Array) et un réseau de diffraction pour disperser le faisceau d'un laser Ti :Saphire à modes verrouillés en phase. En injectant un faisceau laser dans un VIPA, il en sort un faisceau dont l'angle de sortie dépend de la longueur d'onde. L'utilisation consécutive d'un VIPA puis d'un réseau de diffraction permet une dispersion sur deux dimensions de la lumière. La résolution spectrale du spectromètre étant de 1,2 GHz, l'espacement entre les dents du peigne de fréquences étant de 1 GHz, une cavité Fabry-Perot d'ISL de 3 GHz est utilisée pour filtrer une dent sur trois du peigne. Les dents du peigne filtré sont alors résolues spectralement. Le schéma du montage est représenté sur la figure 1.8. Néanmoins cette méthode ne permet pas d'enregistrer des spectres sur de larges bandes spectrales, seulement une dizaine de nanomètres autour de 633 nm.

Utilisation d'un spectromètre de Fourier

Le couplage d'un spectromètre de Fourier à une source peigne de fréquences permet d'acquérir simultanément l'ensemble du spectre d'émission du laser. En 2007, Mandon et al ont substitué la traditionnelle source blanche utilisée avec les spectromètres de Fourier par une source peigne de fréquences. A rapport signal sur bruit identique, le peigne de fréquence permet de réduire le temps d'acquisition de plus de deux ordres de grandeurs [Mandon et collab., 2007]. La forte luminance de ces sources peut également servir à augmenter la longueur d'interaction entre le faisceau et l'échantillon. Une cellule de White peut être utilisée pour améliorer la sensibilité et atteindre un NEA de $5.10^{-9} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-1/2}$

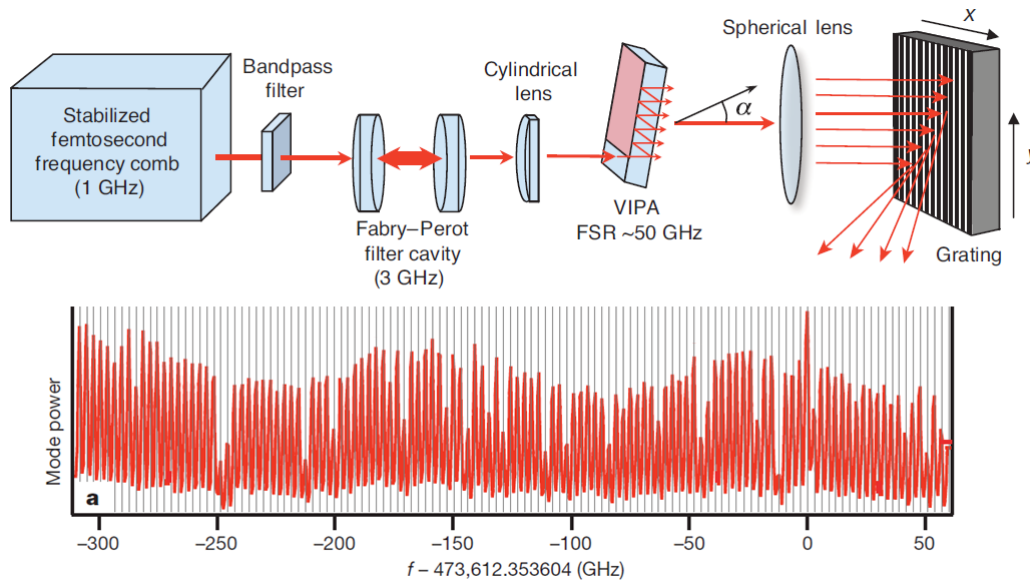


FIGURE 1.8 – En haut le schéma du dispositif expérimental. Un peigne de fréquences filtré par une cavité Fabry-Perot, le faisceau est ensuite doublement dispersé par le couple VIPA-réseau de diffraction permettant d’obtenir une résolution spectrale de 1,2 GHz. En dessous une partie du spectre d’absorption obtenu dévoilant une partie des dents du peigne. Figure issue de [Diddams et collab., 2007].

[Jacquet, 2011]. L’utilisation d’un spectromètre de Fourier a l’avantage d’enregistrer simultanément l’ensemble du spectre de la source mais la sensibilité demeure moins élevée qu’avec l’utilisation d’une cavité de haute finesse.

Utilisation d’une cavité de haute finesse et d’un spectromètre de Fourier

L’ajout d’une cavité de haute finesse à un spectromètre de Fourier permet de bénéficier des avantages du spectromètre de Fourier et de la cavité de haute finesse. En 2010 Kassi et al. utilisent un laser Ti :Saphire à modes verrouillés en phase, une cavité de haute finesse et un spectromètre de Fourier commercial [Kassi et collab., 2010]. La qualité de la cavité de haute finesse étant ici le facteur limitant, sa finesse étant égale à 44. La sensibilité ici obtenue ne dépasse pas les performances obtenues avec un spectromètre à réseau. Cependant en 2011 Foltynowicz et al, proposent le couplage d’une cavité de haute finesse de qualité 8000 à un spectromètre de Fourier et un détecteur différentiel à bas bruit [Foltynowicz et collab., 2011]. La mesure permet d’atteindre un NEA de $1,7 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^{-1} \text{ Hz}^{-1/2}$ pour une résolution spectrale de 380 MHz.

1.3.3 Autres applications

Une des premières applications des lasers peignes de fréquences est la métrologie de fréquences. Les détecteurs actuels ne permettant pas de suivre les oscillations d’un champ électrique THz il n’est pas possible de mesurer directement la fréquence du champ électrique des ondes lumineuses. Le laser peigne de fréquences peut servir d’étalon dans le domaine optique pour mesurer précisément la fréquence d’une onde lumineuse. En reliant une horloge RF à la fréquence de répétition et à la fréquence d’offset du peigne, on connaît alors avec la précision de l’horloge la fréquence de chacun des modes du peigne. Mesurer la fréquence d’un laser est alors possible en créant un battement hétérodyne

avec une dent du peigne. Grâce au large domaine d'émission du peigne on trouve nécessairement une dent permettant d'obtenir une fréquence de battement appartenant au domaine des radios fréquences, ce qui nous permet de réaliser une mesure précise de la différence de fréquence. De plus, ce lien direct du peigne entre radio-fréquences et fréquences optiques permet de contrôler les fréquences des modes du peignes grâce à une stabilisation sur une horloge radio-fréquence ultra stable.

Le laser peigne de fréquences permet également de mesurer des distances avec une précision supérieure à celle des méthodes précédents le peigne [Hyun et collab., 2009], [Suh et Vahala, 2018], [Zhu et Wu, 2018]. En astronomie le peigne est également utilisé pour étalonner avec précision la longueur d'onde des télescopes. L'utilisation du peigne permet d'étalonner plus rigoureusement les spectrographes ce qui les rends plus précis mais permet aussi de rendre les mesures plus reproductibles pour la mesure de vitesses radiales en astronomie [Li et collab., 2008]. L'article de A. Diddams [Diddams, 2010] détaille plusieurs applications possibles des lasers peignes de fréquence.

1.3.4 Conclusion

Le laser à peigne de fréquences prouve qu'il peut mettre l'ensemble de ses avantages au service de la spectroscopie d'absorption large bande. Son large domaine spectral d'émission et sa forte luminance permettent de réaliser des mesures sensibles, jusqu'à quelques centaines de MHz de résolution et sur un large domaine spectral. D'un coté l'utilisation d'un spectromètre dispersif permet une résolution spectral de l'ordre du GHz pour un faible domaine spectrale d'analyse. De l'autre, l'utilisation d'un spectromètre de Fourier permet d'obtenir l'ensemble du domaine spectral d'émission du peigne. Dans les deux cas l'utilisation d'une cavité de haute finesse permet d'atteindre une très grande sensibilité. Une nouvelle approche basée sur l'utilisation de deux laser peignes de fréquences et inspirée de la spectroscopie de Fourier surpasse les méthodes spectroscopiques précédemment évoquées et permet de s'affranchir de la contrainte de l'utilisation d'un Michelson. Cette technique, la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences (Dual Comb Spectroscopy, DCS) permet d'atteindre d'excellentes performances en termes de rapidité d'acquisition et de sensibilité.

1.4 La spectroscopie à deux peignes de fréquences

L'association spectromètre de Fourier et peigne de fréquences se fait naturellement de par la largeur spectrale de la source. Cependant nous avons vu que les limitations de ce spectromètre sont la résolution spectrale liée à la longueur du bras mobile et au temps d'acquisition, dû à l'incohérence des sources utilisées. Si le temps d'acquisition peut être amélioré grâce à l'utilisation d'une source laser peigne de fréquences à modes verrouillés en phase, il demeure la limitation de la résolution spectrale. La spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences permet de bénéficier des avantages du spectromètre de Fourier tout en permettant d'améliorer la limite de résolution, de diminuer la durée d'acquisition et de se débarrasser du miroir mobile encombrant.

1.4.1 Principe

En 2002, Schiller et al proposent une nouvelle méthode de spectroscopie d'absorption basée sur la spectroscopie de Fourier [Schiller, 2002] dont le schéma de principe est représenté sur les figures 1.9 et 1.10. La figure 1.9 représente la configuration symétrique,

situation où les deux faisceaux sondent l'échantillon. La figure 1.10 représente la configuration asymétrique où uniquement un seul des deux faisceaux sonde l'échantillon, le second sert d'oscillateur local. Cette méthode répond aux enjeux exposés dans les sec-

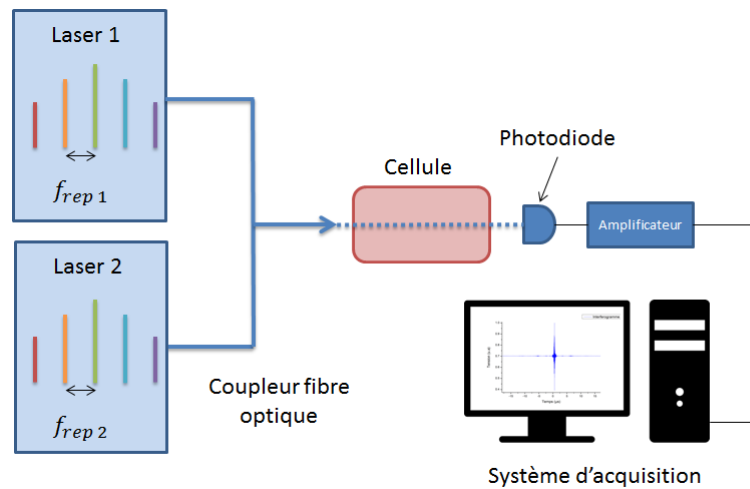


FIGURE 1.9 – Schéma de principe global de la spectroscopie à deux peignes en configuration symétrique. Les deux lasers ayant des fréquences de répétitions légèrement différentes sondent l'échantillon. Puis les faisceaux combinés arrivent sur le détecteur qui enregistre le signal interférométrique.

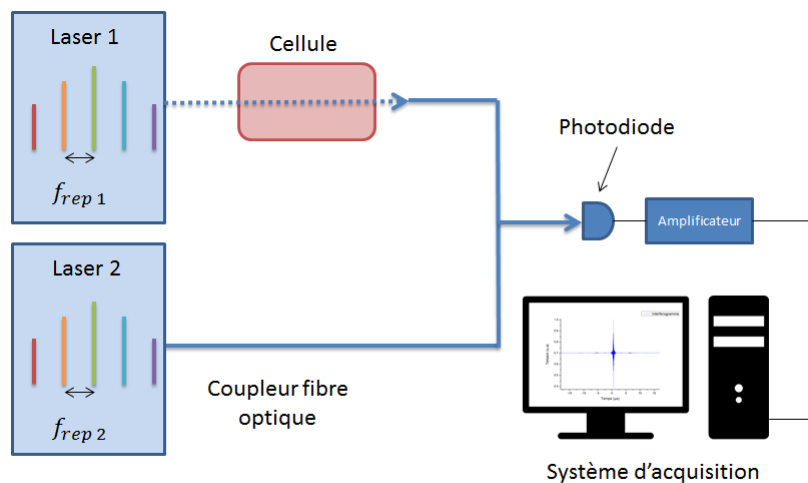


FIGURE 1.10 – Schéma de principe global de la spectroscopie à deux peignes en configuration asymétrique. Un seul des deux lasers sonde l'échantillon, le second ayant une fréquence de répétition légèrement différente du premier est utilisé comme oscillateur local. Les deux faisceaux combinés arrivent sur le détecteur qui enregistre le signal interférométrique.

tions précédentes de ce chapitre. Son principe est de faire battre deux lasers peignes de fréquences ayant une légère différence de fréquence de répétition, dans le but de démultiplier les fréquences optiques vers le domaine radio-fréquence tout comme la spectroscopie par transformation de Fourier classique. Toutes deux sont basées sur le théorème de Wiener-Kintchine qui relie la densité spectrale de puissance d'une source laser à la transformation de Fourier de l'autocorrélation de son champ électrique [Wiener et collab., 1930] :

$$\text{TF}\{R_E(\tau)\} = \Gamma(\omega) \quad (1.26)$$

avec $R_E(\delta\tau)$ l'autocorrélation du champ électrique et $\Gamma(\omega)$ la densité spectrale de puissance de la source. L'autocorrélation du champ électrique s'écrit :

$$R_E(\delta\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} E^*(t)E(t + \delta\tau) dt \quad (1.27)$$

Dans le cas du spectromètre de Fourier traditionnel, l'autocorrélation du champs s'obtient grâce au montage Michelson et son miroir mobile qui introduit un délai $\delta\tau$ entre les faisceaux lasers recombinaés sur la photodiode. Dans le cas de la DCS le délai $\delta\tau$ est introduit grâce à la différence de fréquence de répétition entre les deux lasers. Dans les deux situations le signal interférométrique enregistré est proportionnel à la norme au carré du champ électrique arrivant sur la photodiode. Ce signal que l'on note $S(t)$ peut s'écrire :

$$S(t) \propto \int_0^T |E_1(t) + E_2(t + \delta\tau)|^2 dt \quad (1.28)$$

$$S(t) \propto \int_0^T |E_1(t)|^2 dt + \int_0^T |E_2(t)|^2 dt + 2 \int_0^T \text{Re}\{E_1^*(t)E_2(t + \delta\tau)\} dt \quad (1.29)$$

La partie du signal portant l'information sur les raies d'absorption est la partie interférométrique :

$$S(t) \propto \int_0^T \text{Re}\{E_1^*(t)E_2(t + \delta\tau)\} dt \quad (1.30)$$

Dans la suite de cette section nous allons décrire ce signal d'un point de vue temporel et fréquentiel en configuration symétrique.

1.4.2 Point de vue temporel

Il s'agit ici de décrire la méthode de spectroscopie à deux peignes de fréquences d'un point de vue temporel. Une fois combiné, les deux faisceaux provenant des sources lasers femtosecondes battent ensemble sur la photodiode. La détection des impulsions est asynchrone car les lasers possèdent des fréquences de répétitions différentes notées $f_{rep,q}$, $q = 1$ ou 2 étant l'indice du laser. La figure 1.11 montre comment l'information portée par les impulsions du premier laser est alors échantillonnée par les impulsions du second laser avec un retard optique qui varie linéairement dans le temps construisant ainsi l'interférogramme de la même manière que la spectroscopie de Fourier traditionnelle. La différence réside dans la façon d'introduire le retard optique, ici c'est la différence de fréquence de répétition qui joue le rôle du miroir mobile. Le délai séparant les impulsions du laser 1 des impulsions du laser 2 varie linéairement dans le temps. L'incrément de ce délai s'exprime par :

$$\delta\tau_{incrément} = \frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}^2} \quad (1.31)$$

L'incrément se fait sans partie mécanique mobile. De plus la variation du délai est cyclique ce qui se traduit par la construction d'interférogrammes successifs comme illustré sur la figure 1.11. L'équivalence en spectroscopie de Fourier traditionnelle serait un miroir mobile qui effectue sans cesse des allers-retours. La plus grande valeur de délai que l'on peut introduire dépend de la fréquence de répétition des lasers et de la configuration choisie. Pour une configuration symétrique ce délai est égal à :

$$\delta\tau_{max} = \frac{1}{2f_{rep}} \quad (1.32)$$

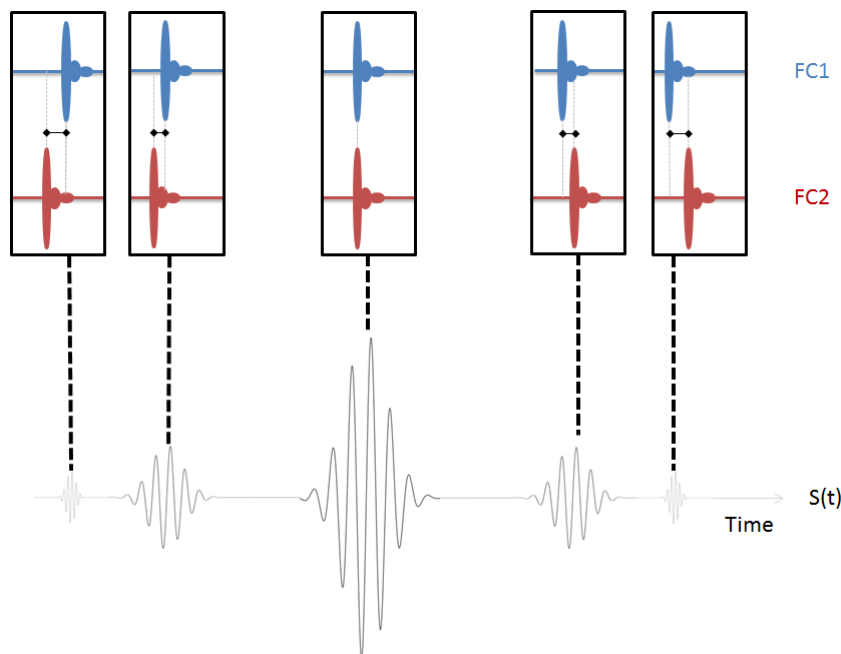


FIGURE 1.11 – Représentation temporelle de la construction d'un interférogamme. Les impulsions du premier peigne de fréquences (FC1) sont représentées en bleues et celle du second peigne en rouge (FC2). Si les molécules sondées par les deux lasers possèdent des transitions rovibrationnelles dont les énergies sont situées dans le domaine spectral d'émission des sources, alors les molécules sont excitées à intervalle régulier par les trains d'impulsions des lasers. Les molécules reviennent à leur état initial laissant apparaître une traînée à l'arrière des impulsions. Ce signal modulé à une fréquence de l'ordre du térahertz ne peut pas être observé directement.

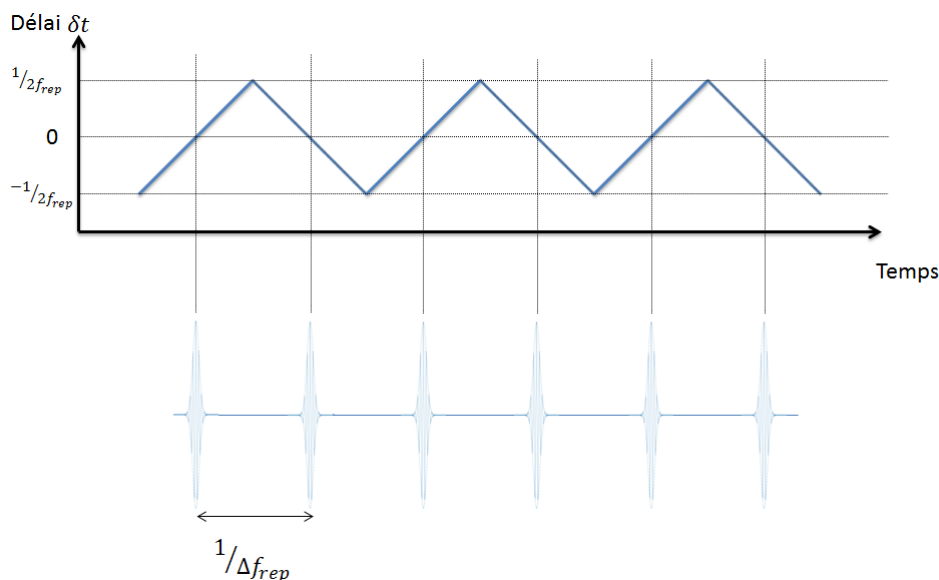


FIGURE 1.12 – Représentation de la variation cyclique du délai entre les impulsions du laser 1 et celles du laser 2 en fonction du temps. La formation des interférogammes est donc également cyclique. Lorsque le délai est nul les impulsions arrivant sur le détecteur sont en coïncidence, la frange centrale se forme.

Typiquement avec des lasers cadencés à 100 MHz, ce délai vaut 5 ns, ce qui correspond à un miroir mobile se déplaçant sur 75 cm en spectroscopie de Fourier traditionnelle. Le champ électrique émis par le laser peigne de fréquences numéro q ayant une fréquence

de répétition $f_{rep,q}$ et un déphasage porteuse-enveloppe $f_{0,q}$ peut se noter comme la somme des composantes de Fourier qui le forment :

$$E_q(t) = \sum_{n=0}^{+\infty} A_{q,n} e^{2\pi i(f_{0,q} + n f_{rep,q})t} \quad (1.33)$$

Avec $A_{q,n}$ qui représente l'amplitude spectrale de la dent numéro n associée à la fréquence $\nu_n = f_{0,q} + n f_{rep,q}$. Lorsque le faisceau traverse l'échantillon à analyser, son interaction avec le milieu se traduit sur le champs électrique par un déphasage $\phi(\nu_n)$ et une atténuation $\delta(\nu_n)$ correspondant à la dispersion et l'absorption du milieu sondé. Le champ électrique s'écrit :

$$E'_q(t) = \sum_{n=0}^{+\infty} A_{q,n} e^{2\pi i(f_{0,q} + n f_{rep,q})t} e^{-\delta(\nu_{q,n}) - i\phi(\nu_{q,n})} \quad (1.34)$$

Dans une configuration symétrique tel que sur le schéma de la figure 1.7, les deux faisceaux sondent l'échantillon, le champ électrique total arrivant sur la photodiode s'écrit :

$$E'_1(t) + E'_2(t) = \sum_{n=0}^{+\infty} A_{1,n} e^{2\pi i(f_{0,1} + n f_{rep,1})t} e^{-\delta(\nu_{1,n}) - i\phi(\nu_{1,n})} + A_{2,n} e^{2\pi i(f_{0,2} + n f_{rep,2})t} e^{-\delta(\nu_{2,n}) - i\phi(\nu_{2,n})}$$

Avec $\delta(\nu_{1,n})$ et $\phi(\nu_{1,n})$ respectivement l'absorption et la phase rencontrées par la dent $\nu_{1,n}$ du peigne 1 et $\delta(\nu_{2,n})$, $\phi(\nu_{2,n})$ celles rencontrées par le second peigne. Le photodétecteur délivre un courant proportionnel à la norme quadratique du champ électrique.

$$I(t) \propto \| E'_1(t) + E'_2(t) \|^2 \quad (1.35)$$

Le signal d'interférence résultant de la superposition des champs électriques des deux lasers se décompose comme le battement de chacune des dents du laser 1 avec chacune des dents du laser 2. Le signal peut se décomposer ainsi :

$$I(t) \propto \sum_{n=0}^{+\infty} [A_{1,n} e^{2\pi i(f_{0,1} + n f_{rep,1})t - \delta(\nu_{1,n}) - i\phi(\nu_{1,n})} + A_{2,n} e^{2\pi i(f_{0,2} + n f_{rep,2})t - \delta(\nu_{2,n}) - i\phi(\nu_{2,n})}] \times [A_{1,n} e^{-2\pi i(f_{0,1} + n f_{rep,1})t - \delta(\nu_{1,n}) - i\phi(\nu_{1,n})} + A_{2,n} e^{-2\pi i(f_{0,2} + n f_{rep,2})t - \delta(\nu_{2,n}) - i\phi(\nu_{2,n})}] + \text{termes de modulation de plus grandes fréquences}$$

On pose les grandeurs :

$$\Delta f_0 = f_{0,1} - f_{0,2} \quad \Delta f_{rep} = f_{rep,1} - f_{rep,2} \quad (1.36)$$

Le signal d'interférence se réécrit :

$$I(t) \propto \sum_{n=0}^{+\infty} [A_{1,n}^2 e^{-2\delta(\nu_{1,n})} + A_{2,n}^2 e^{-2\delta(\nu_{2,n})} + A_{1,n} A_{2,n} e^{-\delta(\nu_{1,n}) - \delta(\nu_{2,n})} 2 \cos[2\pi(\Delta f_0 + n \Delta f_{rep})t - (\phi(\nu_{1,n}) - \phi(\nu_{2,n}))] + A_{1,n} A_{2,n-1} e^{-\delta(\nu_{1,n}) - \delta(\nu_{2,n-1})} 2 \cos[2\pi(\Delta f_0 + n \Delta f_{rep} + f_{rep,2})t - (\phi(\nu_{1,n}) - \phi(\nu_{2,n-1}))] + A_{1,n} A_{2,n+1} e^{-\delta(\nu_{1,n}) - \delta(\nu_{2,n+1})} 2 \cos[2\pi(-\Delta f_0 - n \Delta f_{rep} + f_{rep,2})t - (\phi(\nu_{1,n}) - \phi(\nu_{2,n+1}))] + \text{termes de modulation de plus grandes fréquences}]$$

Dans cette expression seul le terme modulé à la fréquence $(\Delta f_0 + n \Delta f_{rep})$ nous intéresse. Il contient l'information spectrale sur l'échantillon étudié. La somme sur n de ce terme constitue l'interférogramme basses fréquences. Les autres termes modulés à plus haute fréquences portent également l'information spectrale de l'échantillon et constituent des interférogrammes plus hautes fréquences. Ces interférogrammes sont filtrés pour obtenir uniquement celui composé des basses fréquences.

Le signal interférométrique obtenu peut alors s'écrire avec uniquement le terme qui nous intéresse :

$$I(t) \propto \sum_{n=0}^{+\infty} +2A_{1,n}A_{2,n}e^{-\delta(v_{1,n})-\delta(v_{2,n})} \cos[2\pi(\Delta f_0 + n\Delta f_{rep})t - (\phi(v_{1,n}) - \phi(v_{2,n}))] \quad (1.37)$$

Dans le cas d'une configuration symétrique comme décrite ici, les dents $v_{1,n}$ et $v_{2,n}$ des deux laser sont affectées d'une atténuation et une phase qui leur est propre. Si les dents $v_{1,n}$ et $v_{2,n}$ sont proches devant la largeur de la transition sondée nous pouvons considérer que les atténuations et déphasages de $v_{1,n}$ et $v_{2,n}$ seront les mêmes. Dans ce cas nous pouvons supposer que $v_{1,n} = v_{2,n} = v_n$ et $\phi_{1,n} = \phi_{2,n} = \phi_n$. La sensibilité est alors deux fois plus importante que pour une configuration asymétrique où un seul laser sonde l'échantillon. Dans cette configuration symétrique l'interférogramme présente une allure symétrique par rapport à la frange centrale comme visible sur la figure 1.11. Dans les deux configurations le spectre d'absorption peut être retrouvé en effectuant une transformation de Fourier de l'interférogramme.

1.4.3 Point de vue fréquentiel

D'un point de vue fréquentiel, la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences est une méthode hétérodyne. C'est à dire que la première dent du peigne 1 bat avec la première dent du peigne 2 et génère une nouvelle fréquence située dans le domaine radio-fréquence. Chaque dent du peigne 1 va générer de la même manière une fréquence de battement avec les dents du peigne 2. Un nouveau peigne de fréquences est ainsi obtenu. Ce nouveau peigne appartenant au domaine radio-fréquence porte les informations spectrales des peignes optiques. Les fréquences de ce nouveaux peigne représenté en rouge sur la figure 1.13 sont données par l'équation :

$$f_m = \Delta f_0 + m\Delta f_{rep} \quad (1.38)$$

Nous voyons ici tout l'intérêt de la légère différence entre les fréquences de répétitions des deux lasers. L'information spectrale portée par les fréquences optiques $v_{1,n}$ et $v_{2,n}$ se retrouve dans la dent radio-fréquence $m\Delta f_{rep}$.

Cependant chacune des dents du laser 1 va battre avec chacune des dents du laser 2. D'autres répliques de peignes de fréquences sont ainsi obtenues à plus hautes fréquences. Le peigne vert sur la figure 1.13 est composé des fréquences :

$$f_m = f_{rep} + \Delta f_0 + m\Delta f_{rep} \quad (1.39)$$

Où encore le peigne violet sur la figure 1.11 se compose des fréquences :

$$f_m = f_{rep} - (\Delta f_0 + m\Delta f_{rep}) \quad (1.40)$$

Il suffit alors de filtrer fréquentiellement le signal pour n'obtenir que le peigne constitué des plus basses fréquences correspondant au battement entre les dents les plus proches des deux peignes de fréquences.

1.4.4 Avantages de la méthode

Les principales limitations de la spectroscopie de Fourier traditionnelle sont l'utilisation d'une source de lumière incohérente et l'encombrement d'un Michelson (cf 1.2.2).

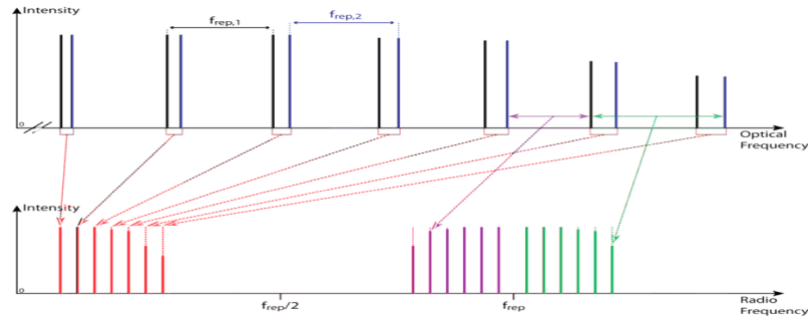


FIGURE 1.13 – Description fréquentielle de la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences. Les dents du premier peigne battent avec les dents les plus proches du second peigne formant une réplique RF visible en rouge des peignes optiques. Lorsque les dents du premier peigne battent avec des dents plus éloignées du second peigne, d'autres répliques RF se forment à plus haute fréquence. Deux de ces répliques sont représentées ici en violet et en vert.

La spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences dépasse ces limitations. L'utilisation de sources peigne de fréquences augmente la luminance ce qui permet de réduire le temps d'acquisition. L'abandon de la partie mécanique mobile rend le montage plus compact, permettant d'augmenter la limite de résolution jusqu'à atteindre la limite de résolution fondamentale de la méthode. Cette limite de résolution correspond à l'espacement des dents des peignes. L'élimination de cette partie mécanique mobile permet également d'augmenter la vitesse d'acquisition. Dans le cas traditionnel, la vitesse d'acquisition est fonction de la vitesse de déplacement du miroir mobile qui a une vitesse typique de quelques centimètres par seconde. Le décalage doppler associé va générer des fréquences de battements de l'ordre du kHz. Pour la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences la vitesse de déplacement du miroir correspond à la différence de fréquence de répétition Δf_{rep} entre les 2 sources. Les fréquences de battement générées sont typiquement de l'ordre du MHz. Il en résulte qu'à largeur spectrale, luminance et résolution égale, la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences permet un gain d'un facteur 10^3 sur le temps d'acquisition. Le bruit de détection étant en $\frac{1}{f}$, l'enregistrement d'un interférogramme composé de signaux à plus hautes fréquences (MHz plutôt que kHz) permet à la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences d'enregistrer plus rapidement un interférogramme pour un RSB donné.

1.4.5 Choix des paramètres expérimentaux

Les différents paramètres expérimentaux : la différence de fréquences de répétitions Δf_{rep} la différence de fréquences porteuse-enveloppe Δf_0 , la durée d'acquisition T_{acq} , la fréquence d'échantillonnage f_{ech} jouent un rôle important pour déterminer les caractéristiques spectrales telles que la résolution, le domaine spectral ou le rapport signal sur bruit du spectre d'absorption obtenu.

Différence de fréquence de répétition

La différence de fréquences de répétitions Δf_{rep} , entre les deux peignes est liée au facteur de démultiplication des fréquences. Ce facteur sert à compresser ou dilater la largeur spectrale du peigne de fréquences RF. Chaque dent optique n $\nu_n = f_0 + n f_{rep}$ des peignes optiques génère une fréquence RF $f_m = \Delta f_0 + m \Delta f_{rep}$. L'espacement entre les dents du peigne RF vaut alors Δf_{rep} . Le facteur permettant de passer de l'espacement entre les

dent des peignes optiques à celui du peigne RF est appelé facteur de démultiplication a .

$$a = \frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}} \quad (1.41)$$

Puisque l'espacement entre les dents augmente avec Δf_{rep} , l'étalement spectral du peigne RF dépend de ce paramètre. Comme nous l'avons vu le battement entre les deux peignes optiques génère plusieurs répliques de peignes RF. Si l'espacement entre les dents du peigne RF est mal dimensionné, ces différents peignes RF peuvent se recouvrir comme sur la figure 1.14. Pour éviter ce recouvrement Δf_{rep} ne doit pas excéder une certaine

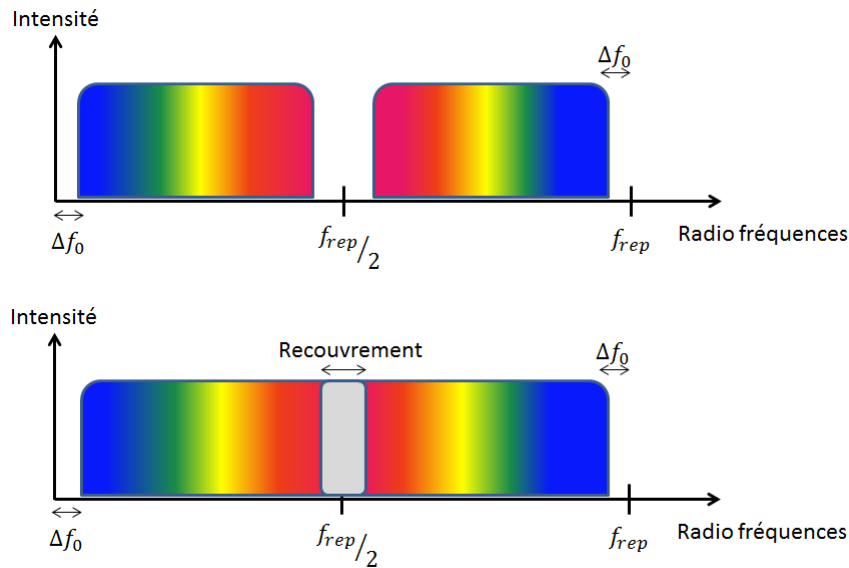


FIGURE 1.14 – Réglage du paramètre Δf_{rep} . Le peigne à plus basses fréquences se trouve à gauche et la réplique dont les fréquences se situent vers $\frac{f_{rep}}{2} - \Delta f_0 - n\Delta f_{rep}$ est à droite. Le schéma du haut montre un Δf_{rep} permettant de séparer les deux répliques. Lorsque Δf_{rep} dépasse une certaine valeur les deux répliques se recouvrent, les informations spectrales se trouvent brouillées.

valeur. Le calcul de la valeur maximale dépend de la largeur spectrale $\Delta\nu$ des peignes optiques utilisés. $\Delta\nu \times a$ ne doit pas excéder $\frac{f_{rep}}{2}$. Il en résulte que la valeur maximale à ne pas dépasser pour éviter le recouvrement vaut :

$$\Delta f_{rep} = \frac{f_{rep}^2}{2\Delta\nu} \quad (1.42)$$

Lorsque les répliques RF ne se recouvrent pas, un filtre passe bas avec $\frac{f_{rep}}{2}$ pour fréquence de coupure permet de ne conserver que la réplique aux basses fréquences contenant toutes les informations moléculaires de l'échantillon sondé.

Différence de fréquence d'offset

Si le paramétrage de Δf_{rep} est important pour éviter le recouvrement, le paramétrage des différences porteuse-enveloppe Δf_0 est tout aussi important. Comme représenté sur la figure 1.14, Δf_0 correspond au décalage du spectre démultiplié par rapport à la fréquence nulle. Si sa valeur est trop grande un recouvrement peut avoir lieu entre les différentes répliques. Il est donc nécessaire de veiller à ce que la fréquence la plus basse du peigne RF soit légèrement supérieure à la fréquence nulle.

Durée d'acquisition et fréquence d'échantillonnage

L'interférogramme doit être échantillonné à une fréquence au moins deux fois supérieure à sa composante de plus haute fréquence afin de respecter le critère de Nyquist-Shannon. Comme nous l'avons vu, pour éviter le repliement la fréquence maximale du peigne démultiplié ne doit pas excéder $\frac{f_{rep}}{2}$, la fréquence d'échantillonnage doit alors respecter l'équation suivante :

$$f_{ech} \geq 2 \times \frac{f_{rep}}{2} \quad (1.43)$$

La durée d'acquisition de l'interférogramme va déterminer la résolution spectrale atteinte par le spectromètre. En spectroscopie de Fourier traditionnelle, la limite de résolution dépend du retard optique introduit. En spectroscopie à deux peignes de fréquences ce retard évolue proportionnellement au temps d'acquisition T_{acq} du signal. Dans le cas où la fréquence d'échantillonnage est inférieure à f_{rep} , c'est à dire à la fréquence d'itération du délai optique $\delta\tau_{incrément}$, alors M le nombre d'éléments spectraux qui correspond à la largeur spectrale enregistré divisée par la résolution spectrale s'exprime :

$$M = T_{acq} \times f_{ech} \quad (1.44)$$

Si f_{ech} est supérieure à f_{rep} , alors l'interfrogramme est suréchantillonné, tous les points du spectre ne participent pas à l'amélioration de la résolution. Puisque l'incrément du délai optique est discrète et cadencée à la fréquence de répétition du laser, il n'est pas utile d'enregistrer plus d'un point par intervalle de temps $\frac{1}{f_{rep}}$. Ces points donneront la même information spectrale puisqu'ils correspondent au même délai optique δt . Le nombre maximal d'éléments spectraux utiles vaut donc :

$$M_{max} = T_{acq} \times f_{rep} \quad (1.45)$$

Pour un Δf_{rep} valant la valeur maximale et un Δf_0 minimal, la limite de résolution dans le domaine RF se calcule en divisant la largeur spectrale du peigne RF par le nombre d'éléments spectraux utiles enregistrés :

$$\delta f = \frac{f_{rep}}{2} \times \frac{1}{M_{max}} = \frac{1}{2T_{acq}} \quad (1.46)$$

La limite de résolution optique se retrouve grâce au facteur de démultiplication a :

$$\delta\nu = \frac{\delta f}{a} = \frac{f_{rep}}{2T_{acq}\Delta f_{rep}} \quad (1.47)$$

A résolution égale la durée d'acquisition dépend de Δf_{rep} . Nous avons vu que l'incrément du délai optique est proportionnelle à Δf_{rep} . Plus Δf_{rep} est grand plus vite ont atteint la valeur maximale du délai optique.

Pour une différence de fréquence donnée, plus le temps d'acquisition sera long et plus la limite de résolution augmentera. Toutefois le délai optique étant limité par les fréquences de répétitions des peignes, la limite de résolution l'est également. Pour une configuration symétrique le délai optique maximal vaut :

$$\delta\tau_{max} = \frac{1}{2f_{rep}} \quad (1.48)$$

Ce délai est obtenu pour un temps d'acquisition $T_{acq} = \frac{1}{\Delta f_{rep}}$ d'un interférogramme centré sur la frange centrale. Conduisant à une limite de résolution optique $\delta\nu = \frac{f_{rep}}{2}$. Pour une configuration asymétrique le délai optique maximal vaut :

$$\delta\tau_{max} = \frac{1}{f_{rep}} \quad (1.49)$$

Ce délai est deux fois supérieur à celui obtenu dans la configuration symétrique. Dans cette configuration l'interférogramme asymétrique permet d'éviter le recouvrement entre deux interférogrammes consécutifs. Conduisant à une limite de résolution optique $\delta\nu = f_{rep}$ correspondant à l'écart entre les dents des peignes de fréquences optiques. Cela signifie que les raies d'absorption de l'échantillon sondé seront toujours échantillonnées dans le domaine spectral à la fréquence f_{rep} . Ainsi pour que la fréquence de répétition des peignes utilisés pour sonder l'échantillon soit suffisante pour échantillonner correctement les raies d'absorption moléculaires, il faut qu'elle soit inférieure à la largeur à mi-hauteur de la raie d'absorption.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons évoqué les nombreux enjeux de la spectrométrie d'absorption. Les instruments actuels basés sur les lasers accordables ou la spectroscopie de Fourier permettent de répondre à de nombreux besoins, néanmoins les attentes actuelles sont de plus en plus exigeantes et les méthodes de spectroscopie classiques ne permettent pas de répondre à l'ensemble de ces exigences, à savoir la sensibilité, la vitesse d'acquisition, la résolution spectrale et l'analyse simultanée d'une large bande spectrale. La spectroscopie de Fourier favorise l'analyse simultanée d'une large bande spectrale, alors que la spectroscopie laser favorise la sensibilité et la résolution spectrale. L'apparition du laser peigne de fréquences dans les années 1990 promet d'améliorer la sensibilité, la résolution et la vitesse d'acquisition de la spectroscopie large bande. Mais il faudra attendre 2002 et les travaux de Schiller pour voir émerger une nouvelle méthode spectroscopique permettant de rassembler l'ensemble des exigences des enjeux actuels de la spectroscopie.

L'objectif de cette thèse est d'évaluer le potentiel des lasers peigne de fréquences pour des mesures rapides multi-espèces à distance. Cela a débuté par la prise en main du système de spectroscopie à peignes de fréquences basés sur des lasers commerciaux MenloSystem. Une caractérisation des avantages et des limites du système en réalisant des mesures en cellule de gaz. Une première démonstration de mesure multi-espèces en espace libre puis une analyse du potentiel de mesure LiDAR.

Cette thèse s'inscrit dans la continuité des travaux de détection de gaz à distance réalisés à l'ONERA. Ce sujet de recherche a fait l'objet de différentes thèses, parmi lesquelles celle d'Erwan Cadiou en 2017 [Cadiou, 2017] qui a réalisé des mesures de concentration résolues spatialement de CO₂, CH₄ et H₂O atmosphériques par mesure Lidar Dial à 2 μm. En 2018 la thèse de Julie Armougom [Armougom, 2018] qui a réalisé des mesures Lidar IPDA sur des gaz de combats dans la bande 8-12 μm.

1.6 Références

«Integrated carbon observation system», <https://www.icos-ri.eu/about-us>. 6

- Aoust, G. 2016, *Développements de sources infrarouges et de résonateurs en quartz pour la spectroscopie photoacoustique*, thèse de doctorat. 15
- Armougom, J. 2018, *Nouvelles sources optiques pour la détection d'espèces chimiques dans la bande III*, thèse de doctorat, Grenoble Alpes. 31
- Armougom, J., J.-M. Melkonian, M. Raybaut, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, N. Cezard, R. Coetzee, V. Pašiškevičius et J. Kadlčák. 2018, «Standoff detection of hazardous chemicals using a longwave infrared parametric source», dans *Laser Applications to Chemical, Security and Environmental Analysis*, Optical Society of America, p. LTu5C–6. 7
- Baer, D. S., J. B. Paul, M. Gupta et A. O'Keefe. 2002, «Sensitive absorption measurements in the near-infrared region using off-axis integrated-cavity-output spectroscopy», *Applied Physics B*, vol. 75, n° 2-3, p. 261–265. 14
- Baev, V., T. Latz et P. Toschek. 1999, «Laser intracavity absorption spectroscopy», *Applied Physics B*, vol. 69, n° 3, p. 171–202. 14
- Bernhardt, B., A. Ozawa, P. Jacquet, M. Jacquy, Y. Kobayashi, T. Udem, R. Holzwarth, G. Guelachvili, T. W. Hänsch et N. Picqué. 2010, «Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy», *Nature Photonics*, vol. 4, n° 1, p. 55. 19
- Boulet, C. 2004, «Collisional effects on spectral line-shapes», *Comptes Rendus Physique*, vol. 5, n° 2, p. 201–214. 7
- Cadiou, E. 2017, *LIDAR DIAL multi especes base de sources parametriques optiques pour la detection des gaz a effet de serre depuis l'espace.*, thèse de doctorat, Paris Saclay. 31
- Camps, C., J.-P. Siegrist, D. Christen, N. Berthod et J. Rossier. 2008, «Qualité des fruits : mesure non destructive par spectroscopie proche infrarouge portable», *Revue suisse de viticulture, arboriculture et horticulture*, vol. 40, n° 3, p. 151–157. 7
- Cohen-Tannoudji, C., B. Diu et F. Laloë. 2018, *Mécanique Quantique- : Nouvelle édition*, vol. 2, EDP sciences. 7
- Connes, J. 1961, «Recherches sur la spectroscopie par transformation de fourier. iv. considerations generates sur le bruit dans la methode par transformation de fourier», *Rev. Opt*, vol. 40, n° 3, p. 116–140. 10
- Courtois, J. 2009, *Développements de systèmes multipassages pour application à la spectroscopie d'absorption : Cavity Ring Down Spectroscopy multimode et cellules à passages multiples*, thèse de doctorat. 14
- Crisp, D., R. Atlas, F.-M. Breon, L. Brown, J. Burrows, P. Ciais, B. Connor, S. Doney, I. Fung, D. Jacob et collab.. 2004, «The orbiting carbon observatory (oco) mission», *Advances in Space Research*, vol. 34, n° 4, p. 700–709. 6
- De Angelis, M., G. Gagliardi, L. Gianfrani et G. Tino. 1996, «Test of the symmetrization postulate for spin-0 particles», *Physical review letters*, vol. 76, n° 16, p. 2840. 7
- Debecker, I. 2006, *Développement de dispositifs de cavity ring down spectroscopy rapide pour la caractérisation d'écoulements transitoires et inhomogènes*, thèse de doctorat, Paris 11. 14

- Del'Haye, P., O. Arcizet, A. Schliesser, R. Holzwarth et T. J. Kippenberg. 2008, «Full stabilization of a microresonator-based optical frequency comb», *Physical Review Letters*, vol. 101, n° 5, p. 053 903. [19](#)
- Diddams, S. A. 2010, «The evolving optical frequency comb», *JOSA B*, vol. 27, n° 11, p. B51–B62. [22](#)
- Diddams, S. A., L. Hollberg et V. Mbele. 2007, «Molecular fingerprinting with the resolved modes of a femtosecond laser frequency comb», *Nature*, vol. 445, n° 7128, p. 627. [20](#), [21](#)
- Diels, J.-C. et W. Rudolph. 2006, *Ultrashort laser pulse phenomena*, Elsevier. [17](#)
- Ding, Y., V. Perevalov, S. Tashkun, J.-L. Teffo, S. Hu, E. Bertseva et A. Campargue. 2003, «Weak overtone transitions of n₂o around 1.05 μm by iclas-vecsel», *Journal of Molecular Spectroscopy*, vol. 220, n° 1, p. 80–86. [7](#)
- Dutt, A., C. Joshi, X. Ji, J. Cardenas, Y. Okawachi, K. Luke, A. L. Gaeta et M. Lipson. 2018, «On-chip dual-comb source for spectroscopy», *Science advances*, vol. 4, n° 3, p. e1701 858. [19](#)
- Fellgett, P. 1958, «Apropos de la théorie du spectrometre interferentiel multiplex», *J. Phys. Radium*, vol. 19, p. 187–191. [12](#)
- Finneran, I. A., J. T. Good, D. B. Holland, P. B. Carroll, M. A. Allodi et G. A. Blake. 2015, «Decade-spanning high-precision terahertz frequency comb», *Physical review letters*, vol. 114, n° 16, p. 163 902. [19](#)
- Foltynowicz, A., T. Ban, P. Maslowski, F. Adler et J. Ye. 2011, «Quantum-noise-limited optical frequency comb spectroscopy», *Physical review letters*, vol. 107, n° 23, p. 233 002. [21](#)
- Foreman, S. M., D. J. Jones et J. Ye. 2003, «Flexible and rapidly configurable femtosecond pulse generation in the mid-ir», *Optics letters*, vol. 28, n° 5, p. 370–372. [19](#)
- Gherman, T. et D. Romanini. 2002, «Mode-locked cavity-enhanced absorption spectroscopy», *Optics Express*, vol. 10, n° 19, p. 1033–1042. [20](#)
- Gohle, C., T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz et T. W. Hänsch. 2005, «A frequency comb in the extreme ultraviolet», *Nature*, vol. 436, n° 7048, p. 234. [19](#)
- Guelachvili, G. 1977, «Near infrared wide-band spectroscopy with 27-mhz resolution», *Applied optics*, vol. 16, n° 8, p. 2097–2101. [13](#)
- Herriott, D. R. et H. J. Schulte. 1965, «Folded optical delay lines», *Applied Optics*, vol. 4, n° 8, p. 883–889. [14](#)
- Hilton, F., R. Armante, T. August, C. Barnet, A. Bouchard, C. Camy-Peyret, V. Capelle, L. Clarisse, C. Clerbaux, P.-F. Coheur et collab.. 2012, «Hyperspectral earth observation from iasi : Five years of accomplishments», *Bulletin of the American Meteorological Society*, vol. 93, n° 3, p. 347–370. [6](#)
- Hugi, A., G. Villares, S. Blaser, H. Liu et J. Faist. 2012, «Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser», *Nature*, vol. 492, n° 7428, p. 229. [19](#)

- Hyun, S., Y.-J. Kim, Y. Kim, J. Jin et S.-W. Kim. 2009, «Absolute length measurement with the frequency comb of a femtosecond laser», *Measurement Science and Technology*, vol. 20, n° 9, p. 095302. [22](#)
- Jacquet, P. 2011, *interferometrie avec des lasers femtosecondes infrarouges*, thèse de doctorat, Paris 11. [21](#)
- Kartaloglu, T., K. G. Köprülü, O. Aytür, M. Sundheimer et W. P. Risk. 1998, «Femtosecond optical parametric oscillator based on periodically poled ktiopo 4», *Optics letters*, vol. 23, n° 1, p. 61–63. [19](#)
- Kassi, S., C. Didriche, Keevin ans Lauzin, X. d. G. d. Vaernewijckb, A. Rizopoulos et M. Herman. 2010, «Demonstration of cavity enhanced ftr spectroscopy using a femtosecond laser absorption source», *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, vol. 75, n° 1, p. 142–145. [21](#)
- Keller, U. 1994, «Ultrafast all-solid-state laser technology», *Applied Physics B*, vol. 58, n° 5, p. 347–363. [17](#)
- Kourogi, M., K. Nakagawa et M. Ohtsu. 1993, «Wide-span optical frequency comb generator for accurate optical frequency difference measurement», *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 29, n° 10, p. 2693–2701. [18](#)
- Leindecker, N., A. Marandi, R. L. Byer et K. L. Vodopyanov. 2011, «Broadband degenerate opo for mid-infrared frequency comb generation», *Optics express*, vol. 19, n° 7, p. 6296–6302. [19](#)
- Li, C.-H., A. J. Benedikt, P. Fendel, A. G. Glenday, F. X. Kartner, D. F. Phillips, D. Sasselov, A. Szentgyorgyi et R. L. Walsworth. 2008, «A laser frequency comb that enables radial velocity measurements with precision of 1 cm s⁻¹», *Nature*, vol. 452, n° 7187, p. 610. [22](#)
- Link, S. M., D. J. Maas, D. Waldburger et U. Keller. 2017, «Dual-comb spectroscopy of water vapor with a free-running semiconductor disk laser», *Science*, vol. 356, n° 6343, p. 1164–1168. [19](#)
- Loewenstein, E. V. 1966, «The history and current status of fourier transform spectroscopy», *Applied Optics*, vol. 5, n° 5, p. 845–854. [12](#)
- Maidment, L., P. G. Schunemann et D. T. Reid. 2016, «Molecular fingerprint-region spectroscopy from 5 to 12 μm using an orientation-patterned gallium phosphide optical parametric oscillator», *Optics letters*, vol. 41, n° 18, p. 4261–4264. [19](#)
- Mandon, J., G. Guelachvili, N. Picqué, F. Druon et P. Georges. 2007, «Femtosecond laser fourier transform absorption spectroscopy», *Optics letters*, vol. 32, n° 12, p. 1677–1679. [20](#)
- Meek, S. A., A. Poisson, G. Guelachvili, T. W. Hänsch et N. Picqué. 2014, «Fourier transform spectroscopy around 3 μm with a broad difference frequency comb», *Applied Physics B*, vol. 114, n° 4, p. 573–578. [19](#)
- Millot, G., S. Pitois, M. Yan, T. Hovhannisyan, A. Bendahmane, T. W. Hänsch et N. Picqué. 2016, «Frequency-agile dual-comb spectroscopy», *Nature Photonics*, vol. 10, n° 1, p. 27. [19](#)

- Moore, D. S. 2004, «Instrumentation for trace detection of high explosives», *Review of Scientific Instruments*, vol. 75, n° 8, p. 2499–2512. [7](#)
- Muraviev, A., V. Smolski, Z. Loparo et K. Vodopyanov. 2018, «Massively parallel sensing of trace molecules and their isotopologues with broadband subharmonic mid-infrared frequency combs», *Nature Photonics*, vol. 12, n° 4, p. 209. [19](#)
- Okubo, S., K. Iwakuni, H. Inaba, K. Hosaka, A. Onae, H. Sasada et F.-L. Hong. 2015, «Ultra-broadband dual-comb spectroscopy across 1.0–1.9 μm », *Applied Physics Express*, vol. 8, n° 8, p. 082402. [19](#)
- Pasternak, F., P. Bernard, L. Georges et V. Pascal. 2017, «The microcarb instrument», dans *International Conference on Space Optics—ICSO 2016*, vol. 10562, International Society for Optics and Photonics, p. 105621P. [6](#)
- Peeters, R., G. Berden, A. Apituley et G. Meijer. 2000, «Open-path trace gas detection of ammonia based on cavity-enhanced absorption spectroscopy», *Applied Physics B*, vol. 71, n° 2, p. 231–236. [14](#)
- Picqué, N. et T. W. Hänsch. 2019, «Frequency comb spectroscopy», *Nat. Photonics*, vol. 13, n° 3, p. 146–157. [19](#), [20](#)
- Pierangelo, C., B. Millet, F. Esteve, M. Alpers, G. Ehret, P. Flamant, S. Berthier, F. Gibert, O. Chomette, D. Edouart et collab.. 2016, «Merlin (methane remote sensing lidar mission) : An overview», dans *EPJ Web of Conferences*, vol. 119, EDP Sciences, p. 26001. [6](#)
- Reichert, J., R. Holzwarth, T. Udem et T. W. Hänsch. 1999, «Measuring the frequency of light with mode-locked lasers», *Optics communications*, vol. 172, n° 1-6, p. 59–68. [19](#)
- Rösch, M., M. Beck, M. J. Süess, D. Bachmann, K. Unterrainer, J. Faist et G. Scalari. 2018, «Heterogeneous terahertz quantum cascade lasers exceeding 1.9 thz spectral bandwidth and featuring dual comb operation», *Nanophotonics*, vol. 7, n° 1, p. 237–242. [19](#)
- Saitoh, T., M. Kourogi et M. Ohtsu. 1996, «Expansion of span-width of an optical frequency comb using a higher harmonic wave modulation», *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 8, n° 10, p. 1379–1381. [18](#)
- Schiller, S. 2002, «Spectrometry with frequency combs», *Optics letters*, vol. 27, n° 9, p. 766–768. [22](#)
- Seidel, M., X. Xiao, S. A. Hussain, G. Arisholm, A. Hartung, K. T. Zawilski, P. G. Schunemann, F. Habel, M. Trubetskov, V. Pervak et collab.. 2018, «Multi-watt, multi-octave, mid-infrared femtosecond source», *Science advances*, vol. 4, n° 4, p. eaaq1526. [19](#)
- Siegman, A. E. 1986, «Lasers university science books», *Mill Valley, CA*, vol. 37, n° 208, p. 169. [7](#)
- Sierks, J., T. Latz, V. Baev et P. Toschek. 1996, «Detection of a single atom by laser intracavity absorption», dans *EQEC'96. 1996 European Quantum Electronic Conference*, IEEE, p. 83–83. [14](#)
- Smith, B. C. 2011, *Fundamentals of Fourier transform infrared spectroscopy*, CRC press. [11](#)
- Spence, D. E., P. N. Kean et W. Sibbett. 1991, «60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser», *Optics letters*, vol. 16, n° 1, p. 42–44. [19](#)

- Spence, T., C. Harb, B. Paldus, R. N. Zare, B. Willke et R. Byer. 2000, «A laser-locked cavity ring-down spectrometer employing an analog detection scheme», *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, n° 2, p. 347–353. [14](#)
- Sterczewski, L. A., J. Westberg, C. L. Patrick, C. S. Kim, M. Kim, C. L. Canedy, W. W. Bewley, C. D. Merritt, I. Vurgaftman, J. R. Meyer et collab.. 2017, «Multiheterodyne spectroscopy using interband cascade lasers», *Optical Engineering*, vol. 57, n° 1, p. 011 014. [19](#)
- Suh, M.-G. et K. J. Vahala. 2018, «Soliton microcomb range measurement», *Science*, vol. 359, n° 6378, p. 884–887. [22](#)
- Suh, M.-G., Q.-F. Yang, K. Y. Yang, X. Yi et K. J. Vahala. 2016, «Microresonator soliton dual-comb spectroscopy», *Science*, vol. 354, n° 6312, p. 600–603. [19](#)
- Thorpe, M. J., D. D. Hudson, K. D. Moll, J. Lasri et J. Ye. 2007, «Cavity-ringdown molecular spectroscopy based on an optical frequency comb at 1.45-1.65 μm », *Optics letters*, vol. 32, n° 3, p. 307–309. [20](#)
- Thorpe, M. J., K. D. Moll, R. J. Jones, B. Safdi et J. Ye. 2006, «Broadband cavity ringdown spectroscopy for sensitive and rapid molecular detection», *Science*, vol. 311, n° 5767, p. 1595–1599. [20](#)
- Todd, M., R. Provencal, T. Owano, B. Paldus, A. Kachanov, K. Vodopyanov, M. Hunter, S. Coy, J. Steinfield et J. Arnold. 2002, «Application of mid-infrared cavity-ringdown spectroscopy to trace explosives vapor detection using a broadly tunable (6–8 μm) optical parametric oscillator», *Applied Physics B*, vol. 75, n° 2-3, p. 367–376. [7](#)
- Udem, T., J. Reichert, R. Holzwarth et T. Hänsch. 1999, «Absolute optical frequency measurement of the cesium d 1 line with a mode-locked laser», *Physical review letters*, vol. 82, n° 18, p. 3568. [19](#)
- Villares, G., A. Hugi, S. Blaser et J. Faist. 2014, «Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs», *Nature communications*, vol. 5, p. 5192. [19](#)
- Vodopyanov, K., E. Sorokin, I. T. Sorokina et P. Schunemann. 2011, «Mid-ir frequency comb source spanning 4.4–5.4 μm based on subharmonic gaas optical parametric oscillator», *Optics letters*, vol. 36, n° 12, p. 2275–2277. [19](#)
- Waechter, H., J. Mohn, B. Tuzson, L. Emmenegger et M. W. Sigrist. 2008, «Determination of n 2 o isotopomers with quantum cascade laser based absorption spectroscopy», *Optics express*, vol. 16, n° 12, p. 9239–9244. [7](#)
- White, J. U. 1942, «Long optical paths of large aperture», *JOSA*, vol. 32, n° 5, p. 285–288. [14](#)
- Wiener, N. et collab.. 1930, «Generalized harmonic analysis», *Acta mathematica*, vol. 55, p. 117–258. [23](#)
- Ycas, G., F. R. Giorgetta, E. Baumann, I. Coddington, D. Herman, S. A. Diddams et N. R. Newbury. 2018, «High-coherence mid-infrared dual-comb spectroscopy spanning 2.6 to 5.2 μm », *Nature Photonics*, vol. 12, n° 4, p. 202. [19](#)
- Ye, J. et S. T. Cundiff. 2005, *Femtosecond optical frequency comb : principle, operation and applications*, Springer Science & Business Media. [17](#)

Yoshida, Y., H. Oshio, Y. Someya, H. Ohyama, A. Kamei, I. Morino, O. Uchino, M. Saito, H. Noda et T. Matsunaga. 2019, «Atmospheric carbon dioxide and methane observations by gosat and gosat-2», dans *Fourier Transform Spectroscopy*, Optical Society of America, p. FTu2B-4. [6](#)

Yu, M., Y. Okawachi, A. G. Griffith, N. Picqué, M. Lipson et A. L. Gaeta. 2018, «Silicon-chip-based mid-infrared dual-comb spectroscopy», *Nature communications*, vol. 9, n° 1, p. 1869. [19](#)

Zhu, Z. et G. Wu. 2018, «Dual-comb ranging», *Engineering*. [22](#)

Chapitre 2

Analyse du potentiel et des limitations d'un spectromètre de Fourier à deux peignes de fréquences disponible au laboratoire

Sommaire

2.1 Présentation du système et objectifs	40
2.1.1 Description du système	40
2.1.2 Objectifs de mesure lors de cette thèse	43
2.2 Stabilisation des lasers peigne de fréquences	43
2.2.1 Stabilisation des lasers peignes de fréquences et conséquences en DCS	44
2.2.2 Asservissement des fréquences de répétition appliqué à notre système	49
2.2.3 Asservissement des fréquences d'offset appliqué à notre système	52
2.2.4 Conséquences du niveau de stabilisation obtenu	58
2.2.5 Correction post acquisition et moyennage des spectres d'absorption	60
2.3 Protocole de mesure, erreurs et pistes d'amélioration	63
2.3.1 Source d'erreur et quantification sur l'exemple de l'acétylène	63
2.3.2 Protocole de mesure	78
2.3.3 Pistes d'amélioration du système	79
2.4 Mise en pratique du protocole de mesure sur des cellules de gaz	80
2.4.1 Mesure en cellule d'acétylène	80
2.4.2 Mesure en cellule de dioxyde de carbone	84
2.5 Conclusion	86
2.6 Références	87

Dans ce chapitre, nous commençons par présenter notre système de spectroscopie par peignes de fréquences disponible au laboratoire. Nous décrivons ensuite son potentiel et ses limitations. De ce bilan, nous définissons un protocole de mesure pour les mesures à réaliser. Nous présentons une mesure mono-espèce réalisée sur cellule de gaz simple dont les paramètres de pression, température et concentration sont stables et connus. Nous terminons en présentant une mesure en cellule multi-passages sur une espèce d'intérêt pour la thèse : le dioxyde de carbone.

2.1 Présentation du système et objectifs

2.1.1 Description du système

Les lasers peignes de fréquences employés dans cette thèse sont deux lasers à modes verrouillés en phase vendus par la société Allemande MenloSystems GmbH, ces lasers sont également utilisés dans les travaux sur la spectroscopie de Fourier conduit au NIST et à l'institut Max Planck. La cavité laser utilisée est une cavité fibrée en anneau de 1,5 m de longueur conduisant à une fréquence de répétition des impulsions de 100 MHz. Le milieu amplificateur est une fibre dopée à l'Erbium pompée par une diode laser émettant à 980 nm. La fréquence centrale d'émission du laser se trouve dans le proche infrarouge à $1,55 \mu\text{m}$ (6450 cm^{-1}). La figure 2.1 représente le schéma de principe de nos lasers et la figure 2.2 représente le schéma de la cavité laser.

La position de l'un des miroirs de la cavité laser est contrôlée par une céramique pié-

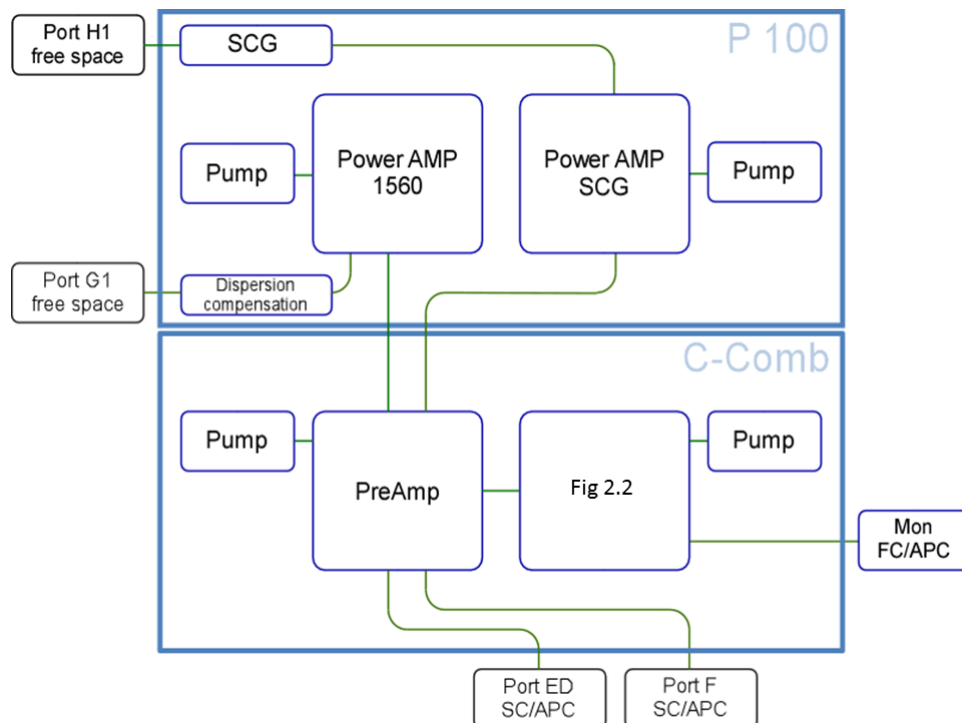


FIGURE 2.1 – Schéma de principe du laser peigne de fréquences tiré du manuel fourni par Menlo-System.

zoélectrique et un moteur pas à pas. Le moteur pas à pas permet une grande course et donc une grande plage d'ajustement alors que la piézoélectrique permet un ajustement plus fin de la fréquence de répétition du laser. Le mécanisme de verrouillage de modes

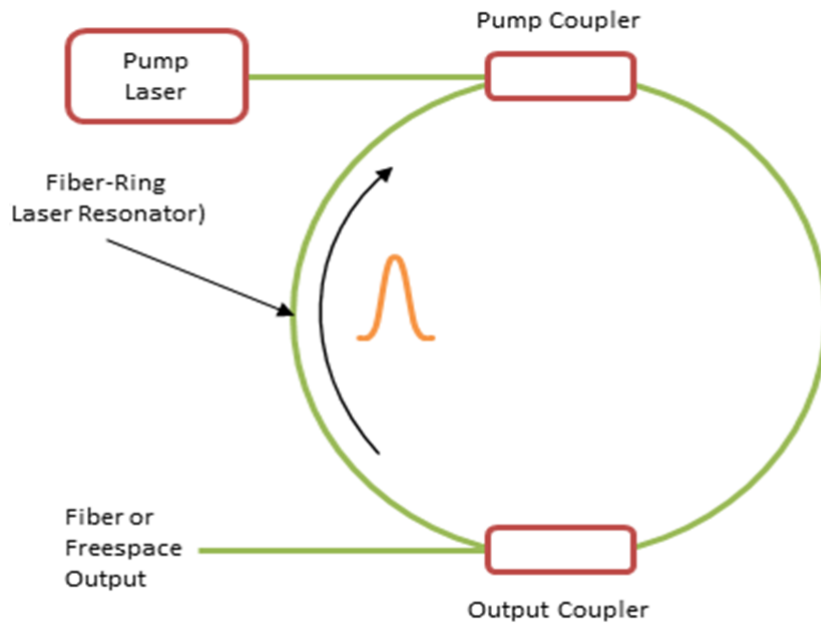


FIGURE 2.2 – Schéma de la cavité laser du peigne de fréquences tiré du manuel fourni par Menlo-System.

en phase utilisé ici est passif, basé sur la polarisation. Lors de sa propagation dans une fibre optique l'onde lumineuse est sujette à une redistribution constante de son champ sur les deux axes propres de la fibre. Les effets qui en sont responsables sont les effets linéaires de biréfringence de la fibre mais aussi des effets non linéaires Kerr et également la modulation de phase croisée. L'ensemble de ces phénomènes induisent une rotation de la polarisation de l'onde au cours de sa propagation dans la fibre optique. Ces effets non linéaires étant dépendants de l'intensité de l'onde, celle-ci voit alors une différence de rotation de polarisation entre sa partie la plus intense et sa partie moins intense (Figure 2.3). Grâce à un polariseur, un filtrage en polarisation est effectué pour réaliser une sélection en intensité. Avec cette méthode, nous choisissons de garder uniquement les fluctuations les plus intenses du champ ce qui conduit à générer des impulsions.

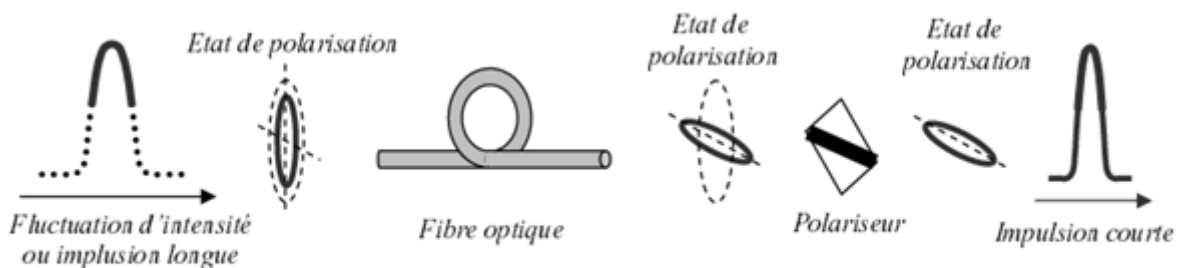


FIGURE 2.3 – Schéma de principe de la rotation linéaire de polarisation et du filtrage par polariseur. L'association fibre optique et polariseur permet de filtrer uniquement les impulsions courtes.

Ce système de verrouillage de modes en phase conduit à des impulsions d'environ 70 fs de largeur temporelle. Les figures 2.4 et 2.6 montrent les autocorrélations respectives

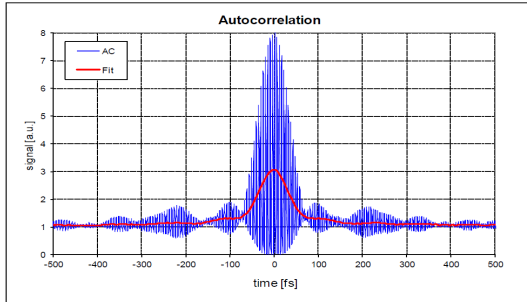


FIGURE 2.4 – Autocorrélation du champ électrique issu du premier laser peigne de fréquences noté FC1

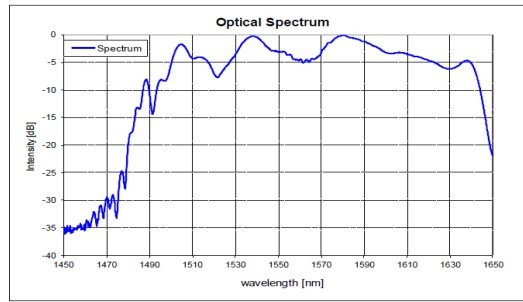


FIGURE 2.5 – Spectre d'émission du premier laser peigne de fréquences.

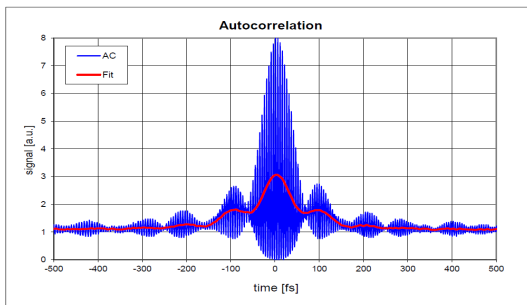


FIGURE 2.6 – Autocorrélation du champ électrique issu du second laser peigne de fréquences noté FC2

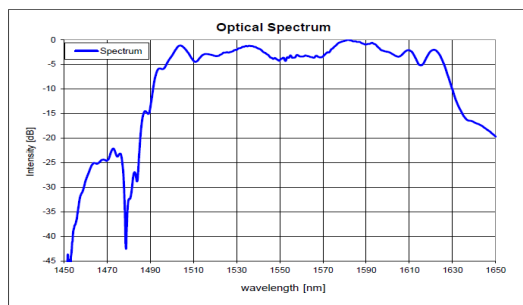


FIGURE 2.7 – Spectre d'émission du second laser peigne de fréquences.

des lasers 1 et 2, ces courbes sont issues du manuel MenloSystem.

Ce modèle de laser possède deux étages d'amplification permettant de passer d'une puissance moyenne de 10 mW à 320 mW en sortie du laser. Le spectre du premier laser peigne de fréquences et du second sont représentés sur les figures 2.5 et 2.7. Les spectres sont centrés sur 1555 nm et s'étalent sur 170 nm à -20 dB et environ 80 nm à -3 dB. Après amplification, les impulsions sont divisées en deux parties. L'une est envoyée vers la sortie G1 qui correspond au peigne de fréquences, l'autre est envoyée dans une fibre hautement non linéaire puis vers la sortie H1. Cette seconde sortie H1 permet d'obtenir un supercontinuum obtenu à partir du même oscillateur. Le passage d'impulsions femtosecondes dans cette fibre génère de nombreux effets non linéaires conduisant à un élargissement spectral du peigne de fréquences. Les spectres d'émission du premier supercontinuum et du second sont représentés sur les figures 2.8 et 2.9. Les spectres sont très irréguliers et s'étalent de 1050 nm à 2100 nm à -10 dB pour le premier et de 975 nm à 2300 nm pour le second, pour une puissance optique totale d'environ 200 mW.

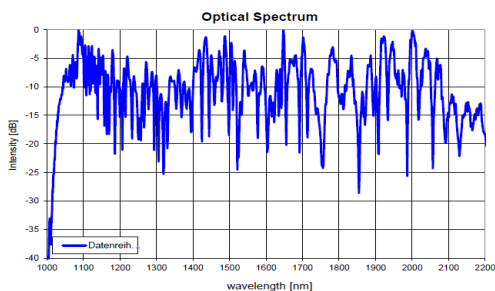


FIGURE 2.8 – Spectre du premier supercontinuum

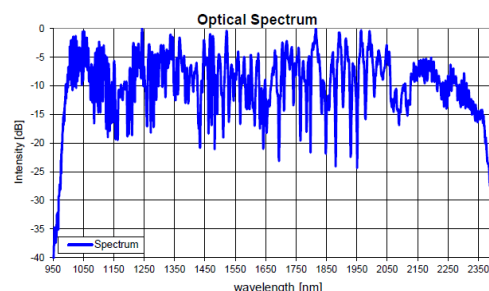


FIGURE 2.9 – Spectre du second supercontinuum

2.1.2 Objectifs de mesure lors de cette thèse

L'objectif de cette thèse est de réaliser des mesures de spectrométrie d'absorption de gaz à effet de serre. Les raies sondées sont à pression et température atmosphériques. La largeur à mi-hauteur (FWHM) des raies d'absorption à pression et température atmosphériques est d'environ 10 GHz. Cette valeur nous contraint à obtenir une résolution spectrale plus fine. La figure 2.10 représente les raies d'absorption appartenant à des gaz à effet de serre et à la bande spectrale d'émission de nos lasers. Les gaz sondables sont le méthane, le dioxyde de carbone et la vapeur d'eau. Le méthane présente les raies d'absorption les plus faibles et la vapeur d'eau les raies d'absorption les plus fortes. L'objectif de la thèse est d'observer les raies d'absorption de la vapeur d'eau puis celles du dioxyde de carbone, qui nécessitent des longueurs d'interaction moins grandes que le méthane.

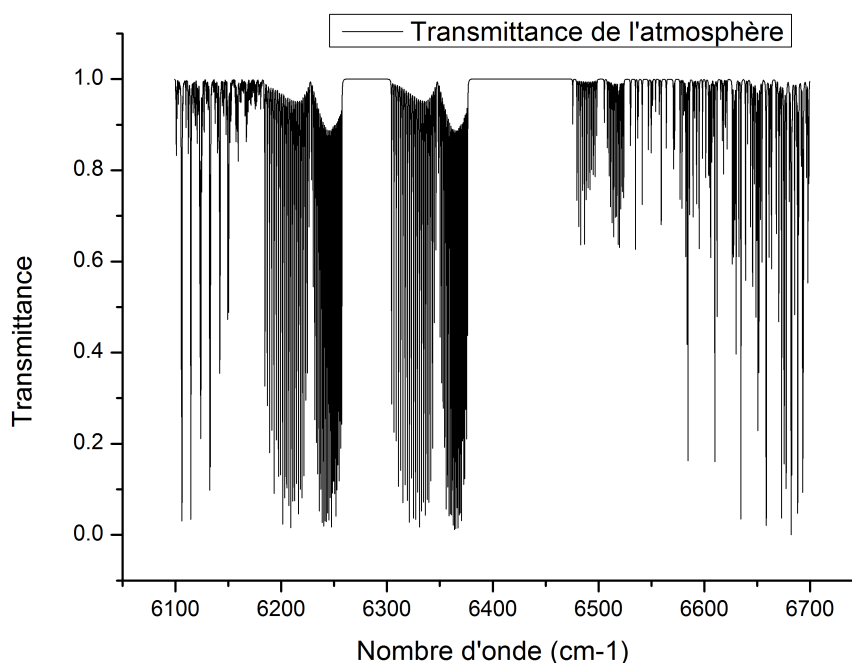


FIGURE 2.10 – Transmittance de l'atmosphère sur la bande spectrale d'émission de nos lasers 6100 - 6700 cm^{-1} soit 1,49 - 1,64 μm . Les forces de raies ne sont ici pas respectées, pour rendre compte des gaz présents sur cette bande spectrale. De 6100-6170 cm^{-1} nous avons du méthane, de 6170-6550 cm^{-1} nous avons des raies de dioxyde de carbone et de 6550-6700 cm^{-1} des raies de vapeur d'eau.

2.2 Stabilisation des lasers peigne de fréquences

Nous avons vu au chapitre 1 que la mesure d'un interférogramme en spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences permet de remonter à la concentration intégrée sur le trajet parcouru par les faisceaux lasers. La transformation de Fourier de l'interférogramme nous donne la densité spectrale de puissance des sources lasers affectée des atténuations dues à l'absorption du milieu sondé. Ce spectre d'absorption peut être exploité via la largeur et la profondeur des raies d'absorption pour en déduire les paramètres de pression, température, concentration du milieu sondé. Cette mesure peut être

entachée de bruit, limitant l'absorption minimale détectable et la précision de la mesure. Plusieurs sources d'erreur existent, la stabilisation des paramètres Δf_0 et Δf_{rep} lors de l'acquisition, l'obtention de la transmittance du milieu sondé, la précision de l'échelle en longueur d'onde ou encore la précision sur la connaissance de la longueur d'interaction entre l'échantillon et les faisceaux. Dans cette section, nous détaillons l'impact des fluctuations de chacun des degrés de liberté sur les spectres d'absorption obtenus par DCS. Puis nous présentons le niveau de stabilisation obtenue ainsi que les conséquences sur les mesures DCS.

2.2.1 Stabilisation des lasers peignes de fréquences et conséquences en DCS

La contrainte majeure du spectromètre de Fourier à deux peignes de fréquences est la stabilité relative des deux lasers. Le laser peigne de fréquences possède deux degrés de liberté, sa fréquence de répétition f_{rep} et sa fréquence d'offset f_0 . Les fréquences optiques sont totalement définies par ces deux paramètres :

$$\nu_n = f_0 + n f_{rep} \quad (2.1)$$

Si les degrés de liberté fluctuent au cours du temps, les positions des dents vont fluctuer. Une fluctuation de f_{rep} va modifier l'espacement entre les dents du peignes. Visuellement le peigne va se dilater ou se compresser comme sur la figure 2.11 tirée de [Ye et Cundiff, 2005]. Pour une cavité linéaire la fréquence de répétition étant reliée à la longueur l de la cavité par l'équation $f_{rep} = c/2l$. f_{rep} se montre donc sensible aux fluctuations de température qui vont dilater ou compresser la longueur de cavité mais également aux vibrations acoustiques. Une fluctuation δl de la longueur de la cavité entraîne une fluctuation δf_{rep} de la fréquence de répétition :

$$\delta f_{rep} = f_{rep} \frac{\delta l}{l} \quad (2.2)$$

Entânant une fluctuation $\delta \nu_n$ de la dent optique numéro n :

$$\delta \nu_n = n \delta f_{rep} \quad (2.3)$$

$$\delta \nu_n = n f_{rep} \frac{\delta l}{l} \quad (2.4)$$

Avec n de l'ordre de grandeur 10^6 pour le proche infrarouge, une longueur de cavité de 1,5 m et une f_{rep} de 100 MHz, il suffit d'une fluctuation δl d'environ 1,5 μm de la longueur de cavité pour engendrer un décalage d'environ 100 MHz de la dent numéro n . La dent n se décale alors en fréquence d'une valeur supérieure à la distance entre deux dents consécutives. Une fluctuation de la fréquence porteuse-enveloppe f_0 va décaler l'ensemble des dents de la valeur f_0 , le spectre effectue une simple translation comme illustrée sur la figure 2.11. On rappelle que :

$$f_0 = \frac{\Delta \Phi_{ce} f_{rep}}{2\pi} \quad (2.5)$$

avec :

$$\Delta \Phi_{ce} = \left(\frac{1}{\nu_g} - \frac{1}{\nu_\phi} \right) 2\pi \nu_p \quad (2.6)$$

ν_g et ν_ϕ dépendent de l'indice optique du milieu amplificateur. f_0 va donc être sensible aux fluctuations thermiques du milieu amplificateur qui va modifier l'indice optique mais sera aussi sensible aux variations de la puissance de pompe, qui par effet Kerr, modifie

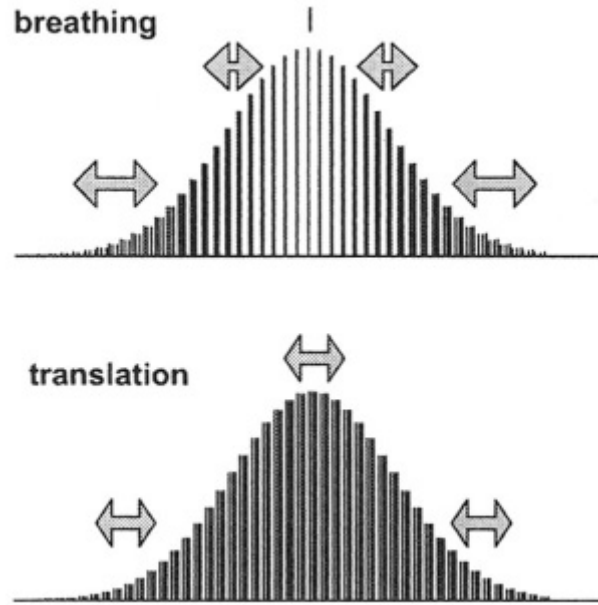


FIGURE 2.11 – Représentation des effets de fluctuations des degrés de liberté d'un laser peigne de fréquences d'un point de vue spectral. Une fluctuation de f_{rep} induit une compression ou une dilatation du peigne. Une fluctuation de f_0 induit une translation de l'ensemble des dents du peigne. Figure tirée de [Ye et Cundiff, 2005]

l'indice optique du milieu. f_0 étant fonction de f_{rep} , les fluctuations de f_{rep} vont également impacter la fréquence d'offset. Ces deux paramètres sont donc liés.

Dans le cas de la spectroscopie à deux peignes de fréquences, l'interférogramme issu du battement entre les deux peignes est fortement affecté par les phénomènes d'instabilité. Les modifications du spectre d'absorption induites par ces instabilités sont appelées les erreurs de phase. Pour limiter ces erreurs de phase les deux lasers doivent être stabilisés. Les contraintes de stabilisation sont significativement plus exigeantes que celles imposées en métrologie des fréquences car elles requièrent une stabilité pour les deux degrés de libertés des sources. De plus, les deux sources doivent être stabilisées car c'est la stabilisation relative des deux peignes qui importe. En effet les dents qui composent le peigne radio-fréquence sont définies par :

$$f_m = \Delta f_0 + m\Delta f_{rep} \quad (2.7)$$

En minimisant les fluctuations de $f_{0,1}$, $f_{0,2}$, $f_{rep,1}$ et $f_{rep,2}$ on minimise les fluctuations de Δf_0 et de Δf_{rep} . Les fluctuations de Δf_{rep} ou de Δf_0 n'auront pas le même effet sur le peigne RF. Notons $\delta\Delta f_{rep}$ une fluctuation de Δf_{rep} et $\sigma\Delta f_{rep}$ l'écart-type des fluctuations de Δf_{rep} . Notons Δn la largeur spectrale du spectre du peigne de fréquences. $\Delta n = n_{max} - n_{min}$ correspond au nombre de dents du peigne avec n_{min} la dent de plus basse fréquence et n_{max} la dent de plus haute fréquence. Une fluctuation de Δf_{rep} entraîne à la fois un élargissement du spectre RF, dont la nouvelle largeur spectrale $\Delta n'$ s'écrit :

$$\Delta n' = \Delta n \times \delta\Delta f_{rep} \quad (2.8)$$

Cette fluctuation entraîne également un décalage de l'ensemble du spectre d'une valeur égale à :

$$n_{min} \times \delta\Delta f_{rep} \quad (2.9)$$

La figure 2.12 représente 3 spectres d'absorption simulés obtenus par spectroscopie à deux peignes de fréquences, chacun des spectres est acquis avec un paramètre Δf_{rep} différent.

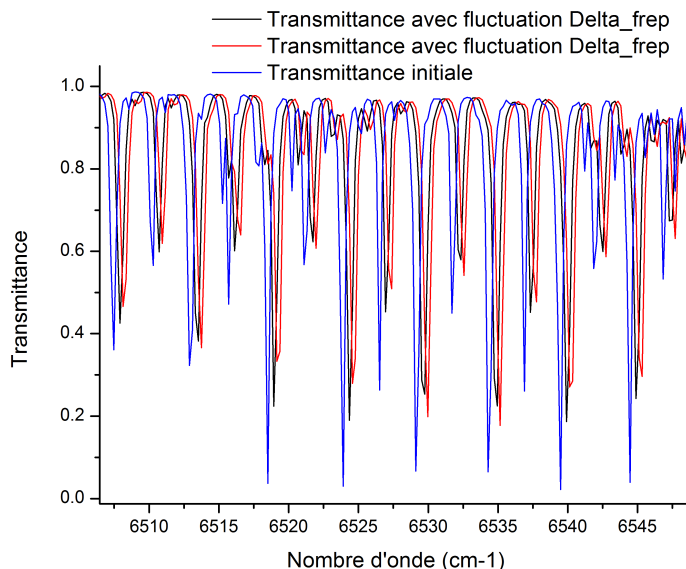


FIGURE 2.12 – Fluctuation du paramètre Δf_{rep} . Les raies d'absorption ne se superposent plus à cause du décalage et de l'élargissement induit par la fluctuation de Δf_{rep} . Ici $\Delta f_{rep} = 220 \text{ Hz} + \delta$ avec δ tiré aléatoirement entre $[-1,5 \times 10^{-2}; +1,5 \times 10^{-2}] \text{ Hz}$. Cette simulation est réalisée en considérant une cellule de 10 cm à 760 Torr, 300 K avec 10^{19} cm^{-3} d'acétylène.

Si Δf_{rep} fluctue au cours de l'acquisition d'un interférogramme, le spectre obtenu sera distordu. Cette distortion est due à un échantillonnage non linéaire en $\delta\tau$ de l'interférogramme, on rappelle que $\delta\tau$ est fonction de Δf_{rep} . Cet effet est comparable à la fluctuation de la vitesse de déplacement du miroir mobile en spectroscopie de Fourier traditionnelle.

Une fluctuation de Δf_0 aura pour effet de décaler l'ensemble du spectre RF de la valeur de Δf_0 tout comme une fluctuation de f_0 modifie le spectre optique sur la figure 2.11. La figure 2.13 représente 3 spectres d'absorption obtenus par spectroscopie à deux peignes de fréquences, chacun des spectres est acquis avec un paramètre Δf_0 différent.

Si Δf_0 fluctue au cours de l'acquisition d'un interférogramme, le spectre obtenu après transformation de Fourier sera également distordu. La valeur de Δf_0 n'étant pas commune à chacun des points de l'interférogramme, le spectre sera brouillé.

Etat de l'art des méthodes d'asservissement et corrections des instabilités

Pour augmenter la cohérence mutuelle τ des peignes de fréquences trois approches existent :

- mettre en place une boucle de rétroaction active sur les paramètres responsables des erreurs de phases, c'est à dire la fréquence de répétition et la fréquence d'offset [Coddington et collab., 2008].

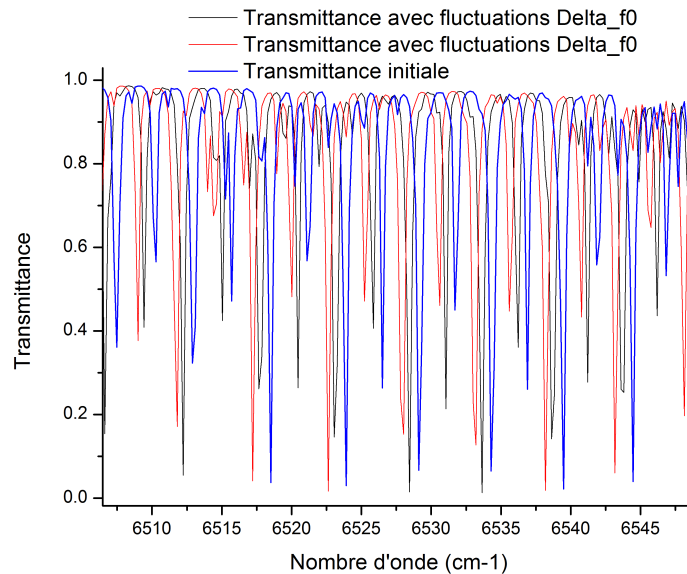


FIGURE 2.13 – Fluctuation de Δf_0 . Les raies d'absorption ne se superposent plus à cause du décalage induit par la fluctuation de Δf_0 . Ici $\Delta f_0 = 1 \text{ MHz} + \delta$ avec δ tiré aléatoirement entre $[-1,5 \times 10^5; +1,5 \times 10^5]$ Hz. Cette simulation est réalisée avec une cellule de 10 cm à 760 Torr, 300 K avec 10^{19} cm^{-3} d'acétylène.

- appliquer une correction des erreurs de phase en enregistrant les signaux d'erreurs en même temps que l'interférogramme. Les signaux d'erreurs sont les fluctuations des fréquences de répétition et des fréquences d'offset. L'interférogramme est ensuite traité par rééchantillonnage. [Roy et collab., 2012].
- mettre en place un échantillonnage adaptatif de l'interférogramme en utilisant les signaux d'erreurs pour générer une nouvelle horloge pour l'échantillonnage [Ideguchi et collab., 2014].

Dans ces trois cas, chacun des deux peignes est comparé à une paire de lasers continus de référence. La comparaison génère deux paires de signaux d'erreur qui reflètent les fluctuations des degrés de liberté des peignes. La méthode de rétroaction utilise ces signaux d'erreur pour stabiliser la phase des deux peignes et maintenir la cohérence mutuelle des lasers. Cette méthode ne nécessite pas de correction des interférogrammes. Jusqu'à présent la cohérence de deux lasers peignes de fréquences pouvait être maintenue jusqu'à environ une seconde. Récemment l'équipe de Nathalie Picqué a mis en place un système d'asservissement de la fréquence d'offset permettant de maintenir la cohérence sur plus de 30 minutes [Chen et collab., 2019]. Les deux autres approches permettent de réaliser ce qu'on appelle du moyennage cohérent, c'est à dire que la cohérence mutuelle des lasers se dégrade au delà de 1 seconde mais que cette dégradation est compensée par un traitement numérique de l'interférogramme. L'approche numérique consiste à enregistrer les signaux d'erreurs en parallèle de l'interférogramme pour ensuite retirer les erreurs de phases en rééchantillonnant l'interférogramme [Roy et collab., 2012]. La dernière méthode consiste à injecter ces signaux d'erreurs dans un système électronique permettant de corriger en temps réel les erreurs de phase et ajuster l'échantillonnage pour tenir compte des fluctuations de Δf_{rep} [Ideguchi et collab., 2014], [Roy et collab., 2012].

La méthode de stabilisation la plus commune consiste à asservir f_{rep} et f_0 . f_{rep} se contrôle en ajustant la longueur de la cavité laser l . En pratique, un des miroirs de la cavité

laser est monté sur une céramique piézo-électrique permettant de contrôler finement la longueur de cavité. Une boucle de rétroaction est utilisée pour comparer f_{rep} ou l'une de ses harmoniques à une horloge externe, cette méthode est utilisée dans ce travail de thèse.

En ce qui concerne la fréquence d'offset, c'est l'ajustement de la puissance de pompe qui est utilisé. La modification de la puissance de pompe dans le milieu amplificateur modifie son indice optique. Cela permet de modifier $\Delta\Phi$ et donc f_0 , mais cela modifie également f_{rep} . C'est pourquoi l'asservissement de f_{rep} doit être suffisamment robuste pour supporter ensuite les fluctuations induites par l'asservissement de f_0 . Une boucle de rétroaction est utilisée pour comparer la fréquence d'offset à une horloge externe. La fréquence d'offset peut être mesurée avec la méthode "f-2f" [Cundiff et Ye, 2005]. Cette méthode consiste à mesurer une dent basse fréquence du peigne optique notons la $\nu_n = f_0 + n f_{rep}$, il faut également mesurer la dent $2n$ tel que $\nu_{2n} = f_0 + 2n f_{rep}$ qui ne s'obtient que si le spectre optique s'étale sur au moins une octave. Un processus de doublage de fréquence de ν_n permet d'obtenir $2\nu_n = 2f_0 + 2n f_{rep}$ (génération de seconde harmonique). Le battement entre ces deux fréquences optiques nous permet d'isoler f_0 :

$$2\nu_n - \nu_{2n} = f_0 \quad (2.10)$$

La mesure de f_0 n'étant pas toujours possible par cette méthode en particulier si le peigne de fréquence ne couvre pas une octave, il est toutefois possible d'utiliser une méthode alternative en utilisant une fréquence optique de référence notée f_L . Cette fréquence doit être comprise dans le spectre d'émission du peigne à stabiliser. Il s'agit de faire battre cette référence optique avec une dent du peigne. On obtient le battement de la référence avec l'ensemble des dents du peigne. Il suffit d'utiliser un filtre passe bas de fréquence de coupure égale à $f_{rep}/2$ pour récupérer la fréquence de battement de plus basse fréquence notée $f_b = f_L - f_0 - n f_{rep}$. Cette fréquence correspond au battement entre la référence optique et la dent du peigne ayant la fréquence la plus proche de cette référence. L'écart-type des fluctuations de f_b notées σf_b correspondent aux fluctuations de la dent $\nu_n = f_0 + n f_{rep}$ si la référence est considérée stable devant les fluctuations du peigne. σf_b correspond alors à :

$$\sigma f_b = (\sigma f_0^2 + n(\sigma f_{rep})^2)^{1/2} \quad (2.11)$$

Si l'asservissement de f_{rep} est en place on peut considérer que $n\sigma f_{rep}$ est faible devant σf_0 . Dans ces conditions, les fluctuations de f_b correspondent aux fluctuations de f_0 et la mesure f-2f peut donc être évitée.

Une autre méthode consiste à s'affranchir totalement de la fréquence d'offset grâce à la génération de la différence de fréquences (DFG) à partir de deux portions spectrales du peigne. La fréquence d'offset étant commune aux deux portions elle va donc se soustraire après DFG mais elle contraint à réaliser la mesure de détection de gaz dans la gamme spectrale générée par DFG. Cette méthode est également utilisée pour générer des peignes de fréquences dans le moyen infrarouge Meek et collab. [2014], dans cet exemple un peigne basé sur une fibre dopée erbium émettant à 1,55 μm est utilisé pour générer un nouveau peigne à 3,1 μm .

D'autres méthodes mettent en jeu la correction des instabilités a posteriori plutôt que l'asservissement des degrés de libertés. En 2008 [Giaccari et collab., 2008] l'équipe de J.Genest mesure les fluctuations mutuelles des deux sources peignes de fréquences, celles ci sont extraites en mesurant le battement entre deux dents des peignes optiques à une longueur d'onde précise grâce à un filtre FBG (Filter Bragg Grating). Ces fluctuations mutuelles correspondent aux fluctuations de Δf_0 puisqu'ici les fréquences de répétitions sont asservies. Ces acquisitions servent ensuite à compenser les variations induites par les in-

stabilités des sources en appliquant une correction de phase et un nouveau tau d'échantillonnage pour mesurer l'interférogramme. Cette méthode est en réalité très similaire à l'utilisation d'une voie de référence avec un laser He-Ne en spectroscopie de Fourier traditionnelle. Cette voie de référence sert à rééchantillonner l'interférogramme en tenant compte des fluctuations de vitesse du miroir mobile. En 2014 [Ideguchi et collab., 2014], l'équipe de T.W Hänsch met en place une méthode basée sur le même principe permettant de supprimer les fluctuations de Δf_0 et de rééchantillonner l'interférogramme en fonction des fluctuations de Δf_{rep} le tout en temps réel.

2.2.2 Asservissement des fréquences de répétition appliqué à notre système

La figure 2.14 montre le schéma du système d'asservissement de la fréquence de répétition mis en place sur nos lasers. Cette électronique de contrôle est développée par MenloSystems GmbH. Le module génère à partir d'une horloge externe de référence de 10 MHz un signal à 1 GHz. L'horloge que nous avons utilisée est basée sur un quartz. Le signal ainsi généré à 1 GHz est mélangé à la 10^{ème} harmonique du signal enregistré par une photodiode recevant les impulsions du laser cadencées à environ 100 MHz. La fréquence

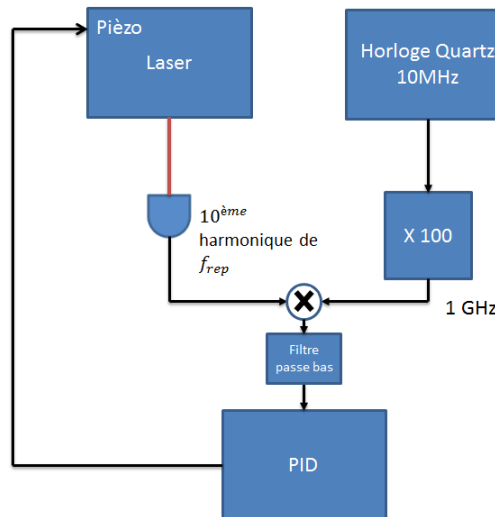


FIGURE 2.14 – Schéma de l'électronique d'asservissement de la fréquence de répétition du laser.

de répétition fluctuante peut se réécrire comme une constante plus un terme fluctuant δ :

$$f_{rep} = 100 \pm \delta \text{MHz} \quad (2.12)$$

La 10^{ème} harmonique de ce signal vaut donc : $1000 \pm 10\delta \text{MHz}$. La fréquence issue du battement entre la 10^{ème} harmonique et le signal à 1000 MHz nous donne : $10\delta \text{MHz}$. Ce signal est ensuite envoyé vers un système PID (Proportionnel, Intégral, Dérivatif). Le signal d'erreur est ensuite minimisé en jouant sur la tension appliquée à la piézoélectrique pour ajuster la longueur de la cavité laser. Comme représenté sur la figure 2.15 lorsque les fréquences de répétitions des lasers ne sont pas asservies Δf_{rep} peut balayer une grande plage de fréquences au cours du temps. Sur cette mesure d'environ 1 heure la valeur de Δf_{rep} initialement réglée vers 205 Hz monte jusque 245 Hz puis redescend vers 215 Hz.

Sur la figure 2.16 la variation temporelle de Δf_{rep} est représentée au cours d'une heure lorsque le système d'asservissement des fréquences de répétitions des deux lasers est en

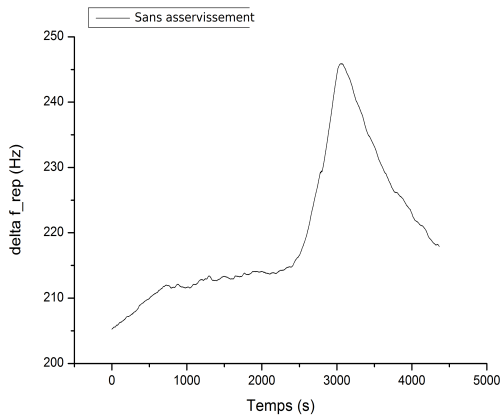


FIGURE 2.15 – Variation temporelle de Δf_{rep} sur une heure sans système d'asservissement.

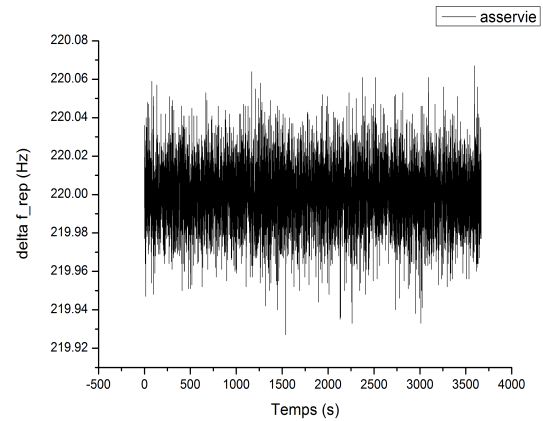


FIGURE 2.16 – Variation temporelle de Δf_{rep} sur une heure avec asservissement des fréquences de répétitions des deux lasers.

marche. Δf_{rep} initialement réglée sur 220 Hz demeure autour de cette valeur et reste comprise entre 219,93 Hz et 220,06 Hz. Ces mesures de variation de Δf_{rep} au cours du temps ont été réalisées avec un fréquencemètre utilisant une porte d'intégration notée τ d'environ 0,6 s, il n'a pas été possible d'évaluer les fluctuations de Δf_{rep} sur des temps plus courts. A partir de ces mesures, il est possible de tracer la déviation d'Allan du paramètre Δf_{rep} avec et sans système d'asservissement (Figure 2.17). Nous pouvons décrire la déviation d'Allan d'un paramètre comme l'écart-type de l'amplitude des fluctuations de ce paramètre à différentes échelles de temps. Il apparaît clairement que sur des temps supérieures à 0,6 secondes l'asservissement des fréquences de répétitions améliore la stabilité du paramètre Δf_{rep} .

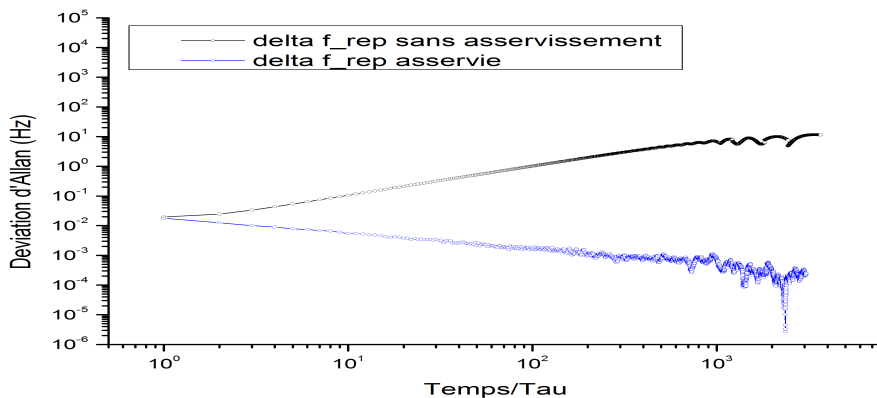


FIGURE 2.17 – Déviation d'Allan du paramètre Δf_{rep} asservie et non asservie.

Dans le but d'illustrer la qualité de la stabilisation obtenue et d'évaluer l'impact de la stabilisation de Δf_{rep} on simule une transmittance d'acétylène dans le domaine RF. La résolution est d'environ 13 kHz dans le domaine RF (correspondant à 6 GHz dans le domaine optique ce qui est typique de la résolution atteignable d'un système DCS non asservi), la résolution est liée à la durée d'acquisition de l'interférogramme (ici 80 μ s) et à la valeur de Δf_{rep} fixée ici à 220 Hz. Cette transmittance correspond à celle fournie par une cellule de gaz de 10 cm, à une pression de 760 torr, une température de 300 K et une

densité d'acétylène de 10^{19} cm^{-3} . La figure 2.18 représente la transmittance simulée dans le domaine RF. Nous simulons ensuite 4 autres transmittances ayant une autre valeur du

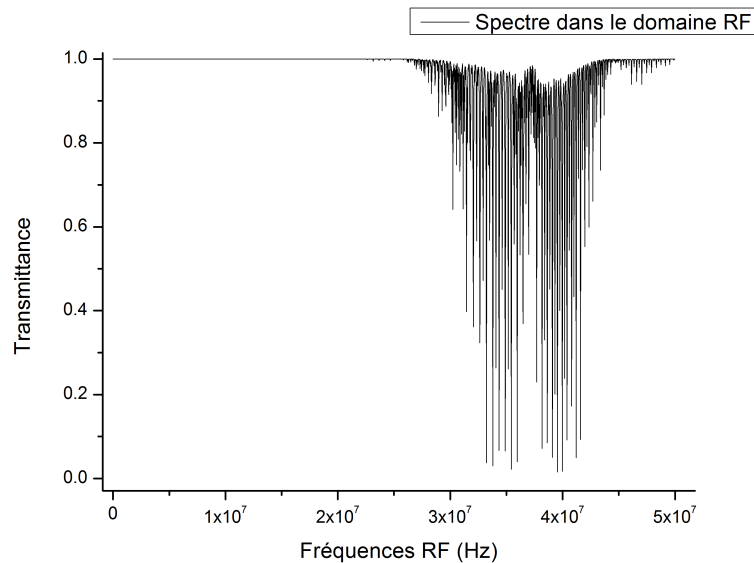


FIGURE 2.18 – Transmittance d'acétylène simulée dans le domaine RF

paramètre Δf_{rep} . Pour ces autres transmittances l'amplitude de fluctuation de Δf_{rep} est générée suivant une loi Gaussienne. L'utilisation d'une distribution Gaussienne se justifie par le fait que la pente de la déviation d'Allan (figure 2.17) vaut 0,5 lorsque le module d'asservissement fonctionne ce qui correspond à un bruit blanc gaussien. Nous utilisons donc une distribution gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type égal à la valeur de la déviation d'Allan sur une échelle de temps correspondant à la période entre deux interférogrammes successifs, c'est à dire $\frac{1}{\Delta f_{rep}}$ soit quelques milisecondes. Idéalement on voudrait mesurer la valeur de la déviation d'Allan sur cette échelle de temps. Cependant la porte d'intégration utilisée pour réaliser les variances d'Allan ne peut descendre en dessous de 0,6 s. Nous avons donc extrapolé la courbe de la déviation d'Allan qui s'ajuste avec une pente de 1/2, on obtient une valeur de $1,5 \cdot 10^{-2} \text{ Hz}$. La figure 2.19 représente donc 5 transmittances ayant des paramètres Δf_{rep} différents dûs à l'instabilité des lasers. La variation de la valeur de Δf_{rep} d'une acquisition à l'autre génère comme on l'a vu un décalage de l'ensemble du spectre en plus d'une contraction ou dilatation du spectre. Le moyennage de ces 5 transmittances est représentée sur la figure 2.20.

La transmittance obtenue est distordue et ne se superpose pas correctement à la transmittance initiale. Il est difficile d'inverser cette transmittance distordue. Il est toutefois possible d'obtenir une valeur de concentration en imposant les valeurs de pression, température et longueur d'interaction, on obtient une densité d'acétylène de $2,93 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Cette valeur est 3 fois inférieure à la densité initialement fixée dans cette simulation. L'erreur sur la concentration diminue en moyennant plus de spectres puisque la distribution de l'amplitude des fluctuations de Δf_{rep} suit une loi Gaussienne c'est à dire que l'écart-type des fluctuations de Δf_{rep} décroît en $\frac{1}{\sqrt{t}}$ avec t la durée d'acquisition des interférogrammes.

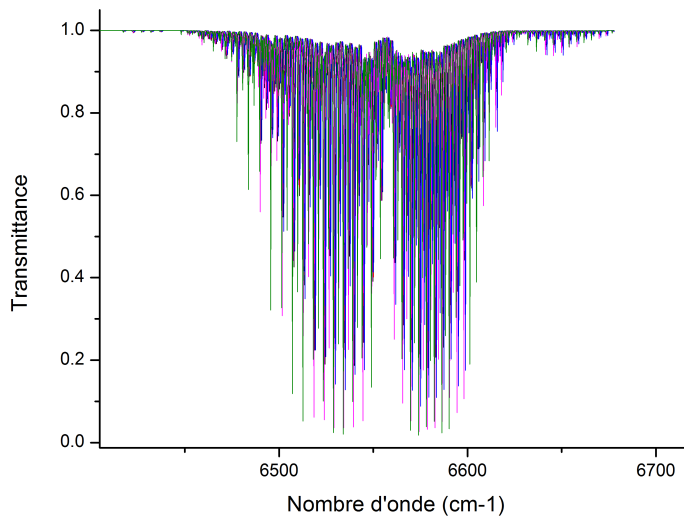


FIGURE 2.19 – 5 transmittances simulées ayant des valeurs de Δf_{rep} différentes suivant une loi Gaussienne centrée en zéro et d'écart type 1.5×10^{-2} Hz. La figure 2.12 représente un zoom de cette figure avec seulement 3 transmittances pour plus de lisibilité.

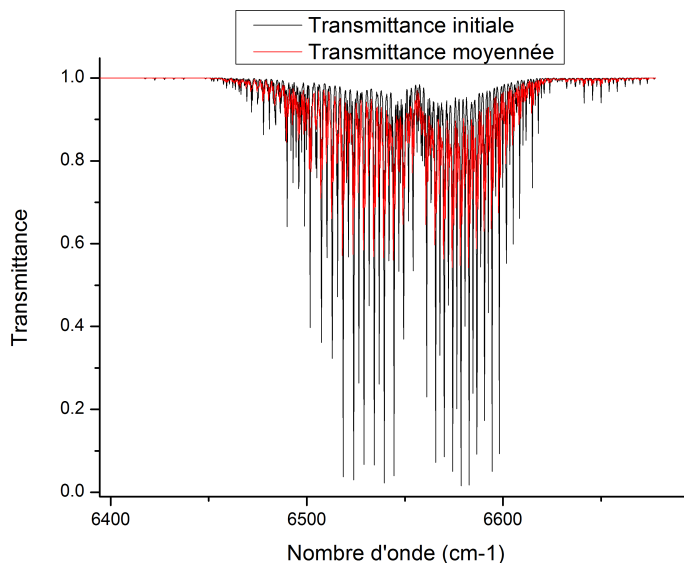


FIGURE 2.20 – Simulation montrant une transmittance initiale en noire et en rouge une transmittance moyennée de 5 acquisitions ayant des Δf_{rep} différents dû aux instabilités des lasers.

2.2.3 Asservissement des fréquences d'offset appliqué à notre système

Pour la stabilisation de f_0 , un module commercial est disponible chez Menlo, cependant, compte tenu de son coût élevé, il n'a pas été possible de l'approvisionner au cours de cette thèse.

Au cours de ce travail j'ai ainsi pu mettre en place et tester une méthode alternative. La figure 2.21 montre le schéma de l'électronique mise en place pour asservir le second degré de liberté des peignes de fréquences. Ce système repose sur l'utilisation d'une diode laser RIO présentant une excellente stabilité temporelle de sa longueur d'onde d'émis-

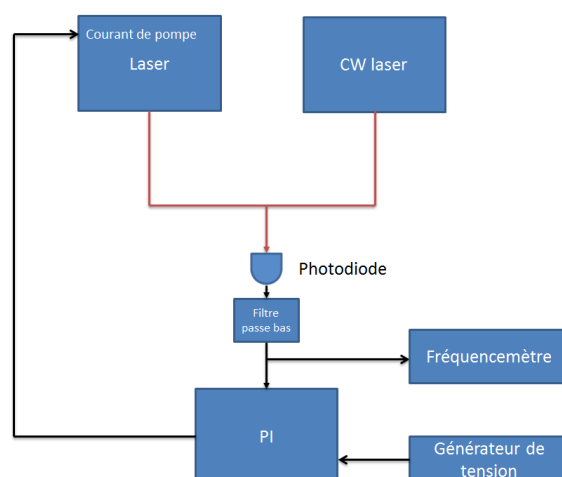


FIGURE 2.21 – Schéma de l'électronique mise en place pour asservir f_0

sion. Ici la mesure de f_0 n'est pas réalisée, nous mesurons uniquement les fluctuations associées à f_0 . En considérant négligeable les fluctuations de la fréquence de répétition du laser peigne ainsi que les fluctuations de la longueur d'onde d'émission de la diode laser par rapport aux fluctuations de la fréquence d'offset du peigne de fréquences, alors le battement entre cette diode laser et une dent du peigne suffit à nous donner les fluctuations de f_0 . La fréquence de battement obtenue est filtrée et envoyée dans un module PI (proportionnel intégral) confectionné au laboratoire. L'erreur calculée par le module est utilisée pour modifier le courant de la diode laser de pompe du peigne de fréquences. L'évolution temporelle de la fréquence de battement filtrée obtenue sur le premier peigne de fréquence est représentée sur la figure 2.22, cette mesure est réalisée à l'aide du fréquencemètre représenté sur le schéma du montage de la figure 2.21. Sur la courbe noire

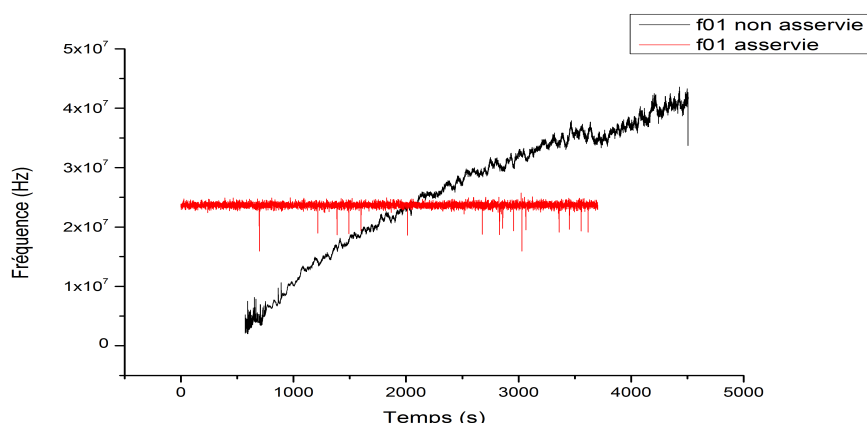


FIGURE 2.22 – Fluctuations temporelles de la fréquence d'offset du premier peigne de fréquences sur environ une heure. La courbe en noire représente la fluctuation de f_0 lorsque le système d'asservissement n'est pas utilisé. La courbe rouge représente la fluctuation de f_0 lorsque le système d'asservissement est en place.

on peut voir la fréquence dériver de 5 MHz à 45 MHz sur un peu plus d'une heure, lorsque le système d'asservissement n'est pas utilisé. La courbe rouge représente la fréquence de battement lorsque le système d'asservissement est en marche. On peut voir que les fluctuations rapides ont plus d'amplitude, en revanche les fluctuations lentes responsables

des dérives, sont elles contenues. Le système d'asservissement ne semble pas être assez rapide pour améliorer la stabilité sur des durées inférieures à quelques secondes. La bande passante du système d'asservissement est de 100 kHz ce qui doit pourtant permettre de corriger les fluctuations ayant lieu sur des échelles de temps allant de la 0,6 secondes à quelques secondes.

La figure 2.23 représente l'évolution temporelle de la fréquence de battement obtenue pour le second peigne de fréquences. La fluctuation de la fréquence d'offset au cours du

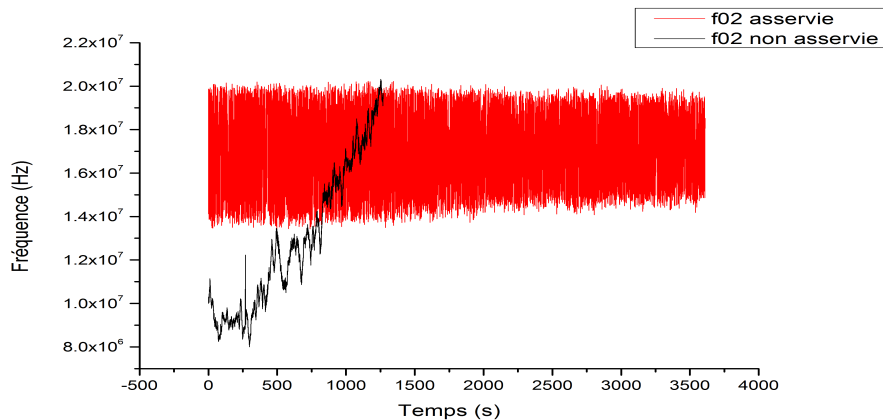


FIGURE 2.23 – Fluctuations temporelles de la fréquence d'offset du premier peigne de fréquences sur environ une heure. La courbe en noire représente la fluctuation de f_0 lorsque le système d'asservissement n'est pas utilisé. La courbe noire représente la fluctuation de f_0 lorsque le système d'asservissement est en place.

temps est représentée en noire, ici l'acquisition est d'environ 25 minutes sans stabilisation. On observe de la même manière que pour le premier peigne une dérive importante sur des temps longs (plusieurs minutes.) La courbe rouge représente la fluctuation de f_0 lorsque le système d'asservissement est en marche. Encore une fois les fluctuations lentes responsables des dérives sont contenues mais pas les fluctuations rapides. De la même manière que pour le premier laser, le système d'asservissement devrait corriger les fluctuations ayant lieu sur des échelles de temps de 0,6 secondes à quelques secondes mais ne le fait pas. Plutôt que de corriger les fluctuations elles sont ici clairement amplifiées ce qui n'était pas observé pour le premier laser. Cette différence avec le premier laser ne semble pas venir du module PI car même en les interchangeant on obtient le même résultat. Cela ne semble pas venir non plus de la photodiode, ni des câbles ni de l'amplificateur électronique utilisés dans la chaîne d'asservissement puisque ils sont également utilisés lorsque l'asservissement est coupé. Or lorsque les asservissements sont coupés les signaux enregistrés pour le laser 1 et 2 présentent les mêmes fluctuations (Figure 2.24). L'origine de cette différence pourrait donc provenir de la transmission du signal de sortie du module PI vers le courant de la diode laser de pompe.

Avec ces mesures nous traçons les déviations d'Allan (Figure 2.24) correspondantes.

Les courbes noires représentent les déviations d'Allan de $f_{0,1}$ la fréquence d'offset du premier peigne et les courbes bleues représentent les déviations d'Allans de $f_{0,2}$ la fréquence d'offset du second peigne de fréquences. Les courbes avec les motifs en forme de croix représentent les déviations d'Allan lorsque les systèmes d'asservissement ne sont pas utilisés alors que les courbes avec les motifs circulaires représentent les déviations d'Allan lorsque les systèmes d'asservissements sont en fonctionnement. Ces déviations d'Allan nous montrent tout d'abord que la stabilité des deux peignes est similaire lorsqu'il

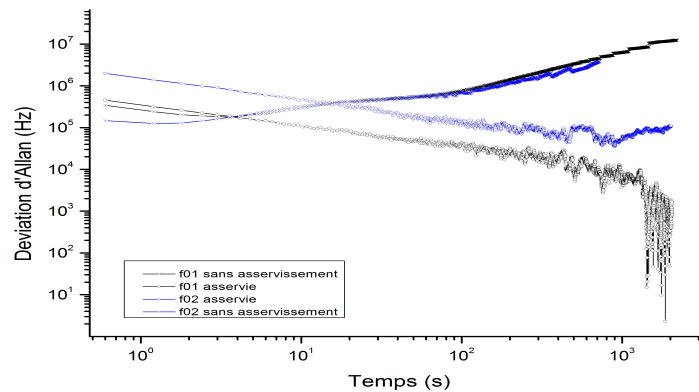


FIGURE 2.24 – Déviation d’Allan des paramètres f_0 des deux peignes de fréquences. En noir le paramètre $f_{0,1}$ du premier peigne et en bleu le paramètre $f_{0,2}$ du second peigne.

n’y a aucun asservissement puisque les deux courbes de déviations d’Allan du peigne 1 et du peigne 2 se superposent. Les sources étant similaires et provenant du même constructeur on pouvait s’y attendre, de plus les sources étant l’une à côté de l’autre elles sont soumises au même bruit acoustique de l’environnement.

Lorsque l’asservissement est en fonctionnement, deux zones sont identifiables pour chacun des deux lasers. Il y a une zone où l’asservissement a une influence positive, c’est à dire qu’il améliore la stabilité du paramètre f_0 en diminuant la valeur de la déviation d’Allan par rapport à sa valeur sans asservissement. Dans la seconde zone le système d’asservissement a un effet négatif sur la stabilité du paramètre f_0 puisque la déviation d’Allan augmente par rapport à sa valeur sans asservissement, la stabilité est alors détériorée dans cette zone.

Nous observons pour les deux lasers que l’asservissement détériore la stabilité du paramètre f_0 pour des échelles de temps allant de moins d’une seconde à quelques secondes alors qu’il améliore l’asservissement sur des échelles de temps allant de quelques secondes à plusieurs dizaines de minutes.

Le système d’asservissement rétroagit sur le courant de la diode laser de pompe du laser peigne de fréquences avec une bande passante d’une centaine de kHz. Ce qui permet bien évidemment de corriger les fluctuations agissant sur des échelles de temps de quelques secondes à plusieurs dizaines de minutes comme on l’observe. En revanche le système d’asservissement ne devrait pas dégrader la stabilité du paramètre f_0 sur les échelles de temps inférieures mesurées (0,6 secondes à quelques secondes).

Nous avons tenté de limiter le bruit des signaux d’entrée du module PI. Le signal d’entrée de chaque module PI correspondant à la fréquence de battement entre la diode laser stable et une dent du peigne est filtré à l’aide d’un filtre passe-bas de fréquence de coupure 50 MHz, puis amplifié avec un amplificateur électronique de marque modèle ZFL-1000LN+ mini-circuit. Le signal de consigne envoyé au PI est filtré avec un filtre passe-bas de fréquence de coupure 1 MHz. L’origine des fluctuations rapide apportées par le fonctionnement du système d’asservissement se trouve peut être dans le transfert du signal de sortie du module PI vers le courant de la diode de pompe du laser peigne de fréquences.

En spectroscopie à deux peignes de fréquences, le paramètre important est la stabilité relative des paramètres f_0 c’est à dire le paramètre Δf_0 . Il est possible d’enregistrer les fluctuations de ce paramètre notées $\delta\Delta f_0$ en mélangeant les deux signaux RF correspondant

aux fluctuations de $f_{0,1}$ et $f_{0,2}$, il faut ensuite utiliser un filtre passe-bande pour ne garder que la différence entre ces deux signaux. $f_{0,1}$ et $f_{0,2}$ appartenant à la plage de fréquences [0;50] MHz, la différence de fréquences entre ces deux signaux appartient également à cette plage de fréquences. Il est donc difficile de filtrer et d'observer les fluctuations de cette différence de fréquence, puisque cela demanderait de changer le filtre passe-bande pour s'adapter à la dérive du signal au cours du temps. L'observation de cette différence de fréquences est possible lorsque l'asservissement est en place puisque les fluctuations du signal sont contenues autour d'une valeur fixe de fréquence, un filtre passe-bande adapté à cette fréquence permet d'observer le signal. Le schéma du montage réalisé est représenté sur la figure 2.25.

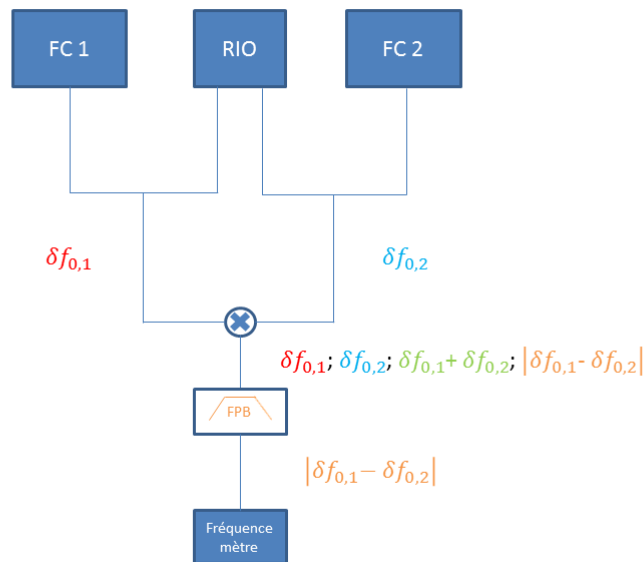


FIGURE 2.25 – Schéma du montage permettant de mesurer les fluctuations du paramètre Δf_0 .

Nous avons donc uniquement enregistré les fluctuations de Δf_0 lorsque le système d'asservissement est en place. Sur la figure 2.26 la déviation d'Allan du paramètre Δf_0 lorsque les systèmes d'asservissements sont en fonctionnement est représentée en rouge.

Compte tenu des valeurs de déviation d'Allan des paramètres $f_{0,1}$ et $f_{0,2}$, on s'attend à une déviation d'Allan ne pouvant pas être inférieure à celles des paramètres $f_{0,1}$ et $f_{0,2}$. Néanmoins les principales sources d'instabilité subies par ce paramètre proviennent de leur environnement. Leur environnement étant quasiment similaire puisque les deux sources sont posées l'une à côté de l'autre sur la même table en marbre. Il en résulte une corrélation entre les fluctuations des deux paramètres $f_{0,1}$ et $f_{0,2}$. Lorsque l'on mesure la différence de fréquence entre ces deux signaux les fluctuations communes s'annulent. Pour en être certain, la courbe noire de la figure 2.26 représente la déviation d'Allan de $f_{0,1} - f_{0,2}$ obtenue de deux façons différentes. Dans le premier cas nous enregistrons les fluctuations de ce paramètre en générant la différence de fréquence entre les fluctuations de $f_{0,1}$ et les fluctuations de $f_{0,2}$, sa déviation d'Allan est représentée en rouge. Dans un second cas on enregistre les fluctuations de $f_{0,1}$ à un instant donné puis les fluctuations

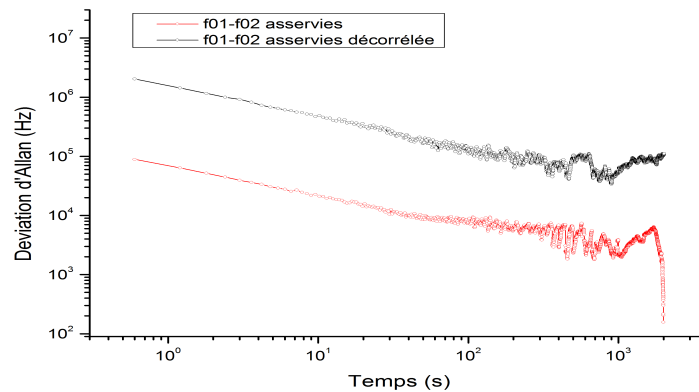


FIGURE 2.26 – Déviation d'Allan du paramètre Δf_0 lorsque les systèmes d'asservissement sont en fonctionnement.

de $f_{0,2}$ quelques temps après, on soustrait les fluctuations de $f_{0,1}$ à celles de $f_{0,2}$ sa déviation d'Allan est représentée en noire.

Pour évaluer la qualité de la stabilisation du paramètre Δf_0 nous avons simulé l'impact des fluctuations sur les spectres d'absorption obtenus en spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences. Nous avons considéré ici Δf_{rep} sans aucune fluctuation. Comme pour évaluer l'impact de la stabilisation obtenue sur Δf_{rep} nous simulons une transmittance d'acétylène dans le domaine RF. La résolution est d'environ 13 kHz dans le domaine RF elle correspond à la durée d'acquisition de l'interférogramme (80 μ s) et à une valeur de Δf_{rep} fixée à 220 Hz. Cette transmittance correspond à celle fournie par une cellule de gaz de 10 cm, à une pression de 760 torr, une température de 300 K et une densité d'acétylène de 10^{19} cm^{-1} . La figure 2.18 représente la transmittance simulée dans le domaine RF. Nous simulons ensuite 4 autres transmittances ayant une autre valeur du paramètre Δf_0 . Pour ces autres transmittances l'amplitude de fluctuation de Δf_0 est générée suivant une loi gaussienne. L'utilisation d'une distribution Gaussienne se justifie par le fait que la pente de la déviation d'Allan (figure 2.26) vaut 0,5 lorsque le module d'asservissement fonctionne ce qui correspond à un bruit blanc gaussien. Nous utilisons donc une distribution gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type égal à la valeur de la déviation d'Allan sur une échelle de temps correspondant à la période entre deux interférogrammes successifs, c'est à dire $\frac{1}{\Delta f_{rep}}$ soit quelques millisecondes. Idéalement on voudrait mesurer la valeur de la déviation d'Allan sur cette échelle de temps. Cependant la porte d'intégration utilisée pour réaliser les variances d'Allan ne peut descendre en dessous de 0,6 s. Nous avons donc extrapolé la courbe de la déviation d'Allan qui s'ajuste avec une pente de 1/2, on obtient une valeur de $1,5 \cdot 10^5$ Hz. La figure 2.27 représente donc 5 transmittances ayant des paramètres Δf_0 différents dûs à l'instabilité des lasers. La variation de la valeur de Δf_0 d'une acquisition à l'autre génère comme on l'a vu un décalage de l'ensemble du spectre. Le moyennage de ces 5 transmittances est représentée sur la figure 2.28. La transmittance moyennée obtenue est distordue et ne se superpose pas correctement à la transmittance initiale. Si on inverse cette transmittance distordue en imposant les valeurs de pression, température et longueur d'interaction, on obtient une densité d'acétylène de $2,88 \times 10^{18} \text{ cm}^{-1}$. Cette valeur est 3 fois inférieure à la densité initialement fixée dans cette simulation. L'erreur sur la concentration diminue en moyennant plus de spectres puisque la distribution de l'amplitude des fluctuations de Δf_0 suit une loi Gaussienne.

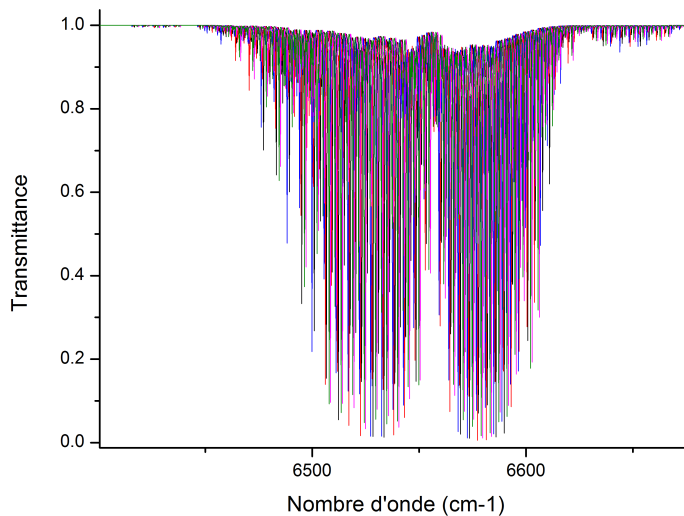


FIGURE 2.27 – Simulation de 5 transmittances ayant des paramètres Δf_0 différents. Le décalage induit par la variation des Δf_0 empêche une superposition des transmittances. La figure 2.13 représente un zoom de cette figure avec seulement 3 transmittances pour plus de lisibilité.

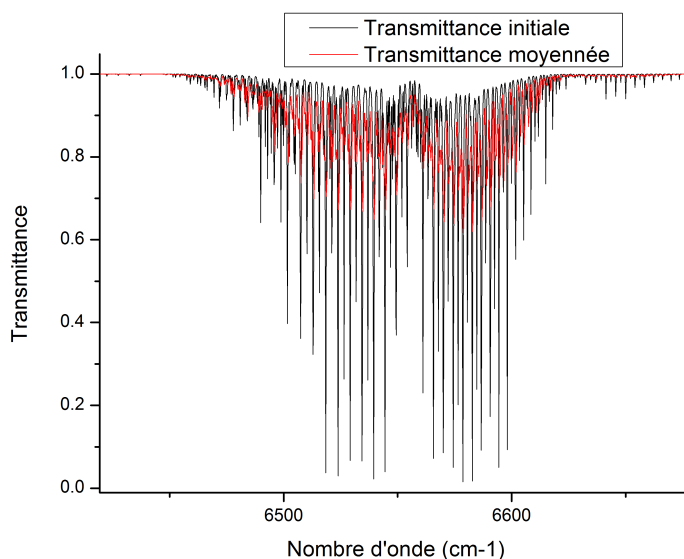


FIGURE 2.28 – Simulation montrant une transmittance initiale en noire et en rouge une transmittance moyennée de 5 acquisitions ayant des Δf_0 différents dû aux instabilités des lasers.

2.2.4 Conséquences du niveau de stabilisation obtenu

Dans la sous-section précédente nous avons décrit les systèmes de stabilisation des deux degrés de liberté utilisés lors de cette thèse et nous avons caractérisé leur stabilité pour chacune des sources par leur déviation d'Allan. Dans cette sous-section nous évaluons la possibilité d'enregistrer des spectres d'absorption bénéficiant de la pleine résolution permise par la spectroscopie de Fourier à deux laser peigne de fréquence. Pour bénéficier de la pleine résolution spectrale de la méthode de spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences il est nécessaire que la stabilité individuelle de chaque peigne soit suffisante ainsi que leur stabilité mutuelle. La stabilité individuelle, c'est à dire la sta-

bilité des paramètres $f_{0,1}$ et $f_{rep,1}$ pour le premier peigne ainsi que $f_{0,2}$ et $f_{rep,2}$ pour le second peigne doivent être suffisante. Ce niveau de stabilité s'évalue dans le domaine optique. L'amplitude des fluctuations des fréquences d'offset de chacun des peignes que l'on note $\sigma f_{0,i}$ ne doivent pas engendrer des décalages du spectre d'une valeur supérieure à l'espacement entre deux dents consécutives. Cette condition sur $\sigma f_{0,i}$ peut s'écrire :

$$\sigma f_{0,i} \leq f_{rep,i} \quad (2.13)$$

L'amplitude des fluctuations de $f_{rep,i}$ que l'on note $\sigma f_{rep,i}$ ne doit pas engendrer un décalage de la dent numéro n qui soit supérieur à l'espacement entre deux dents consécutives. Cette condition sur la stabilité de $f_{rep,i}$ peut s'écrire pour la dent numéro n :

$$n \times \sigma f_{rep,i} \leq f_{rep,i} \quad (2.14)$$

Cette équation doit être respectée pour chacune des dents appartenant au spectre d'émission des peignes de fréquences. Avec n de l'ordre de $1,9 \times 10^6$ pour une dent située autour de $1,55 \mu\text{m}$ et f_{rep} valant 100 MHz. La stabilité individuelle n'est pas la plus exigeante puisque elle nécessite de ne pas dépasser 100 MHz pour $\sigma f_{0,i}$ et environ 50 Hz pour $\sigma f_{rep,i}$.

En ce qui concerne la stabilité mutuelle, elle s'évalue dans le domaine RF puisqu'il s'agit de la stabilité des paramètres Δf_0 et Δf_{rep} . Pour la stabilité de Δf_0 il est nécessaire que l'amplitude de ses fluctuations n'entraîne pas des décalages supérieurs à l'espacement entre deux dents consécutives du peigne RF, on rappelle que cet espacement vaut Δf_{rep} . Cette condition sur $\sigma \Delta f_0$ peut s'écrire :

$$\sigma \Delta f_0 \leq \Delta f_{rep} \quad (2.15)$$

L'amplitude des fluctuations de Δf_{rep} que l'on note $\sigma \Delta f_{rep}$ ne doit pas engendrer un décalage de la dent numéro m qui soit supérieur à l'espacement entre deux dents consécutives du peigne RF. Cette condition sur la stabilité de Δf_{rep} peut s'écrire pour la dent m :

$$m \times \sigma \Delta f_{rep} \leq \Delta f_{rep} \quad (2.16)$$

Cette condition doit être valable pour chaque dent du peigne RF, dans notre situation m peut prendre comme valeur tous les entiers naturels entre 0 et 2×10^5 . La valeur des indices que peuvent prendre les dents du peigne RF dépend de la largeur spectrale de chacun des peignes de fréquences optiques. Ces conditions de stabilité mutuelle des peignes sont plus exigeantes que les conditions de stabilité individuelle puisque $\sigma \Delta f_0$ ne doit pas excéder 220 Hz et $\sigma \Delta f_{rep}$ ne doit pas excéder environ 1 mHz.

Les équations 2.15 et 2.16 nous permettent de réécrire les équations 2.13 et 2.14. En considérant le cas le plus défavorable, c'est à dire aucune corrélation entre les bruits subis par le laser 1 et ceux subis par le laser 2 on peut écrire que $\sigma \Delta f_0 = (\sigma f_{0,1}^2 + \sigma f_{0,2}^2)^{1/2}$, en considérant $\sigma f_{0,1}^2$ du même ordre que $\sigma f_{0,2}^2$ on obtient la condition suivante bien plus exigeante :

$$\sigma f_{0,i} \leq \Delta f_{rep} / \sqrt{2} \quad (2.17)$$

En appliquant le même procédé aux fréquences de répétition on obtient la condition suivante :

$$\sigma f_{rep,i} \leq \frac{\Delta f_{rep}}{\sqrt{2} \times m} \quad (2.18)$$

On comprend que la stabilité mutuelle entre deux peignes de fréquences pour réaliser des mesures DCS est bien plus exigeante que la stabilité individuelle.

- Pour les paramètres $f_{0,i}$ (cf équation 2.17) il faut que l'écart-type de leur fluctuations ne dépassent pas environ quelques centaines de Hz pour une valeur de Δf_{rep} typique de quelques centaines de Hz, ce qui n'est le cas puisque la déviation d'Allan de ces paramètres ne passent pas sous la valeur de 1 kHz sur toutes les échelles de temps mesurées ici (cf courbes 2.24).
- Pour le paramètre Δf_0 (cf équation 2.15) il faut que l'écart-type de ses fluctuations ne dépassent pas environ 220 Hz (valeur type de Δf_{rep} dans nos mesures). Cet écart-type n'est pas atteint si l'on regarde la déviation d'Allan de ce paramètre sur le graphe 2.26. On atteint au mieux quelques 10^3 Hz pour un temps d'intégration d'environ 1000 s soit environ 15 minutes.
- Pour les paramètres $f_{rep,i}$ il faut que l'écart-type de leurs fluctuations ne dépassent pas le mHz, cf équation 2.18. Nous n'avons pas réalisé les mesures de déviation d'Allan de ces paramètres donc nous ne pouvons pas le vérifier ici.
- Pour le paramètre Δf_{rep} cf équation 2.16, l'écart-type de ses fluctuations ne doit pas excéder environ 1 mHz également. Le graphe 2.17 montre que cette condition peut être atteinte pour une durée d'acquisition de quelques dizaines de secondes.

Ici la stabilité obtenue n'est pas suffisante sur le paramètre Δf_0 puisque la déviation d'Allan est supérieure à cette valeur du mHz. Cela signifie que les spectres obtenus auront chacun une valeur de Δf_0 différente bien visible, les spectres ne se superposeront pas et un recalage post-acquisition sera nécessaire afin de moyennner ces spectres. De plus les deux systèmes d'asservissements ne peuvent ici fonctionner en parallèle. La rétroaction sur la longueur de cavité agit sur $f_{rep,i}$ mais également sur $f_{0,i}$, notre système d'asservissement des fréquences d'offset n'étant pas assez robuste, lorsque l'on enclanche le système d'asservissement des fréquences de répétitions, celui ci perturbe le fonctionnement du premier. Nous n'avons donc pas pu réaliser un moyennage long des acquisitions. C'est pourquoi les systèmes d'asservissement des paramètres f_0 ne seront pas utilisés pour réaliser nos mesures. En revanche nous utiliserons tout de même le module de stabilisation des fréquences de répétitions pour contenir les dérives de Δf_{rep} responsable d'un décalage du spectre et d'un élargissement. Nous cherchons donc à corriger post-acquisition les fluctuations de Δf_0 afin de pouvoir moyennner nos acquisitions.

2.2.5 Correction post acquisition et moyennage des spectres d'absorption

Nous cherchons à stabiliser les lasers peigne de fréquence dans le but de moyennner les acquisitions afin de maximiser le RSB de nos spectres d'absorption pour les exploiter au mieux. L'acquisition d'un unique interférogramme complet c'est à dire un interférogramme correspondant à une durée d'acquisition égale à l'inverse de Δf_{rep} n'est pas exploitable du fait de son faible RSB. Pour rappel un tel interférogramme correspond à un balayage de la différence de marche de sa valeur minimale jusqu'à sa valeur maximale. Un tel interférogramme permet d'obtenir la meilleure résolution spectrale. Le rapport signal sur bruit du spectre d'absorption noté RSB_v , défini comme l'amplitude ou la "profondeur" de la raie d'absorption divisée par l'écart type du bruit de mesure n'est pas suffisant pour distinguer d'éventuelles raies d'absorption du bruit. Le bruit de mesure de nature aléatoire peut être réduit par rapport au signal grâce au moyennage des spectres d'ab-

sorption. La quantité de signal évolue en N fois le nombre de spectres moyennés alors que le bruit évolue en \sqrt{N} sur le temps de cohérence mutuelle des peignes ou pendant un moyennage cohérent. Cela conduit à une croissance du RSB spectral et temporel en $\frac{N}{\sqrt{N}} = \sqrt{N}$. La cohérence mutuelle des peignes de fréquences n'étant pas maintenue suffisamment longtemps à cause du manque de stabilité des sources nous ne pouvons pas moyenniser tels quels les spectres d'absorption, une correction post acquisition doit être opérée pour corriger les fluctuations de Δf_0 .

Nous avons simulé les effets de notre niveau de stabilisation sur le spectre, l'effet induit par la fluctuation de Δf_0 d'un spectre à l'autre est un décalage des spectres les uns par rapport aux autres. Le traitement post-acquisition développé consiste à corriger cet effet. La méthode utilisée pour recalibrer les spectres d'absorption consiste à repérer la raie d'absorption ayant le meilleur RSB_v puis d'aligner l'ensemble des spectres d'absorption sur cette raie que l'on prend comme référence. Cependant cette méthode nécessite d'avoir un RSB_v suffisamment élevé pour distinguer les raies d'absorption du bruit. Le RSB d'un spectre d'absorption peut être amélioré au détriment de sa résolution spectrale. Le RSB d'un interférogramme, défini dans le domaine temporel est noté RSB_t . Le RSB_t est généralement défini comme le rapport entre l'amplitude de la frange centrale de l'interférogramme et l'écart-type du signal au pied de la frange centrale où il n'y a généralement pas de signal, uniquement du bruit de détection. Cette définition correspond au RSB maximal de l'interférogramme. Il est plus utile de considérer le RSB moyen sur l'ensemble de l'interférogramme que l'on note $RSB_{t,m}$, car c'est lui qui conditionne RSB_v le RSB dans le domaine spectral. $RSB_{t,m}$ dépend de la valeur maximale de la différence de marche entre les impulsions des deux lasers. Sur l'interférogramme on observe une décroissance générale du signal à mesure que la différence de marche augmente. Lorsque la différence de marche est nulle l'amplitude du signal est très forte, cette partie de l'interférogramme se nomme la frange centrale. L'amplitude du signal sur les ailes de l'interférogramme est de plusieurs ordres de grandeurs plus faible. Le bruit, lui, reste constant, ce qui conduit à une décroissance de $RSB_{t,m}$ avec le temps d'acquisition de l'interférogramme. Enregistrer un interférogramme plus court permet donc d'augmenter le $RSB_{t,m}$ jusqu'à ce qu'il soit suffisant pour appliquer un recalage corrigeant les fluctuations de Δf_0 afin de moyenniser les spectres. Cependant l'augmentation du RSB_v se fait au détriment de la résolution spectrale notée δv . Nous devons donc trouver le bon équilibre entre RSB_v suffisant pour appliquer l'algorithme de recalage et résolution spectrale permettant de résoudre les raies d'absorption atmosphérique de largeur à mi-hauteur FWHM d'environ 10-12 GHz.

La méthode de recalage utilisée ne permet pas un recalage plus précis que la résolution spectrale. Ce manque de finesse dans le recalage induit une distorsion du spectre moyenné.

La figure 2.29 montre une simulation numérique d'un spectre d'absorption avec une résolution spectrale de 1 GHz, le spectre est doté de 5 raies d'absorption de largeur à mi-hauteur de 10 GHz. 20 spectres sont superposés et chacun d'entre eux a une valeur différente de Δf_0 qui varie entre 1 GHz et 30 GHz, c'est pourquoi ils sont tous légèrement décalés les uns des autres. Sur la figure 2.30 on représente le même spectre d'absorption mais avec une résolution dégradée égale à 6 GHz, qui représente ce que nous avons en pratique pour des interférogrammes d'environ 80 μs . La méthode utilisée pour corriger les fluctuations de Δf_0 d'un spectre à l'autre consiste à choisir une raie d'absorption dont la transmission est comprise entre 10% et 50% à un endroit du spectre où la densité spectrale de puissance est grande ce qui lui confère un bon RSB_v et de déterminer le point le plus profond de cette raie qu'on appelle le point de référence. Il faut ensuite faire la

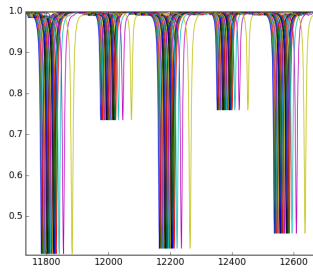


FIGURE 2.29 – Superposition de spectres d'absorption légèrement décalés les uns des autres à cause de la fluctuation de Δf_0 durant l'acquisition. Ici la résolution spectrale est de moins de 1 GHz.

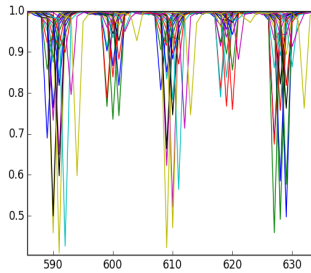


FIGURE 2.30 – Les mêmes spectres mais avec une résolution spectrale de 6 GHz.

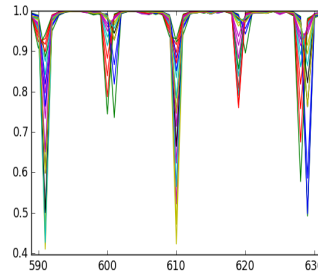


FIGURE 2.31 – Spectres recalés sur la raie de référence ici elle est numérotée 610.

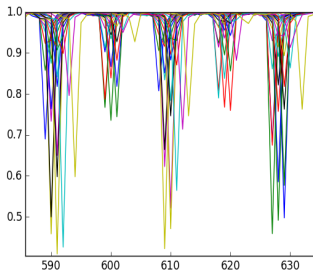


FIGURE 2.32 – Superposition de spectres d'absorption légèrement décalés les uns des autres de la fluctuation de Δf_0 durant l'acquisition. Ici la résolution spectrale est de 6 GHz.

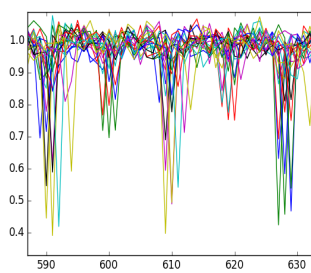


FIGURE 2.33 – Les mêmes spectres mais avec ajout de bruit gaussien pour obtenir un RSB_v de 10.

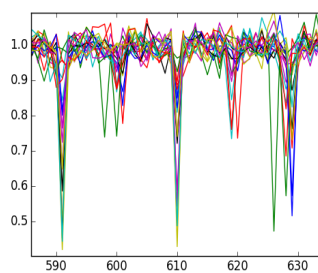


FIGURE 2.34 – Spectres recalés sur la raie de référence ici elle est numérotée 610.

même chose sur les autres spectres et aligner l'ensemble des spectres avec leur point de référence. Une fois l'alignement réalisé on obtient des spectres recalés comme représentés sur la figure 2.31. Ici la raie prise pour référence est celle autour de la valeur 610. On constate que les spectres ne se superposent pas correctement autour des valeurs 600 et 630 notamment. Ce mauvais alignement est dû au manque de résolution spectrale. La détermination du point de référence ne correspond pas nécessairement au point le plus profond de la raie d'absorption de référence. L'écartement entre le point de référence et le sommet de la raie d'absorption peut valoir jusqu'à la moitié de la résolution spectrale, dans ce cas ci 3 GHz. On ne peut donc pas espérer corriger les fluctuations de Δf_0 plus précisément qu'à 3 GHz près. Le moyennage de spectres d'absorption dont les valeurs de Δf_0 diffèrent conduit à un élargissement des raies et à un rétrécissement de leur profondeur ayant pour conséquences d'éronner les valeurs de concentration, pression et température calculées. De plus l'ajout de bruit sur les spectres d'absorption conduit à un recalage d'autant plus imprécis que le bruit est important. Les figures 2.33 et 2.34 représentent le

recalage des spectres de la figure 2.32 auxquels du bruit gaussien est ajouté pour détériorer le RSB_v à une valeur de 10.

Afin de quantifier l'erreur induite par le moyennage de spectres recalés nous avons simulé 100 spectres d'absorption ayant des valeurs de Δf_0 différentes générées suivant une distribution gaussienne centrée en zéro et d'écart-type 1.5×10^5 Hz (cf sous-section précédente). Ces 100 spectres d'absorption correspondent à l'absorption produite par une cellule d'acétylène de 10 cm de longueur ayant une concentration de 10^{19} cm^{-3} à 760 Torr et 300 K. On applique notre algorithme de recalage des spectres et on moyenne ces 100 spectres d'absorption. On inverse ce spectre d'absorption moyenné en lui imposant les valeurs de pression, température et longueur d'interaction telle que simulées. On obtient alors une valeur de concentration d'acétylène. On répète cette simulation 500 fois pour obtenir 500 valeurs de concentration d'acétylène. La concentration moyenne obtenue est de $7.3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et l'écart-type de $0.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. L'algorithme de recalage génère une erreur systématique qui sous-estime la concentration réelle d'environ 25%. Ce recalage ne peut donc pas être utilisé pour moyennage des spectres d'absorption et réaliser des mesures quantitatives de concentration de gaz.

Dans cette section nous avons vu que le RSB_v associé à un interférogramme complet n'est pas suffisant pour exploiter des spectres d'absorption. Les modules de stabilisation ne pouvant pas fonctionner ensemble nous avons choisi de travailler en stabilisant partiellement les peignes de fréquences avec le module Menlo des fréquences de répétitions. Nous avons également fait le choix d'enregistrer des interférogrammes courts (80 μs) pour obtenir un RSB_v nous permettant d'étalonner en nombre d'onde et d'inverser les spectres d'absorption obtenus. Nous avons développé un algorithme de traitement post-acquisition permettant de corriger, à la résolution spectrale près, le décalage des spectres qui est l'effet le plus important induit par les fluctuations des paramètres Δf_0 et Δf_{rep} . Cet algorithme ne permet pas de réaliser un moyennage cohérent des acquisitions puisque le spectre résultant est distordu. Cette déformation du spectre d'absorption moyenné induit par la suite une erreur sur la concentration calculée d'environ 25%. Nous avons donc fait le choix de ne pas moyennage nos acquisitions mais d'inverser individuellement chacun des interférogrammes courts (80 μs) conduisant à des spectres d'absorption basse résolution (6 GHz). Les concentrations obtenues pour chacun des interférogrammes sont ensuite moyennées. L'un des désavantages est la faible résolution spectrale qui toutefois est ici suffisante puisque nous sondons des raies moléculaires à pression atmosphérique (FWHM= 10-12 GHz). L'autre désavantage est la faible sensibilité de la méthode dû au faible RSB_v causée par l'absence de moyennage des acquisitions. Dans la section suivante nous détaillons plus précisément le protocole de mesure suivi lors de ces travaux de thèse.

2.3 Protocole de mesure, erreurs et pistes d'amélioration

2.3.1 Source d'erreur et quantification sur l'exemple de l'acétylène

Durant ces travaux de thèse nous n'avons pas pu moyennage les spectres d'absorption, que ça soit directement ou après recalage post-acquisition. Nous avons donc fait le choix d'exploiter chaque interférogramme individuellement pour obtenir une valeur de concentration et de moyennage les valeurs de concentration obtenues pour chacun des interférogrammes enregistrés. Pour que le spectre d'absorption issu d'un interférogramme soit exploitable son RSB_v doit être suffisamment élevé (de l'ordre de 10) afin de pouvoir étalonner le spectre en longueur d'onde et réaliser un ajustement de courbe à partir de la base de données HITRAN. A fréquence d'échantillonnage égale le RSB_v dé-

pend du nombre de points composant le spectre, autrement dit le RSB_v dépend de la résolution spectrale. Les raies d'absorption que l'on cherche à résoudre sont à pression atmosphérique, leur largeur à mi-hauteur (FWHM) est de 10-12 GHz. On doit donc trouver l'équilibre entre suffisamment de résolution spectrale et suffisamment de RSB_v . Le bon compromis se trouve pour une résolution spectrale de 6 GHz correspondant à un interférogramme composé de 8096 points échantillonnés à 100 MHz, soit un interférogramme d'environ 80 μ s. Ces courts interférogrammes ainsi enregistrés nous permettent d'obtenir les spectres d'absorption après transformation de Fourier. Sur chacun des spectres d'absorption nous devons déterminer la ligne de base afin d'obtenir la transmittance du milieu sondé, pour cela différentes méthodes existent. Ensuite chacune des transmittances doit être étalonnée en nombre d'onde pour ensuite être ajustée par une courbe théorique basée sur les données HITRAN (High resolution TRANsmission molecular absorption database) qui est une base de données utilisée pour prédire et simuler la transmission de la lumière au travers de l'atmosphère. Nous utilisons les valeurs de pression, température et longueur d'interaction du milieu sondé pour déduire la concentration du milieu sondé. Chacune de ces étapes est susceptible de générer une erreur aléatoire ou systématique, c'est ce que nous allons détailler dans les sous-sections suivantes.

Prise en compte de la fonction d'appareil du spectromètre

L'un des avantages de la spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences est la finesse de sa fonction d'appareil lorsque le spectromètre est utilisé avec sa résolution maximale. Tout comme la spectroscopie de Fourier classique, la fonction d'appareil du spectromètre dépend de la différence de marche balayée lors de l'acquisition. Cette différence de marche étant limitée, cela revient à multiplier l'interférogramme par une fonction porte au moment où on effectue une transformation de Fourier pour obtenir le spectre d'absorption. Cette fonction porte détériore plus ou moins les raies d'absorption du spectre résultant. La largeur de la fonction porte correspond à $2\delta t_{maximum_introduit}$. La fonction d'appareil est la transformation de Fourier de la fonction porte est notée $F_{appareil}(v)$. La fonction d'appareil est donc un sinus cardinal et sa largeur à mi-hauteur FWHM vaut donc :

$$FWHM(F_{appareil}(v)) = \frac{1}{2\delta t_{maximum}} \quad (2.19)$$

Le $\delta t_{maximum}$ peut se calculer à partir du nombre de points N_{points} qui composent l'interférogramme enregistré, la position de la frange centrale que l'on note $pretrig$, la fréquence d'échantillonnage $f_{echantillonnage}$, la fréquence de répétition f_{rep} et la différence de fréquence de répétition Δf_{rep} . On calcule tout d'abord la durée d'acquisition d'une aile de l'interférogramme que l'on note T_{max} :

$$T_{max} = (N_{points} - pretrig) \times \frac{1}{f_{echantillonnage}} \quad (2.20)$$

On applique le facteur de démultiplication pour obtenir la différence de marche correspondant à cette durée d'acquisition :

$$\delta t_{maximum} = T_{max} \times \frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}} \quad (2.21)$$

Avec nos conditions expérimentales nous obtenons une largeur à mi-hauteur FWHM de la fonction d'appareil de 6 GHz. Les raies d'absorption sondées durant ce travail sont à pression atmosphérique, leur largeur à mi-hauteur est de 10 GHz. La largeur à mi-hauteur de

la fonction d'appareil du spectromètre est du même ordre de grandeur que la largeur à mi-hauteur de nos raies d'absorption. La convolution du spectre d'absorption par la fonction d'appareil aura pour conséquence d'élargir et d'atténuer la profondeur des raies d'absorption. Cette détérioration des raies d'absorption induit une erreur sur les valeurs de concentration, pression et température calculées. La convolution des spectres d'absorption par la fonction d'appareil est donc à prendre en compte lors des calculs de concentration.

La déconvolution des spectres d'absorption bruités par la fonction d'appareil est un problème inverse complexe à résoudre. Nous choisissons plutôt de convoluer les spectres théoriques basés sur la banque de données HITRAN qui nous servent à ajuster nos spectres expérimentaux et ainsi à déduire la concentration, température et pression du gaz sondé. Pour cela il est nécessaire d'avoir une idée de la forme des raies d'absorption à inverser, dans notre cas on travaille à pression et température atmosphérique, on connaît également la longueur d'interaction et on a une idée de la concentration atmosphérique du gaz sondé (CO_2 , H_2O).

Transmittance et élimination de l'enveloppe spectrale

L'exploitation des interférogrammes pour obtenir les valeurs de concentration, pression et température du gaz sondé passe par plusieurs étapes de traitement. La transformation de Fourier de l'interférogramme permet d'obtenir le spectre d'absorption. Ce spectre présente une enveloppe complexe dont il faut s'affranchir afin d'obtenir la transmittance du milieu sondé et exploiter les raies d'absorption. Une mauvaise estimation de la ligne de base est source d'erreur systématique pour le calcul de la concentration puisque une mauvaise ligne de base déforme la courbe de transmittance obtenue.

Différentes méthodes existent pour s'affranchir de l'enveloppe spectrale :

- En mettant en place une voie de référence qui permet d'enregistrer uniquement le spectre sans absorption que l'on considère être l'enveloppe.
- Soit en utilisant une méthode numérique permettant de déduire l'enveloppe du spectre.

Méthodes numériques Lorsqu'il n'y a pas la possibilité de réaliser une mesure de référence, on cherche donc à s'affranchir de la connaissance de la ligne de base du spectre d'absorption. Pour cela il existe différentes méthodes numériques permettant de construire une enveloppe spectrale s'approchant de la ligne de base. Une première méthode consiste à approcher la ligne de base par une fonction, au vu de la complexité des spectres d'absorption enregistrés, on utilise généralement un polynôme. Il s'agit d'exclure les points qui semblent appartenir clairement à des raies d'absorption. Une fois la régression polynômiale faite, le polynôme obtenu constitue la ligne de base du spectre. La transmittance s'obtient en divisant le spectre d'absorption par le polynôme. Cette méthode est notamment utilisée par Brown et al. [Brown et collab., 2008] pour la mesure du spectre d'absorption de l'eau à l'aide d'un supercontinuum (figure 2.35).

Cependant, cette méthode d'estimation de la ligne de base peut ne pas être tout à fait valide. Sur la figure 2.35 il apparaît notamment autour de 1440 nm que la transmittance est supérieure à 1. Cette imprécision sur la ligne de base induit des erreurs lors de l'estimation des valeurs de concentration, pression et température. Une autre méthode initialement développée pour isoler des spectres d'émission Raman sur fond de fluorescence par Lieber [Lieber et Mahadevan-Jansen, 2003] consiste en une estimation itérative de la ligne de base. La première étape consiste à effectuer une régression polynômiale sur l'ensemble du spectre. Durant la seconde étape, les points du signal se trouvant au dessus

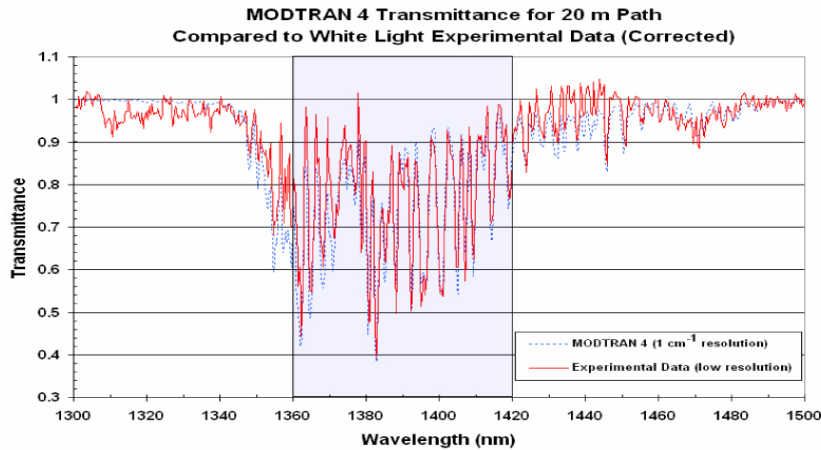


FIGURE 2.35 – Transmittance expérimentale en rouge avec estimation de la ligne de base et simulation numérique à partir de la base de données Modtran en pointillés bleus. Cette figure est tirée de [Brown et collab., 2008]

du polynôme sont remplacés par ceux du polynôme et ceux se trouvant en dessous sont conservés, on obtient alors une première courbe d'ajustement modifiée. Il s'agit ensuite de réitérer ces deux étapes sur la courbe d'ajustement modifiée. On répète l'opération jusqu'à convergence. La figure 2.36 illustre le processus décrit. Avec cette méthode on exclut la possibilité de se retrouver avec une transmittance dont les points peuvent avoir une valeur supérieure à 1.

Cependant cette méthode néglige l'absorption globale, c'est à dire les zones où la trans-

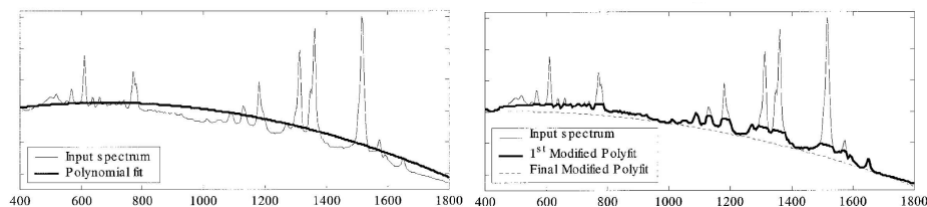


FIGURE 2.36 – Méthode d'estimation itérative de la ligne de base par Lieber. Cette figure est tirée de [Lieber et Mahadevan-Jansen, 2003]

mittance reste inférieure à 1 entre deux raies d'absorption, en particulier lorsque la résolution est limitée et dans les zones riches en raies d'absorption où il peut y avoir recouvrement de ces raies entre elles. La zone entre 1340 nm et 1430 nm sur la figure 2.35 présente de l'absorption globale.

La ligne de base peut parfois être lentement variable en fonction de la longueur d'onde alors que les raies d'absorption sont généralement très structurées. Si les variations d'amplitudes de l'enveloppe sont plus lentes que celles de la transmittance, il est alors possible d'utiliser une méthode de filtrage fréquentiel. Dans le domaine de Fourier l'enveloppe se décompose alors en basses fréquences et les raies d'absorption en hautes fréquences. En éliminant les basses fréquences du signal dans le domaine de Fourier on élimine l'enveloppe spectrale sans perdre l'information sur les raies d'absorption. Le spectre d'absorption peut se décrire comme l'enveloppe spectrale des lasers $Env(\nu)$ multipliée par la transmittance du milieu $T(\nu)$:

$$S(\nu) = Env(\nu) \times T(\nu)$$

L'application du logarithme népérien permet de séparer les éléments d'un produit pour en faire une somme :

$$\ln(S(\nu)) = \ln(Env(\nu)) + \ln(T(\nu))$$

Le premier terme est majoritairement composé de basses fréquences alors que le second est lui plutôt composé de hautes fréquences. L'application d'une transformation de Fourier permet d'obtenir les composantes fréquentielles du signal.

$$TF[\ln(S(\nu))] = TF[\ln(Env(\nu))] + TF[\ln(T(\nu))]$$

L'application d'un filtre passe haut permet de s'affranchir du terme $TF[\ln(Env(\nu))]$ tout en conservant au maximum le terme $TF[\ln(T(\nu))]$. Dans la situation la plus favorable ces deux termes se séparent parfaitement, mais ils peuvent également se recouvrir plus ou moins. Suivant le degrés de recouvrement il n'est pas toujours intéressant d'utiliser cette méthode car en filtrant l'enveloppe on peut perdre de l'information sur la transmittance comme illustré sur les figures 2.37, 2.38 et 2.39.

L'utilisation d'une méthode numérique s'avère donc limitée dans plusieurs situations, les

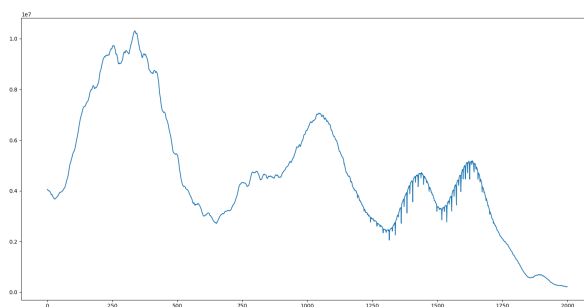


FIGURE 2.37 – Enveloppe spectrale multipliée par une transmittance.

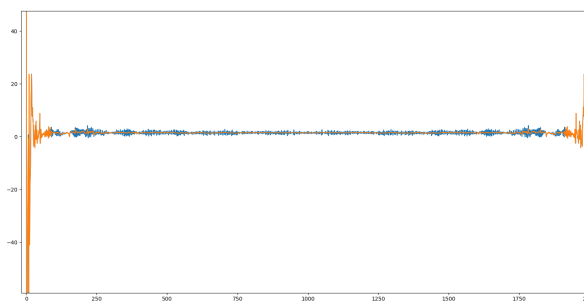


FIGURE 2.38 – Transformation de Fourier du logarithme népérien de la transmittance uniquement en bleu et du logarithme népérien de l'enveloppe spectrale uniquement en orange.

méthodes d'ajustement nécessitent un faible recouvrement des raies d'absorption entre elles combiné à une résolution permettant d'observer la remontée de la transmittance à sa valeur maximale entre deux raies d'absorption. La méthode de filtrage elle ne s'avère utilisable uniquement dans la situation particulière où la décomposition fréquentielle de la transmittance et celle de l'enveloppe ne se recouvrent pas dans le domaine de Fourier. Une dernière méthode numérique souvent utilisée dans ce travail de thèse consiste à retirer les points du spectres qui appartiennent à des raies d'absorption et à les remplacer par interpolation linéaire. Comme cette méthode est utilisée plusieurs fois dans ces travaux nous avons réalisé une simulation numérique afin d'évaluer l'erreur sur la concentration

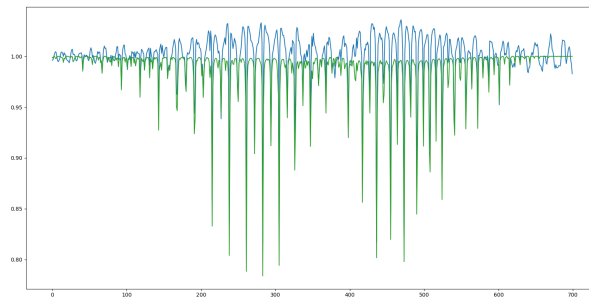


FIGURE 2.39 – Transmittance originale en vert et transmittance filtrée en bleu. Le recouvrement entre la décomposition fréquentielle de la transmittance et celle de l'enveloppe est trop importante. Dans cette situation l'utilisation de cette méthode n'est pas judicieux.

produite par cette méthode. Pour cela nous avons simulé 500 enveloppes spectrales complexes qui diffèrent légèrement les unes des autres. Nous avons multiplié ces enveloppes par une transmittance simulé d'acétylène correspondant aux paramètres suivant : Pression = 760 Torr, Température = 300 K, Longueur d'interaction = 10 cm et densité d'acétylène = 10^{19} cm^{-3} . Nous avons utilisé la méthode numérique sur chacun des 500 spectres d'absorption simulés pour obtenir 500 transmittances. Les 500 transmittances sont ensuite inversées pour obtenir 500 valeurs de densité d'acétylène. On obtient une valeur moyenne d'acétylène de $\langle N \rangle_{500} = 9,38 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $\sigma = 0,04 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Cette méthode numérique génère un biais d'environ 6% sur la concentration calculée dans cette exemple avec de l'acétylène.

Dans ce travail de thèse ces méthodes numériques ont été utilisées avant que nous disposions d'une voie de référence. Pour chaque mesure il sera précisé la méthode d'obtention de l'enveloppe spectrale.

Utilisation d'une voie de référence Une méthode souvent employée dans les mesures de spectrométrie d'absorption est celle qui consiste à utiliser une voie dite de référence pour enregistrer un spectre sans les raies d'absorption qui va représenter ce qu'on appelle le zéro d'absorption. Le spectre d'absorption peut s'écrire comme la multiplication d'une enveloppe spectrale et de la transmittance de l'échantillon à sonder. La mesure du zéro d'absorption a pour objectif de mesurer $Env(\nu)$. Lorsque l'enveloppe spectrale du ou des lasers est stationnaire ainsi que la transmittance de l'échantillon sondé il est possible d'utiliser une seule voie d'acquisition pour enregistrer le spectre d'absorption de l'échantillon puis le spectre de référence sans l'échantillon en réalisant ces deux mesures à des instants différents. Mais lorsque l'enveloppe spectrale et ou la transmittance de l'échantillon fluctuent au cours du temps il est nécessaire d'avoir deux voies d'acquisitions et de réaliser au même instant la mesure du spectre d'absorption $S(\nu)$ et celle du zéro d'absorption $Env(\nu)$. Dans notre cas l'enveloppe spectrale du peigne radio fréquence obtenue par battement fluctue au cours du temps. Différentes causes peuvent être à l'origine de ces fluctuations spectrales, nous pouvons citer : les fluctuations de polarisation au cours du temps, celles de f_0 et celles de f_{rep} . Nous avons fait l'expérience d'enregistrer 1000 interférogrammes de $80 \mu\text{s}$ à la volé, le spectre obtenu sur le moyennage des 500 premiers et celui obtenu sur le moyennage des 500 suivants présentent clairement des différences d'enveloppe puisque ces deux spectres ne se superposent pas (figure 2.40). Par contre si l'on moyenne en prenant un spectre sur deux, c'est à dire les spectres dont le numéro est pair d'une part et ceux dont le numéro est impair d'autre part alors les résultats se superposent comme nous pouvons le constater sur la figure 2.41. Cela signifie que sur l'inter-

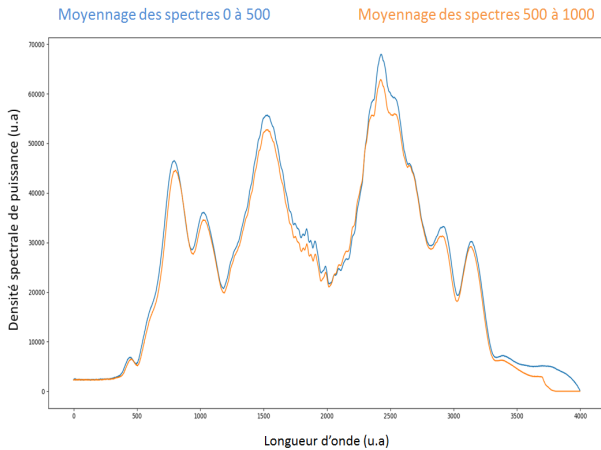


FIGURE 2.40 – 1000 spectres sont acquis, le moyennage de 500 spectres consécutifs en bleu et moyennage des 500 spectres suivant en orange. Les deux enveloppes spectrales obtenues sont différentes car l'enveloppe fluctue au cours du temps

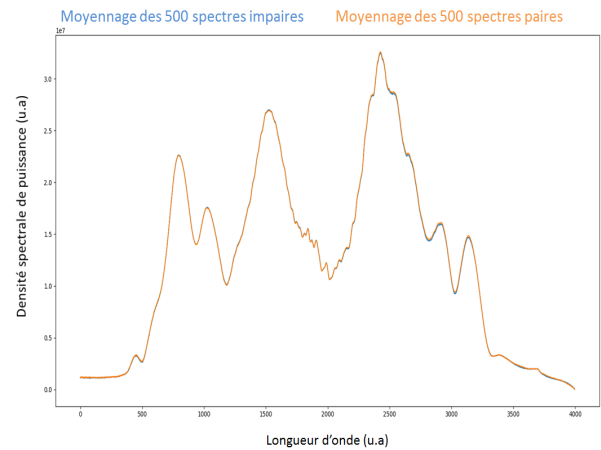


FIGURE 2.41 – 1000 spectres sont acquis, le moyennage des spectres paires forme l'enveloppe orange et le moyennage de spectres impaires forme l'enveloppe bleue.

valle de temps nécessaire à l'acquisition de 500 interférogrammes (quelques dizaines de secondes), l'enveloppe spectrale du peigne RF obtenu par battement fluctue. En revanche sur l'intervalle de temps séparant l'acquisition de deux interférogrammes (quelques ms), l'enveloppe du peigne RF bouge très peu. Il est alors clair que l'enveloppe spectrale du peigne RF obtenue par battement fluctue lentement au cours du temps néanmoins si nous souhaitons réaliser l'acquisition de plusieurs centaines d'interférogrammes, il est nécessaire d'avoir une seconde voie d'acquisition afin d'enregistrer au même instant le spectre d'absorption de l'échantillon sondé et le zéro d'absorption. La figure 2.42 représente le schéma du montage expérimental contenant les deux voies d'acquisitions parallèles mis en œuvre au cours de cette thèse. Nos deux lasers peignes de fréquences sont couplés en espace libre par le biais d'un cube séparateur 50-50 non polarisant. Les faisceaux des deux lasers se retrouvent superposés au niveau de chaque face de sortie du cube. Nous utilisons la superposition des faisceaux d'une sortie et un prisme permettant de réfléchir une fraction d'environ 1% la puissance incidente et de transmettre l'autre partie. La partie réfléchie du signal est collectée par le détecteur numéro 2 à l'aide d'une lentille convergente formant la voie numéro 2 qui est utilisée comme voie de référence. La partie transmise du signal de plus forte puissance est collectée par le détecteur numéro 1 à l'aide également d'une lentille convergente formant la voie numéro 1 qui est elle utilisée comme voie de mesure. Notre voie de référence bénéficie de bien moins de puissance optique que la voie principale. La seconde face de sortie du cube séparateur n'est pas utilisée pour former la voie de référence à cause de la différence entre les courbes de transmission et de réflectivités du cube (Figure 2.43 et 2.44). Cette différence engendre un spectre différent entre les deux faces de sorties du cube.

Les deux détecteurs utilisés ne sont pas les mêmes, puisque nous n'avons pas deux détecteurs similaires disponibles. La voie 2 qui bénéficie d'une plus faible puissance optique est équipée d'un détecteur de chez MenloSystems dont la puissance de saturation est de $200 \mu\text{W}$ et un fort gain de $2 \times 10^4 \text{ V/W}$. La voie 2 est équipée d'un détecteur Newport dont la puissance de saturation est un peu plus élevée, elle est de 4 mW , avec un gain plus faible de 50 V/W . Les deux détecteurs ont une bande passante supérieure à la fréquence de répétition de nos lasers c'est à dire 100 MHz . Ces deux détecteurs sont en InGaAs (Indium Gallium Arsenide) permettant de répondre sur l'ensemble du spectre d'émission de

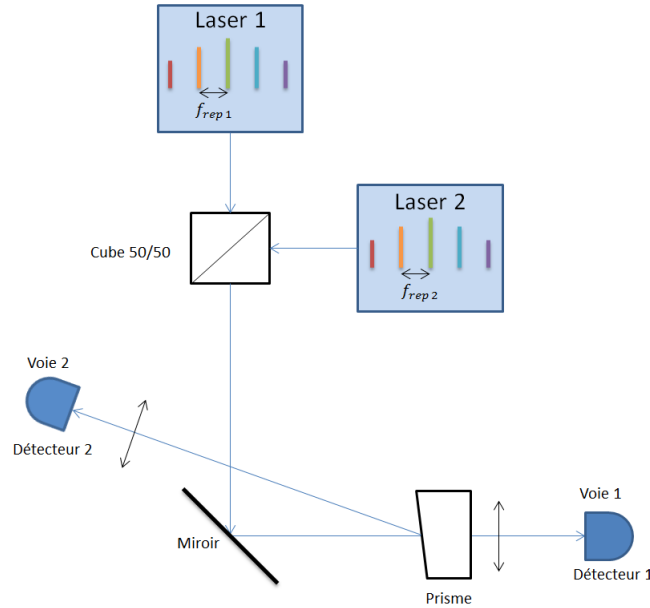


FIGURE 2.42 – Schéma du montage expérimental représentant les deux voies d'acquisition

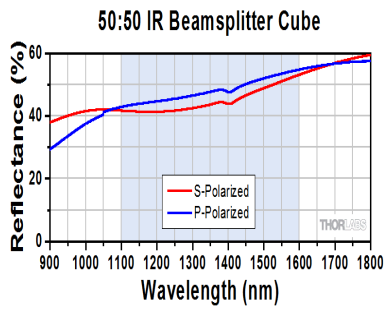


FIGURE 2.43 – Courbe de réflectivité du cube séparateur 50-50 en fonction de la longueur d'onde incidente

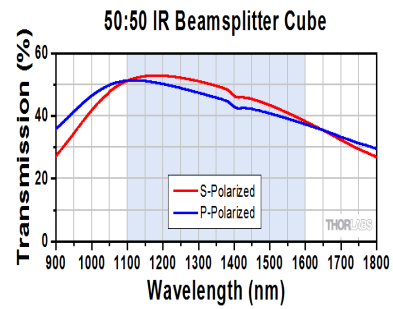


FIGURE 2.44 – Courbe de transmission du cube séparateur 50-50 en fonction de la longueur d'onde incidente

nos lasers. Les photodiodes en InGaAs offrent une réponse généralement entre 900 nm et 1700 nm, parfaitement adaptée aux longueurs d'onde télécom. Le tableau 2.1 récapitule quelques caractéristiques de nos deux détecteurs. Une caractérisation de ces détecteurs a été effectuée pour vérifier les performances annoncées par le constructeur, se référer à l'annexe A.2.

	Menlo FPD 310	Newport 1623
Bande passante (MHz)	1 - 1500	DC - 1000
Temps de monté (ns)	0,5	1
Diamètre détecteur (mm)	0,08	0,1
Gain max (V/W)	2×10^4	50
Saturation (mW)	0,2	4

TABEAU 2.1 – Caractéristiques des détecteurs utilisés.

L'utilisation de deux détecteurs différents ayant des réponses différentes ne permet pas d'enregistrer sur la voie de référence l'enveloppe $Env(\nu)$ correspondant au spectre d'absorption $S(\nu)$ enregistré sur la voie principale. Les caractéristiques des deux détec-

teurs modifient les spectres enregistrés par chacun. Il est donc nécessaire d'enregistrer au préalable un ratio de référence entre l'enveloppe obtenue par la voie 1 et celle obtenue par la voie 2. Ce ratio est stationnaire puisqu'il dépend des caractéristiques des détecteurs qui restent fixes dans le temps.

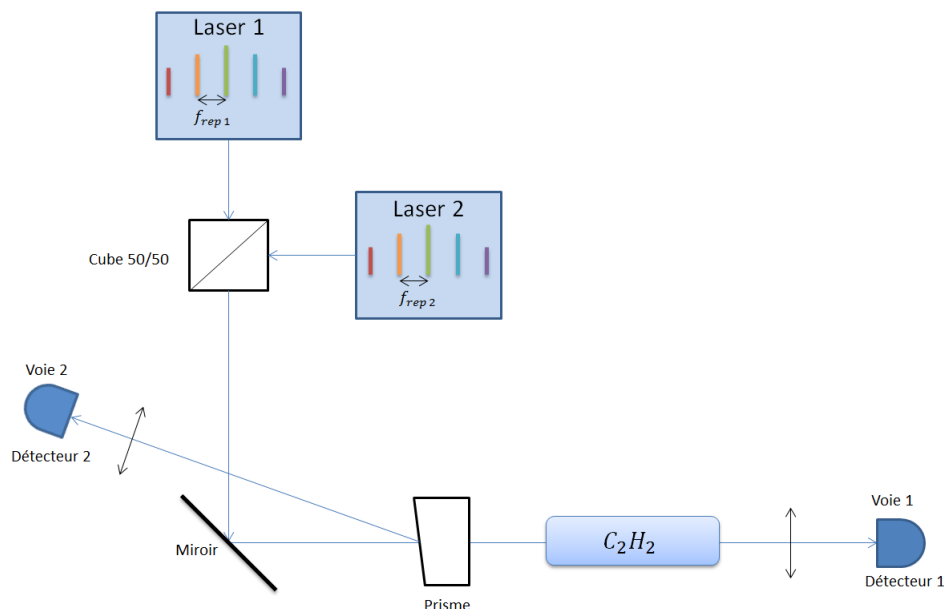


FIGURE 2.45 – Schéma représentant le montage utilisé pour enregistrer le spectre d'absorption de la cellule d'acétylène normalisé par le spectre de référence enregistré sur la voie 2.

La courbe en bleu de la figure 2.46 représente le ratio entre la voie 1 et la voie 2 moyenné sur 100 acquisitions à partir du montage représenté sur la figure 2.42. Cette courbe correspond au ratio de référence qui tient compte des réponses différentes entre les deux détecteurs. La courbe orange de la figure 2.46 représente le ratio entre la voie 1 et la voie 2 moyenné sur 100 acquisitions avec cette fois-ci la cellule d'acétylène placée sur la voie 1 comme représenté sur le schéma 2.45. Ces deux courbes suivent les mêmes tendances. La courbe orange présente les raies d'absorption de la cellule d'acétylène sondée et est de manière générale de plus basse amplitude que la courbe bleue puisque les hublots de la cellule réfléchissent une partie du signal incident. La courbe de transmittance résultante tient compte de l'absorption globale dû à la quantité de raies importante sur les 2 branches ν_1 et ν_2 de l'acétylène et au manque de résolution de la mesure.

En conclusion différentes méthodes existent pour tenter de s'affranchir de l'enveloppe spectrale. Pour cela il faut obtenir la courbe représentant le zéro d'absorption que l'on a dénotée $Env(\nu)$, soit par des moyens numériques directement à partir du spectre d'absorption $S(\nu)$ soit par l'utilisation d'une seconde voie d'acquisition pour réaliser une mesure de référence. Les méthodes numériques simplistes comme le fit polynomial de la ligne de base du spectre d'absorption ne sont pas adaptées aux larges spectres de formes complexes. La méthode d'estimation itérative n'est elle pas bien adaptée aux cas où le spectre présente des zones riches en raies d'absorption se recouvrant entre elles et aux situations où la résolution spectrales est faible. Dans ces situations cette méthode néglige l'absorption globale ce qui conduira ensuite à des erreurs sur les valeurs de concentration, pression et température calculées. La dernière méthode numérique présentée est celle du filtre passe haut appliqué au logarithme du spectre d'absorption. Cette méthode obtient de bons résultats uniquement dans les situations où l'enveloppe du spectre d'ab-

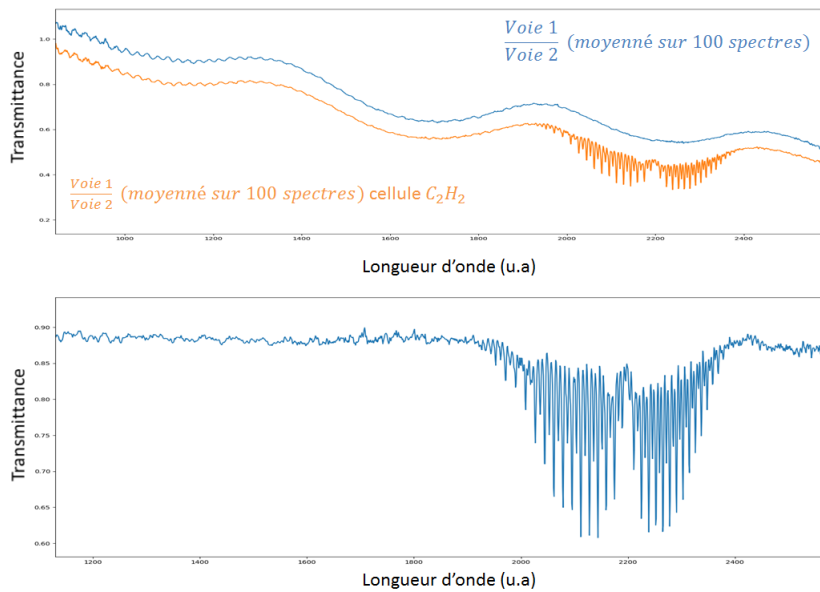


FIGURE 2.46 – En haut la courbe bleu représente le ratio obtenu sans cellule d'acétylène et la courbe orange celui obtenu avec la cellule. En bas le ratio entre les deux courbes du haut nous donnant la transmittance de la cellule d'acétylène.

sorption présente des variations d'amplitudes lente en fonction de la longueur d'onde et où les raies d'absorption sondées sont très structurées. L'utilisation d'une seconde voie servant de référence est elle valable dans toutes ces situations, la difficulté principale réside uniquement dans le matériel nécessaire. Il est préférable d'avoir la même chaîne de détection pour éviter de créer des différences dans les spectres enregistrés. Cependant il est possible de tenir compte des différences entre les deux chaînes de détection si celles ci sont systématiques comme nous l'avons fait en enregistrant le ratio spectral entre les deux voies.

Étalonnage du spectre en longueur d'onde

L'exploitation d'une courbe de transmittance pour calculer les valeurs de concentration, pression et température du milieu sondée, nécessite l'étalonnage de cette courbe en longueur d'onde. Un mauvais étalonnage nous empêche d'ajuster correctement la transmittance théorique à la transmittance expérimentale et a pour conséquence d'errer les valeurs de concentration, pression et température calculées.

Détermination du pas La figure 2.47 représente une transmittance brute non étalonnée, l'axe des abscisses représente le numéro de l'élément spectral. Cette transmittance est issue de l'acquisition d'un interférogramme de $80 \mu\text{s}$. En spectroscopie de Fourier, l'avantage multiplex assure un étalonnage linéaire du domaine spectral, en revanche les fluctuations de Δf_0 et de Δf_{rep} durant la durée d'acquisition de l'interférogramme peuvent causer une distorsion de l'échelle des nombres d'onde. La détermination du pas en longueur d'onde a pour but, d'étalonner la transmittance afin de réaliser un ajustement de courbe à partir de la base de données HITRAN et donc estimer les valeurs de concentration, pression et température.

L'étalonnage en nombre d'onde consiste à trouver la fonction qui fait correspondre le numéro de l'élément spectral au nombre d'onde qui lui est associé. Il s'agit de faire correspondre les numéros des éléments spectraux associés aux sommets des plus fortes

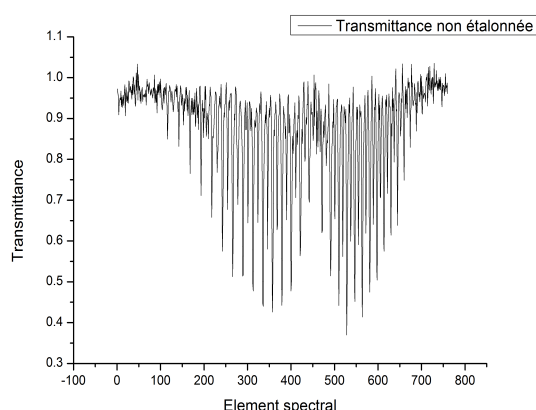


FIGURE 2.47 – Transmittance non étalonnée. L'axe des abscisses représente le numéro de l'élément spectral.

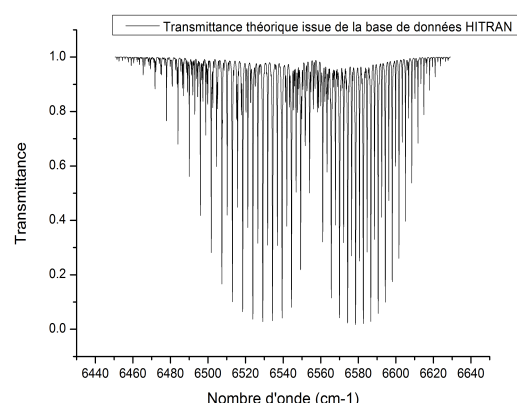


FIGURE 2.48 – Transmittance théorique de la cellule d'acétylène. Les données spectroscopiques utilisées pour réaliser cette courbe sont issues de la base de données HITRAN.

raies observables aux nombres d'onde donnés par la base de données HITRAN. La transmittance issue de la base de données HITRAN est représentée sur la figure 2.48, le RSB est suffisamment élevé pour nous permettre d'établir la correspondance entre les numéros des éléments spectraux et les nombres d'ondes. Les numéros des éléments spectraux correspondant aux sommets d'une quarantaine de raies sont relevés et sont associés à leur valeur en nombre d'onde. En traçant la courbe représentant le nombre d'onde en fonction du numéro de l'élément spectral on obtient la courbe d'étalonnage. Nous utilisons un fit polynomial d'ordre 2 pour déterminer l'équation de cette courbe représentée sur la figure 2.49. Le résultat du fit polynomial d'ordre 2 nous donne une valeur d'ordonnée

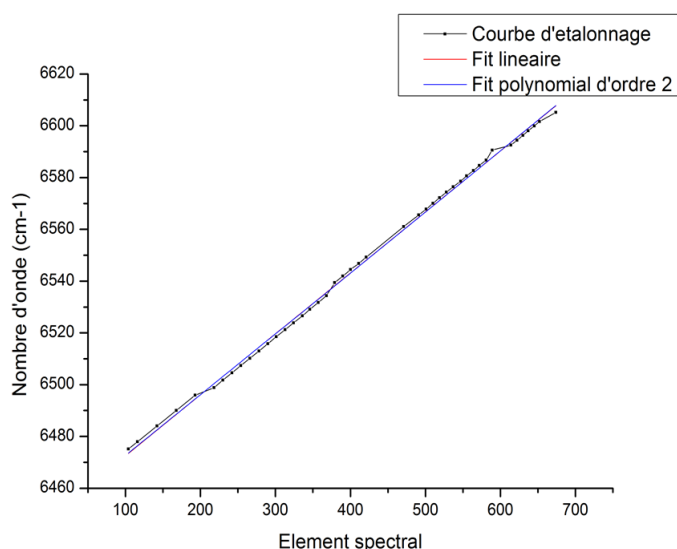


FIGURE 2.49 – Courbe d'étalonnage des nombres d'ondes. Un fit polynomial est réalisé pour déterminer l'équation de cette courbe.

à l'origine, un coefficient linéaire et un coefficient quadratique. Le coefficient quadratique est ici négligeable, nous obtenons en effet pour le coefficient linéaire une valeur de $0,23372 \pm 0,00714$ et pour le coefficient quadratique $2,27391 \times 10^{-6} \pm 8,7287 \times 10^{-6}$, l'incertitude du terme quadratique est supérieure à sa valeur ce qui signifie que ce terme n'est

pas nécessaire et que cette courbe d'étalonnage est linéaire. Les éventuelles fluctuations des paramètres Δf_{rep} et Δf_0 durant les 80 μ s d'acquisition ne viennent pas détériorer la linéarité de l'échelle des nombres d'onde. Un fit linéaire est ensuite effectué pour obtenir le pas en nombre d'onde qui est ici de $0,23555 \text{ cm}^{-1}$, ce pas correspond à la résolution spectrale de la mesure. L'ordonnée à l'origine fournie par cet ajustement va nous servir de point de départ pour une détermination plus fine de sa valeur.

Détermination de l'ordonnée à l'origine Après détermination du pas en nombre d'onde il reste à déterminer l'ordonnée à l'origine. L'utilisation d'une seule raie pour ajuster l'ordonnée à l'origine n'est pas suffisamment précise dans notre cas car la faible résolution spectrale ne permet pas de résoudre le sommet des raies d'absorption. On tire avantage de la largeur spectrale d'analyse pour enregistrer plusieurs raies d'absorption qui nous servent à contourner le manque de résolution pour déterminer l'ordonnée à l'origine. La méthode adoptée consiste à calculer un résidu entre la transmittance expérimentale notée Tr_{exp} et la transmittance théorique notée Tr_{th} en fonction d'une valeur x d'ordonnée à l'origine :

$$Residu(x) = \sum_i \| Tr_{exp}[i, x] - Tr_{th}[i] \| \quad (2.22)$$

Tr_{exp} et Tr_{th} étant des vecteurs, i représente l'indice du vecteur. Plus la valeur du résidu est faible plus la transmittance expérimentale et la théorique se superposent correctement. C'est à dire que la valeur de l'ordonnée à l'origine s'approche de la valeur juste. En traçant le résidu en fonction de l'ordonnée à l'origine il apparaît un minimum local, nous donnant la valeur de l'ordonnée à l'origine la plus adaptée pour étalonner notre transmittance expérimentale. Sur la Figure 2.50, la courbe représente le résidu en fonction de l'ordonnée à l'origine, l'ordonnée à l'origine est incrémentée d'une valeur inférieure à la valeur du pas, ici on a incrémenté l'ordonnée à l'origine de $0,023555 \text{ cm}^{-1}$ alors que le pas est de $0,23555 \text{ cm}^{-1}$. On observe clairement un minimum local, nous permettant de déterminer plus finement la valeur de l'ordonnée à l'origine.

Pour évaluer l'impact de l'étalonnage sur la concentration calculée nous avons réalisé plusieurs simulations de transmittance d'une cellule d'acétylène avec les paramètres suivants : Pression = 760 Torr, Température = 300 K, Longueur d'interaction = 10 cm et densité d'acétylène = 10^{19} cm^{-3} . Dans un premier temps on simule 500 transmittances décalées les unes par rapport aux autres par l'effet de l'instabilité de Δf_0 , comme précédemment les valeurs de Δf_0 sont simulées suivant une distribution gaussienne centrée en 0 et d'écart-type $1,5 \times 10^5$ Hz. Nous n'étalonnons pas individuellement ces 500 transmittances on utilise la même échelle de nombres d'onde pour les inverser. Le programme d'inversion ne peut pas exploiter ces transmittances qui sont incorrectement étalonnées. Ensuite nous étalonnons chacune de ces 500 transmittances sans utiliser le calcul du résidu décrit au dessus, ainsi les transmittances sont étalonnées uniquement à la résolution près c'est à dire 6 GHz dans notre cas. On inverse ces 500 transmittances et on obtient une densité moyenne d'acétylène $\langle N \rangle_{500} = 9,02 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et un écart-type $\sigma = 0,87 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ soit un biais d'environ 10% sur la concentration attendue.

Enfin nous étalonnons chacune des 500 transmittances en utilisant le calcul du résidu en balayant une ordonnée à l'origine plus finement que la résolution spectrale. La densité moyenne d'acétylène calculée vaut $\langle N \rangle_{500} = 9,90 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et un écart-type $\sigma = 0,22 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ soit un biais de 1% sur la concentration attendue. Ces simulations démontrent une limitation due à notre manque de résolution spectrale, ce manque de résolution génère une erreur systématique sur la concentration calculée d'environ 10% ce-

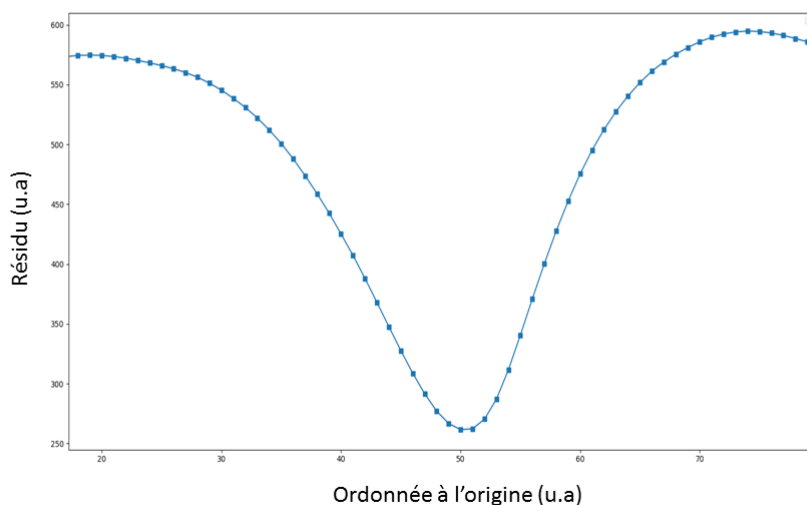


FIGURE 2.50 – Détermination de l'ordonnée à l'origine qui minimise le résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance théorique.

pendant nous ne pouvons pas augmenter notre résolution spectrale car celle-ci se ferait au détriment du RSB_v qui est nécessaire pour étalonner nos transmittances en nombre d'onde. Pour limiter cette erreur systématique il faut déterminer la meilleure ordonnée à l'origine de la courbe d'étalonnage en balayant cette ordonnée avec un incrément plus petit que la résolution spectrale. Ce qui nous permet d'obtenir une courbe représentant le résidu en fonction de l'ordonnée à l'origine et de choisir la valeur qui minimise celle du résidu.

Quantification des erreurs

Les différentes simulations réalisées à partir de l'absorption induite par une cellule d'acétylène dont les paramètres sont : Pression = 760 Torr, Température = 300 K, Longueur d'interaction = 10 cm et concentration d'acétylène = 10^{19} cm^{-3} nous ont permis de quantifier les biais induits suivant les différentes façons de traiter les spectres d'absorption. Lors des mesures DCS réalisées avec des peignes de fréquences entièrement stabilisés, les spectres d'absorption sont moyennés directement. Le tableau 2.2 donne l'erreur induite lorsque l'on moyenne 100 spectres d'absorption obtenus sans stabilisation des fréquences d'offset.

Le protocole suivi pour obtenir ce résultat est le suivant :

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (\text{cm}^{-3})$	$\sigma (\text{cm}^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ sans recalage	Non inversible	Non inversible

TABLEAU 2.2 – Quantification du biais induit sur la concentration lorsque l'on moyenne directement 100 spectres d'absorption.

- 100 spectres d'absorption de la cellule d'acétylène sont simulés avec des valeurs de Δf_0 différentes.
- Les 100 spectres sont moyennés tel quel.
- Le spectre obtenu est inversé pour obtenir la valeur de concentration moyenne dans la cellule. Cette inversion se fait à partir de la base de données HITRAN grâce à un ajustement de courbe en utilisant les paramètres de pression, température et longueur d'interaction utilisés initialement pour réaliser la simulation.
- On répète le protocole décrit jusqu'ici 500 fois pour obtenir une valeur moyenne de la concentration calculée et un écart-type.

Le tableau 2.3 donne l'erreur induite lorsque l'on moyenne 100 spectres d'absorption après utilisation de l'algorithme de recalage. Ici l'inversion devient alors possible.

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ avec correction post-acquisition	$7,3 \times 10^{18}$	$0,17 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.3 – Quantification du biais induit sur la concentration lorsque l'on utilise l'algorithme de recalage avant moyennage sur 100 spectres d'absorption.

Pour obtenir ce résultat nous avons utilisé le protocole suivant :

- 100 spectres d'absorption de la cellule d'acétylène sont simulés avec des valeurs de Δf_0 différentes.
- Les 100 spectres sont recalés à partir de l'algorithme de recalage post acquisition présenté dans la partie 2.2.5.
- Les 100 spectres recalés sont moyennés.
- Le spectre moyenné obtenu est inversé pour obtenir la valeur de concentration moyenne dans la cellule. Cet inversion se fait à partir de la base de données HITRAN grâce à un ajustement de courbe en utilisant les paramètres de pression, température et longueur d'interaction utilisés initialement pour réaliser la simulation.
- On répète le protocole décrit jusqu'ici 500 fois pour obtenir une valeur moyenne de la concentration calculée et un écart-type.

Cette méthode induit un biais puisque l'on obtient une concentration 25% inférieure à la concentration attendue. Ce biais étant important nous avons testé une nouvelle méthode de traitement des spectres d'absorption, en les inversant individuellement.

Le tableau 2.4 donne l'erreur induite lorsque l'on inverse 100 spectres d'absorption et que l'on moyenne leur concentrations.

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ avec étalonnage individuel à la résolution près	$9,02 \times 10^{18}$	$0,87 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.4 – Quantification du biais induit sur la concentration lorsque l'étalonnage des transmittances se fait uniquement à la résolution près.

Pour obtenir ce résultat nous avons utilisé le protocole suivant :

- 100 spectres d'absorption de la cellule d'acétylène sont simulés avec des valeurs de Δf_0 différentes.

- Chacun des 100 spectres est étalonné à la résolution près. C'est à dire sans utiliser la méthode de détermination de l'ordonnée à l'origine qui minimise le résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance théorique.
- Chacun des 100 spectres est inversé à partir de la base de données HITRAN pour obtenir 100 valeurs de concentration moyenne dans la cellule. Cet inversion se fait à partir de la base de données HITRAN grâce à un ajustement de courbe en utilisant les paramètres de pression, température et longueur d'interaction utilisés initialement pour réaliser la simulation.
- On répète le protocole décrit jusqu'ici 500 fois pour obtenir une valeur moyenne de la concentration calculée et un écart-type.

Cette façon de procéder induit un biais puisque la concentration calculée est environ 10% inférieure à la concentration attendue. Pour diminuer ce biais nous avons mis au point l'étalonnage avec variation de l'ordonnée à l'origine décrit dans la section précédente. Le tableau 2.5 donne l'erreur induite par cette autre méthode.

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ avec étalonnage individuel et minimisation du résidu	$9,90 \times 10^{18}$	$0,22 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.5 – Quantification du biais induit sur la concentration en utilisant la méthode d'étalonnage des transmittances avec minimisation du résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance simulée depuis HITRAN.

Pour obtenir ce résultat nous avons utilisé le protocole suivant :

- 100 spectres d'absorption de la cellule d'acétylène sont simulés avec des valeurs de Δf_0 différentes.
- Chacun des 100 spectres est étalonné finement. C'est à dire en utilisant cette fois ci la méthode de détermination de l'ordonnée à l'origine qui minimise le résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance théorique.
- Chacun des 100 spectres est inversé à partir de la base de données HITRAN pour obtenir 100 valeur de concentration moyenne dans la cellule. Cet inversion se fait à partir de la base de données HITRAN grâce à un ajustement de courbe en utilisant les paramètres de pression, température et longueur d'interaction utilisés initialement pour réaliser la simulation.
- On répète le protocole décrit jusqu'ici 500 fois pour obtenir une valeur moyenne de la concentration calculée et un écart-type.

Cette méthode permet d'obtenir un meilleur résultat puisque ici le biais induit sur la concentration calculée correspond à seulement 1% de la concentration attendue.

Le tableau 2.6 donne l'erreur induite lorsque l'on détermine la ligne de base par méthode numérique.

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de l'algorithme déterminant la ligne de base	$9,38 \times 10^{18}$	$0,04 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.6 – Quantification du biais induit par l'algorithme déterminant la ligne de base

Pour obtenir ce résultat nous avons utilisé le protocole suivant :

- 100 spectres d'absorption de la cellule d'acétylène sont simulés avec des enveloppes spectrales légèrement différentes.
- La ligne de base de chacun des 100 spectres est calculée grâce à l'algorithme de la dernière méthode numérique présentée dans la section 2.3.1 On obtient donc 100 transmittances.
- Chacune des 100 transmittances est inversée à partir de la base de données HITRAN pour obtenir 100 valeurs de concentration moyenne dans la cellule. Cet inversion se fait à partir de la base de données HITRAN grâce à un ajustement de courbe en utilisant les paramètres de pression, température et longueur d'interaction utilisés initialement pour réaliser la simulation.
- On répète le protocole décrit jusqu'ici 500 fois pour obtenir une valeur moyenne de la concentration calculée et un écart-type.

Ce résultat est sensible à la forme de l'enveloppe spectrale, au bruit de détection mais également à la transmittance du milieu sondé, c'est à dire les largeurs des raies d'absorption ainsi que de leur 'profondeur'. On ne peut donc pas s'attendre à obtenir précisément une erreur sur la concentration d'environ 6% lorsque l'on utilise cet algorithme. Ce calcul a été fait ici pour se donner une idée de l'erreur induite par cet algorithme. Il serait nécessaire d'évaluer cet erreur sur d'autre espèces chimiques tel que le dioxyde de carbone et la vapeur d'eau.

2.3.2 Protocole de mesure

Nous avons évoqué 4 sources importantes de biais sur les concentrations mesurées : le manque de stabilité de nos sources peignes de fréquences qui nous empêche d'augmenter le RSB des spectres par moyennage des interférogrammes. La solution trouvée est d'augmenter le RSB en détériorant la résolution spectrale ce qui conduit à enregistrer des interférogrammes courts de 80 μ s. Ces courts interférogrammes génèrent une fonction d'appareil non négligeable dans le domaine spectral puisque celle ci à une largeur à mi-hauteur équivalente aux raies d'absorption sondées (10 GHz à pression atmosphérique). La fonction d'appareil théorique est prise en compte lors de l'ajustement de courbe entre la transmittance expérimentale étalonnée et la transmittance théorique. La transmittance théorique générée à partir de la base de données HITRAN est convoluée par la fonction d'appareil théorique plutôt que de déconvoluer la transmittance expérimentale. L'élimination de la ligne de base est très importante, la solution la mieux appropriée consiste à utiliser une voie de référence permettant d'enregistrer un spectre d'absorption sans absorbant. La dernière source d'erreur évoquée est l'étape consistant à étalonner la transmittance en nombre d'onde. L'utilisation d'un ensemble de raies d'absorption permet une détermination plus précise de l'échelle des nombres d'onde. Les résultats présentés dans cette thèse ont suivi le protocole de mesure suivant :

- Acquisition de N interférogrammes de 80 μ s.
- Les N interférogrammes subissent une transformation de Fourier ce qui nous fournit N spectres d'absorption bruts c'est à dire convolués de la fonction d'appareil et non étalonnés.
- Les N spectres d'absorption sont divisés par leur enveloppe spectrale obtenue par méthode numérique ou par voie de référence. La méthode utilisée sera spécifiée pour chaque mesure. On obtient N Transmittances non étalonnées.
- Les N transmittances sont une à une étalonnées en nombre d'onde.

- Chacune des N transmittances étalonnées est inversée via un ajustement de courbe à partir de la base de données HITRAN en convoluant la transmittance issue de HITRAN par la fonction d'appareil théorique du spectromètre. On obtient N valeurs de concentration du milieu sondé.
- On moyenne les N valeurs de concentrations obtenues.

D'après le paragraphe précédent si l'on suit le protocole et que l'on utilise une voie de référence, on peut s'attendre à réaliser une erreur d'environ 1% sur la concentration calculée. Il faut toutefois des raies d'absorption absorbant environ 50% de la puissance optique comme c'est le cas ici avec la concentration d'acétylène choisie. Le tableau 2.7 récapitule les sources de biais attendues. En revanche si il n'est pas possible d'utiliser une voie de

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ avec étalonnage individuel et minimisation du résidu	$9,90 \times 10^{18}$	$0,22 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.7 – Biais attendu sur la concentration en utilisant la méthode d'étalonnage des transmittances avec minimisation du résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance simulée depuis HITRAN. Utilisation d'une voie de référence pour déterminer la ligne de base du spectre d'absorption.

référence le biais attendu sera égal à la somme quadratique des biais du tableau 2.8

Sources de biais	$\langle N \rangle_{500} (cm^{-3})$	$\sigma (cm^{-3})$
Effet de $\sigma \Delta f_0$ avec étalonnage individuel et minimisation du résidu	$9,90 \times 10^{18}$	$0,22 \times 10^{18}$
Effet de l'algorithme déterminant la ligne de base	$9,38 \times 10^{18}$	$0,04 \times 10^{18}$

TABLEAU 2.8 – Quantification du biais attendu sur la concentration calculée en utilisant la méthode d'étalonnage des transmittances avec minimisation du résidu entre la transmittance expérimentale et la transmittance simulée depuis HITRAN et en utilisant la méthode numérique de détermination de la ligne de base.

2.3.3 Pistes d'amélioration du système

Les principales défauts de notre système sont le manque de résolution spectrale (environ 6 GHz) et le manque de sensibilité. Sans un RSB_v qui rend exploitable des spectres d'absorption pour étalonnage et inversion il n'est pas possible de traiter les mesures. L'amélioration permettant de résoudre ces deux difficultés est la stabilisation complète de nos deux sources lasers afin d'augmenter la cohérence mutuelle. Cela permettrait de moyenner plusieurs interférogrammes complets et donc d'obtenir un RSB_v suffisamment élevé pour inverser les spectres d'absorption obtenus. De plus la résolution spectrale serait la résolution maximale c'est à dire 100 MHz, ce qui rendrait la fonction d'appareil du spectromètre négligeable.

2.4 Mise en pratique du protocole de mesure sur des cellules de gaz

Les premières réalisations de mesures en spectroscopie de Fourier à peigne de fréquences de cette thèse sont faites en laboratoire, dans un environnement stable sur des échantillons dont on peut connaître les valeurs de concentrations par un autre moyen afin de confronter les résultats obtenus par DCS. Dans cette section, nous présentons des mesures réalisées sur une cellule simple remplie d'acétylène et dont on compare la mesure de concentration par DCS à une mesure faite par TDLAS. Afin de nous rapprocher des applications visées pour cette thèse (détection de gaz à effet de serre) nous présentons une mesure réalisée sur une cellule multi-passage remplie d'un mélange de gaz calibré contenant 2,5% de dioxyde de carbone à pression atmosphérique.

2.4.1 Mesure en cellule d'acétylène

En tenant compte des différentes sources d'erreurs évoquées, nous souhaitons réaliser une mesure de concentration en dual comb spectroscopie et la comparer avec une mesure réalisée par TDLAS (Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy). Les mesures sont réalisées en suivant le protocole décrit dans la section 2.3.2

Le schéma du montage utilisé pour réaliser la mesure en DCS est représenté sur la figure 2.45, la cellule remplie d'acétylène mesure 10 cm de long. Le remplissage de la cellule a consisté à réaliser un vide sommaire de celle ci puis à la remplir jusqu'à pression atmosphérique (760 Torr) avec de l'acétylène pur. Pour l'acquisition, les différentes sources d'erreurs évoquées sont prises en compte afin d'améliorer la précision de la mesure. Seul l'asservissement des fréquences de répétition des lasers fonctionne et nous enregistrons 500 interférogrammes consécutifs chacun de 80 μ s. Chaque interférogramme centré sur la frange centrale est composé de 8096 éléments échantillonnés à 125 MHz. La différence de fréquence de répétition est de 220 Hz. Chaque interférogramme est ensuite traité pour obtenir le spectre d'absorption puis la mesure de référence est utilisée pour obtenir la transmittance expérimentale. La transmittance est ensuite étalonnée comme décrit dans la section précédente et enfin on réalise un ajustement de courbe à partir d'une transmittance simulée à partir de la base de données HITRAN pour déduire la concentration moyenne de la cellule d'acétylène. On rappelle que la simulation de la transmittance est convoluée à partir de la fonction d'appareil théorique du spectromètre. La figure 2.51 représente les densités d'acétylène calculées pour chacun des 500 interférogrammes enregistrés. Chaque transmittance expérimentale est comparée à une transmittance théorique pour laquelle les valeurs de pression et température sont fixées comme étant 760 Torr et 295 K, la longueur de la cellule est aussi un paramètre fixé à 10 cm. L'ajustement de la transmittance théorique se fait uniquement sur le paramètre de densité d'acétylène dans la cuve. A partir de ces 500 valeurs de densité on calcule la valeur moyenne et un écart type. Ici la densité moyenne notée $\langle N_{C_2H_2} \rangle$ vaut $9,14 \times 10^{18} cm^{-3}$ et l'écart type σ_N vaut $3,15 \times 10^{18} cm^{-3}$ soit 35% de la valeur moyenne. La grande dispersion des résultats justifie le moyennage sur 500 acquisitions, l'incertitude sur la densité calculée avec un seul interférogramme serait beaucoup trop importante, la valeur trouvée aurait donc peu d'intérêt. Bien que suffisant pour distinguer les raies d'absorption sur le spectre, le RSB doit être à l'origine de la dispersion des densités d'acétylène calculées.

La figure 2.52 représente la déviation d'Allan des densités mesurées. Cette courbe peut être ajustée une fonction $\frac{1}{\sqrt{N}}$, ce qui nous informe que l'écart type de la mesure de concen-

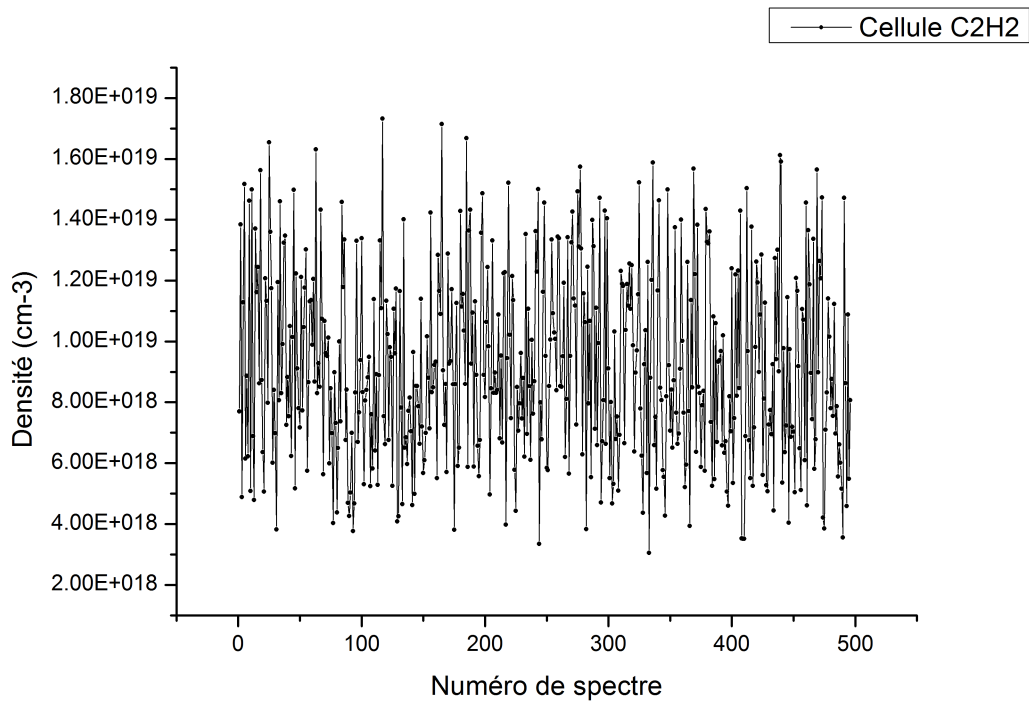


FIGURE 2.51 – Densité de la cellule d’acétylène mesurée avec la méthode de spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences. La densité moyennée sur les 500 acquisitions vaut $9,14 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et l’écart type $3,15 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

tration moyennée évolue en \sqrt{N} .

La méthode TDLAS consiste à balayer le courant de pompe d’une diode laser accordable afin de lui faire parcourir une plage de longueur d’onde contenant au moins une raie d’absorption du milieu à sonder. Le faisceau de la diode laser traverse le milieu à sonder puis est envoyé sur une photodiode. L’évolution temporelle du signal électrique émis par la photodiode permet d’obtenir un spectre d’absorption. En augmentant le courant de pompe de la diode laser on augmente la puissance optique, ce qui augmente la tension délivrée par la photodiode. En augmentant le courant de pompe on augmente également la longueur d’onde de la diode laser, c’est à dire que l’évolution temporelle de la longueur d’onde correspond à l’évolution temporelle du courant de pompe. Il en résulte que le signal émis par la photodiode nous fournit un spectre d’absorption. Le schéma du montage de l’expérience est représenté sur la figure 2.53. L’expérience nécessite une diode laser accordable sur quelques cm^{-1} autour de 6490 cm^{-1} . Cette diode laser est réglée en courant et température à l’aide d’un module PID. Un générateur basse fréquence permet de moduler le courant de pompe. Des modulations triangulaires à 40 Hz sont utilisées pour balayer une plage de longueur d’onde de 5 cm^{-1} autour de 6490 cm^{-1} . Une première mesure consiste à sonder une cellule de gaz remplie d’acétylène. Le faisceau laser sortant de la fibre de la diode laser est envoyé en espace libre et traverse la cellule. Le faisceau est ensuite collecté sur une photodiode InGaAs à l’aide d’une lentille convergente afin de focaliser suffisamment le faisceau pour qu’il soit de diamètre inférieur au diamètre du détecteur. Le signal est échantillonné à 250 kHz et enregistré avec un oscilloscope. Une seule rampe du motif triangulaire est enregistrée. Le signal est moyenné sur 512 acquisitions. Un second montage est réalisé pour enregistrer le zéro d’absorption. La

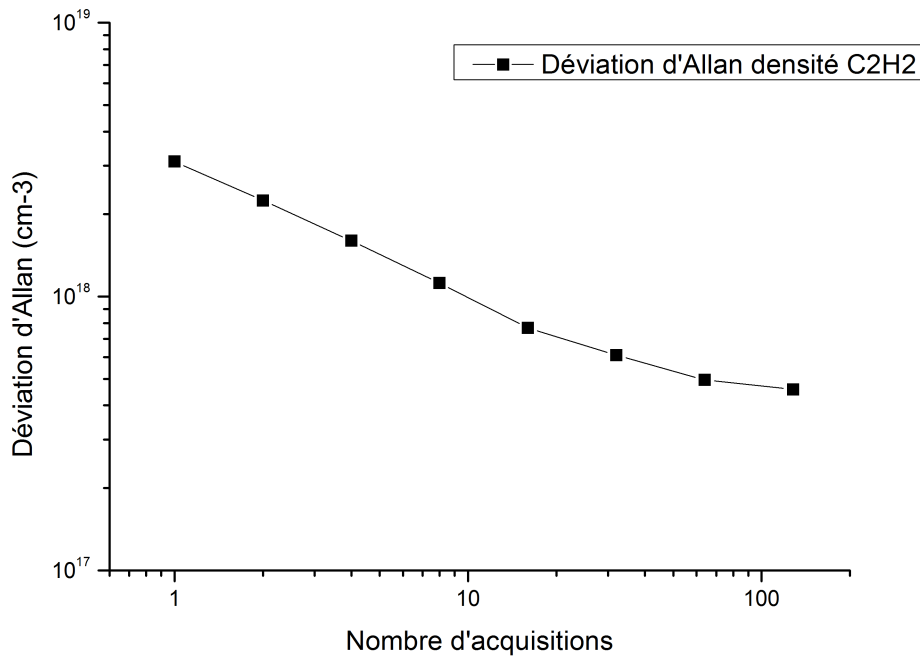


FIGURE 2.52 – Déviation d'Allan des densités mesurées.

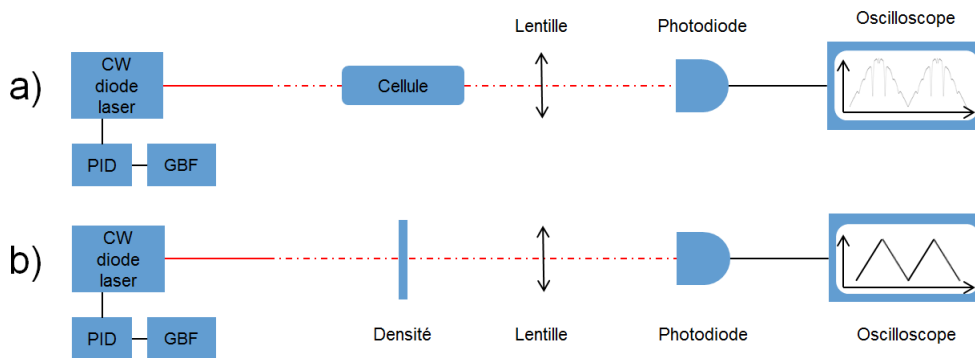


FIGURE 2.53 – Schéma de l'expérience TDLAS réalisée pour calibrer la cellule d'acétylène.

cellule d'acétylène est retirée du montage précédent afin d'obtenir un spectre sans raie d'absorption. Cependant, sans l'absorption du faisceau laser par la cellule d'acétylène la puissance optique arrivant sur le détecteur fait saturer le signal. On place une densité à la place de la cellule pour éviter la saturation du détecteur. La figure 2.54 représente les deux acquisitions enregistrées, la rampe rouge représente la mesure sans cellule de gaz et la rampe noire représente la mesure avec la cellule de gaz.

La courbe d'étalonnage de la figure 2.55 est obtenue à partir du sommet des 5 raies visibles sur le spectre d'absorption, en les faisant correspondre à leur valeur en nombre d'onde obtenu à partir de la base de données HITRAN. La courbe d'étalonnage est ajustée à partir d'un polynôme d'ordre 2 afin d'obtenir l'échelle en nombre d'onde. L'élimination de l'enveloppe en forme de rampe est réalisée grâce à la mesure de référence faite sans la cellule. Cependant à cause de la saturation du détecteur une densité est utilisée afin d'atténuer la puissance optique dans le but de rester dans le régime linéaire de fonctionnement. En divisant le spectre d'absorption par le spectre de référence sans les raies on

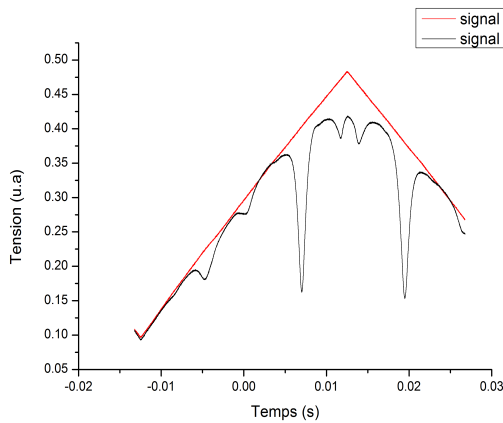


FIGURE 2.54 – Spectre d'absorption et spectre de référence enregistrés en utilisant la méthode TD-LAS.

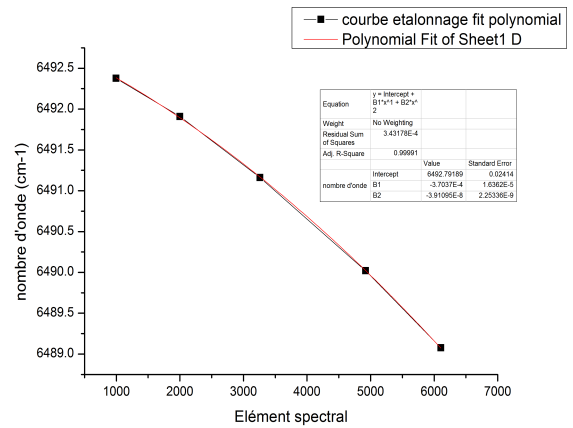


FIGURE 2.55 – Courbe d'étalonnage à partir du positionnement des 5 raies d'absorption visibles sur le spectre.

obtient une transmittance correctement redressée. Certaines valeurs de cette transmittance sont supérieures à 1, ce qui indique une mauvaise normalisation. Grâce à la simulation de la transmittance avec HITRAN, on repère dans l'intervalle sondé vers $6492,70 \text{ cm}^{-1}$ une position loin de toute raie et dont la transmittance vaut 1. On réalise donc une normalisation sur la transmittance expérimentale en divisant l'ensemble du spectre par sa valeur au nombre d'onde $6492,70 \text{ cm}^{-1}$. On réalise un ajustement de courbe entre la transmittance expérimentale représentée en noire sur la figure 2.56 et une transmittance simulée à partir de la base de données HITRAN représentée ici en rouge. Les valeurs de pression et température sont imposées comme étant 760 Torr et 295 K, la longueur de la cuve est elle aussi fixée à 10 cm, l'ajustement de courbe a lieu uniquement sur la densité d'acétylène. L'optimisation de l'ajustement de courbe nous fournit une valeur de densité moyenne d'acétylène dans la cellule de $9,97 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. L'ajustement de courbe est certainement dégradé par l'étalonnage de l'échelle en nombre d'onde qui n'est composée que de 5 points pour définir une largeur spectrale de 4 cm^{-1} . Usuellement un Fabry-Perot ainsi qu'une raie d'absorption bien connue sont utilisés pour étalonner l'échelle des nombres d'onde. L'écart entre la mesure DCS et la mesure TDLAS représente 8% de

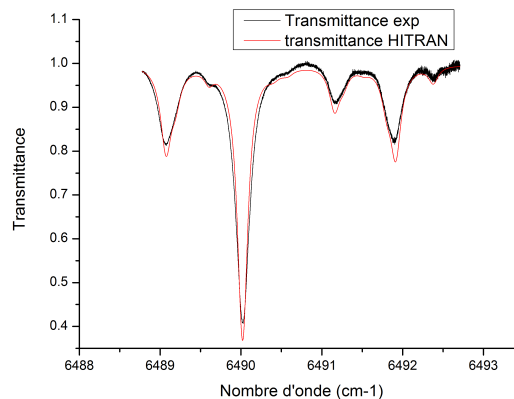


FIGURE 2.56 – Ajustement de courbe entre la transmittance expérimentale étalonnée et la transmittance simulée à partir de la base de données HITRAN.

la valeur mesurée par TDLAS alors que l'on s'attend à une erreur de 1% d'après le tableau

2.7.

	Valeur TDLAS	Valeur DCS
Concentration (cm^{-3})	$9,97 \times 10^{18}$	$9,14 \times 10^{18}$
Biais	8%	

TABLEAU 2.9 – Comparaison entre la concentration obtenue avec notre protocole DCS et la mesure obtenue avec le système TDLAS.

Cette différence trouve son origine par les différentes sources d'erreurs systématiques : d'une part sur la mesure DCS et d'autre part sur la mesure TDLAS. Pour la mesure DCS le bruit de mesure détériore l'étalonnage. Pour la mesure TDLAS, nous n'avons pas pu utiliser de voie de référence pour déterminer la ligne de base, nous n'avons pas non plus de cellule de référence pour faciliter l'étalonnage en nombre d'onde.

2.4.2 Mesure en cellule de dioxyde de carbone

Ayant pour objectif de réaliser des mesures de gaz à effet de serre en extérieur, nous avons réalisé au préalable des mesures de concentrations de CO_2 en cellule de gaz. Nous avons utilisé une cellule multi-passages de longueur totale égale à 30 mètres. La cellule est tout d'abord pompée pour obtenir un vide sommaire (10^{-2} mbar), le capteur de pression utilisé n'étant pas performant, on ne peut pas quantifier le vide obtenu dans la cellule avant injection du gaz. Une bouteille de CO_2 en concentration égale à 2,5 % est utilisée, la cellule est remplie jusqu'à atteindre la pression atmosphérique c'est à dire 760 Torr. Le schéma du montage est représenté sur la figure 2.57, après avoir combiné les faisceaux des deux lasers peigne de fréquences ayant une différence de fréquence de répétition de 220 Hz, ils sont envoyés pour sonder la cellule multi-passage. Les faisceaux sortant portent l'information sur le milieu sondé c'est à dire 30 mètres de gaz à 760 Torr de pression à température ambiante de 300 K et chargé en CO_2 à hauteur de 2,5%. Le battement des deux faisceaux sur le détecteur est enregistré pour 100 interférogrammes.

Cette expérience a été réalisée sans voie de référence, car nous n'avons pas encore le matériel pour constituer la seconde voie d'acquisition, c'est à dire un détecteur InGaAs et un amplificateur de signal électronique de qualité. L'élimination de l'enveloppe spectrale du spectre d'absorption est obtenue en remplaçant manuellement les points semblant appartenir à une raie d'absorption par interpolation linéaire. Le type de résultat obtenu est représenté sur la figure 2.58, en noir un spectre d'absorption et en rouge l'enveloppe obtenue par la méthode.

La figure 2.59 montre les densités de CO_2 retrouvés dans la cellule pour chacun des 100 interférogrammes. L'ajustement de courbe entre les transmittances expérimentales et les transmittances simulées se fait uniquement en faisant varier le paramètre densité du CO_2 c'est à dire que la pression, température et longueur de la cellule sont fixes et valent respectivement 760 Torr, 300 K et 30 m.

La densité moyenne obtenue sur les 100 mesures égale $6,12 \times 10^{17} cm^{-3}$ et l'écart-type vaut $1,08 \times 10^{17} cm^{-3}$ soit 18% de la valeur moyenne, le RSB doit être à l'origine de la dispersion des densités calculées. La densité théorique dans la cellule peut être calculée à partir de la valeur de pression $P = 101325 Pa$, température $T = 300 K$ et la fraction de CO_2 de la bouteille notée $\alpha_{CO_2} = 2,5 \times 10^{-2}$ de gaz utilisée et $k_B = 1,38 \times 10^{-23} J.K^{-1}$ la constante de Boltzmann :

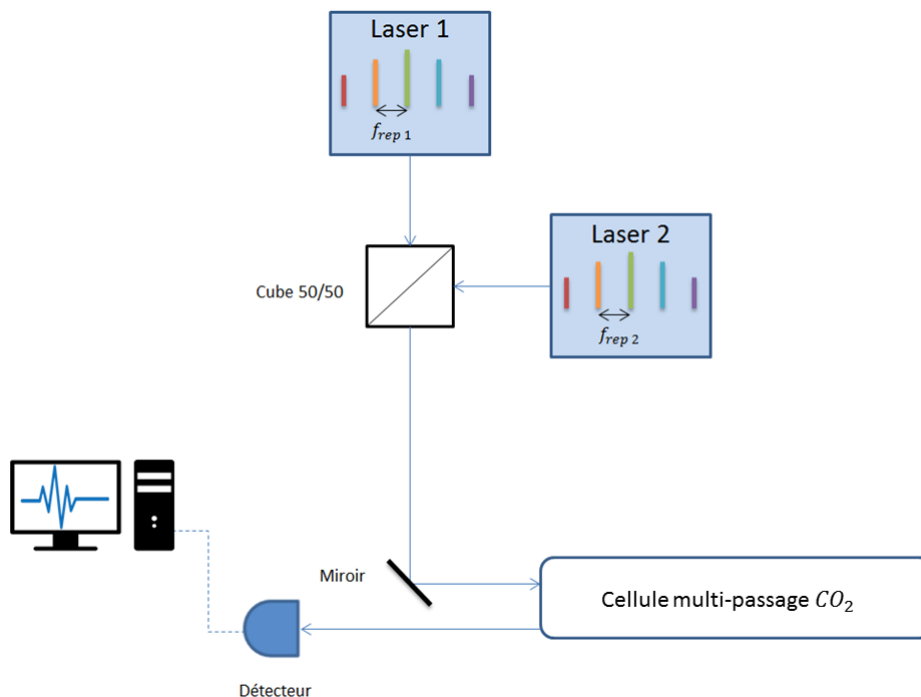


FIGURE 2.57 – Schéma du montage expérimental ayant servi pour réaliser des mesures de concentration de CO₂ en cellule multipassage.

$$N_{\text{CO}_2} = \frac{P\alpha_{\text{CO}_2}}{k_B T}$$

La valeur de N_{CO_2} calculée vaut $6,1 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ ou $6,1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. L'écart entre la valeur théorique et la valeur mesurée correspond à moins de 1% de la valeur théorique. Cependant la méthode utilisée pour obtenir la transmittance n'est pas aussi fiable que celle consistant à utiliser une voie de référence puisqu'elle néglige l'absorption globale. Dans ce cas bien précis l'absorption globale est négligeable puisque elle est inférieure à 1% d'après la simulation HITRAN.

	Valeur Bouteille de gaz	Valeur DCS
Concentration (cm^{-3})	$6,10 \times 10^{17}$	$6,12 \times 10^{17}$

TABEAU 2.10 – Comparaison entre la concentration obtenue avec notre protocole et la concentration de la bouteille de gaz utilisée.

Ces résultats sur cellule de gaz simple ou multi-passage démontrent la possibilité de réaliser des mesures quantitatives de concentrations à l'aide de la méthode de spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences sans stabilisation des lasers ni compensations post acquisition dans des cas favorables, c'est à dire un milieu bien maîtrisé avec des raies d'absorption fortes.

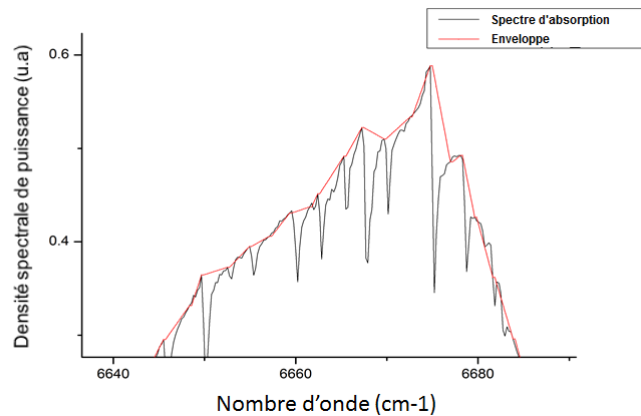


FIGURE 2.58 – Spectre d'absorption en noir et enveloppe spectrale obtenue en remplaçant les points appartenant à une raie d'absorption par une interpolation linéaire.

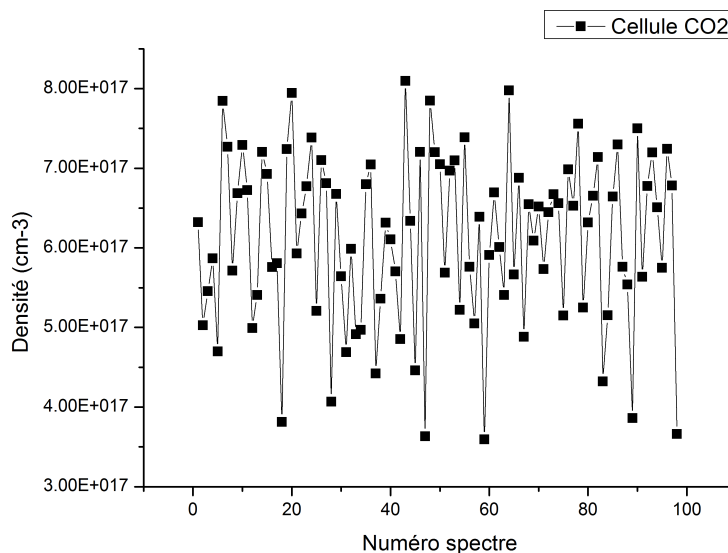


FIGURE 2.59 – Densité en CO₂ dans la cellule multipassage.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons mis en place un système de stabilisation des fréquences de répétition vendu par MenloSystems ainsi qu'un système de stabilisation des fréquences d'offset de nos sources lasers. Nous avons quantifié le niveau de stabilité obtenu. Le manque de stabilité du paramètre Δf_0 ne nous permet pas de moyennner tel quel nos acquisitions. Ce manque de stabilité nous a conduit à mettre au point un algorithme de traitement post-acquisition. Pour fonctionner cet algorithme nécessite que les spectres d'absorption disposent d'un RSB spectral suffisamment élevé pour distinguer les raies d'absorption du bruit de mesure. Pour avoir un RSB suffisamment élevé nous avons dû nous résoudre à diminuer la résolution spectrale de nos acquisitions jusqu'à 6 GHz, au bénéfice du RSB. Cette résolution spectrale ne permet pas de résoudre les dents du peigne qui sont espacées de 100 MHz. L'algorithme de recalage ne permet pas de corriger les fluctuations de Δf_0 plus finement que la résolution spectrale. Après moyennage des acquisitions recalées par l'algorithme, l'inversion du spectre d'absorption moyenné nous a conduit à une er-

reur de sous-estimation sur la concentration d'environ 25% de la valeur attendue. Nous avons donc mis en place un protocole consistant à ne pas moyenniser les acquisitions mais à inverser chaque acquisition individuellement et de moyenniser ensuite les concentrations calculées.

Nous avons ensuite pris en compte ce protocole pour réaliser des mesures en cellule de gaz nous permettant de retrouver les concentrations proches de celles attendues avec moins de 10% d'écart pour des transmissions inférieures à 50% à pression atmosphérique.

2.6 Références

- Brown, D. M., K. Shi, Z. Liu et C. R. Philbrick. 2008, «Long-path supercontinuum absorption spectroscopy for measurement of atmospheric constituents», *Optics Express*, vol. 16, n° 12, p. 8457–8471. [65](#), [66](#)
- Chen, Z., T. W. Hänsch et N. Picqué. 2019, «Mid-infrared feed-forward dual-comb spectroscopy», *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 116, n° 9, p. 3454–3459. [47](#)
- Coddington, I., W. C. Swann et N. R. Newbury. 2008, «Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs», *Physical Review Letters*, vol. 100, n° 1, p. 013 902. [46](#)
- Cundiff, S. T. et J. Ye. 2005, «Phase stabilization of mode-locked lasers», *journal of modern optics*, vol. 52, n° 2-3, p. 201–219. [48](#)
- Giaccari, P., J.-D. Deschênes, P. Saucier, J. Genest et P. Tremblay. 2008, «Active fourier-transform spectroscopy combining the direct rf beating of two fiber-based mode-locked lasers with a novel referencing method», *Optics express*, vol. 16, n° 6, p. 4347–4365. [48](#)
- Ideguchi, T., A. Poisson, G. Guelachvili, N. Picqué et T. W. Hänsch. 2014, «Adaptive real-time dual-comb spectroscopy», *Nature communications*, vol. 5, p. 3375. [47](#), [49](#)
- Lieber, C. A. et A. Mahadevan-Jansen. 2003, «Automated method for subtraction of fluorescence from biological raman spectra», *Applied spectroscopy*, vol. 57, n° 11, p. 1363–1367. [65](#), [66](#)
- Meek, S. A., A. Poisson, G. Guelachvili, T. W. Hänsch et N. Picqué. 2014, «Fourier transform spectroscopy around 3 μm with a broad difference frequency comb», *Applied Physics B*, vol. 114, n° 4, p. 573–578. [48](#)
- Roy, J., J.-D. Deschênes, S. Potvin et J. Genest. 2012, «Continuous real-time correction and averaging for frequency comb interferometry», *Optics express*, vol. 20, n° 20, p. 21 932–21 939. [47](#)
- Ye, J. et S. T. Cundiff. 2005, *Femtosecond optical frequency comb : principle, operation and applications*, Springer Science & Business Media. [44](#), [45](#)

Chapitre 3

Premiers tests de détection de gaz à effet de serre à courte portée (27m) et moyenne portée (140m)

Sommaire

3.1 Etat de l'art	90
3.2 Mesure de la concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré courte portée (27m)	92
3.2.1 Montage expérimental	92
3.2.2 Mesure de la concentration de la vapeur d'eau en contenu intégré courte portée (27 m)	94
3.3 Détection atmosphérique multi-espèces en contenu intégré à moyenne portée (140m)	99
3.3.1 Montage expérimental	99
3.3.2 Mesure de concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré moyenne portée (140m)	100
3.3.3 Détection du dioxyde de carbone	104
3.4 Conclusion	105
3.5 Références	106

L'objectif de ce chapitre est de réaliser des premiers tests de détection de gaz à effet de serre (HDO) à courte portée (27 m) et de détection de gaz multi-espèces simultanée à moyenne portée (140 m) (CO_2 , H_2O). Nous utilisons un rétroreflécteur pour renvoyer le signal sur le détecteur. Il s'agit donc de mesures de type "open path" dans laquelle le faisceau laser est capté en totalité après un aller-retour dans l'atmosphère, et les concentrations mesurées sont intégrées sur la ligne de visée. Les résultats obtenus sont comparés soit à des valeurs de concentration de vapeur d'eau obtenues par l'instrument Picarro soit à des valeurs d'humidité relative obtenues sur le site du SIRTÀ [SIR]. Ces comparaisons nous permettent d'estimer les performances de notre système de mesure.

3.1 Etat de l'art

L'utilisation de la méthode de spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences pour réaliser des mesures dans l'atmosphère date de 2014 [Rieker et collab., 2014]. L'équipe du professeur G.B Rieker au NIST (National Institute of Standards and Technology) réalise une première démonstration de mesure de concentrations de gaz à effets de serre en mesurant à la fois les concentrations de dioxyde de carbone, méthane, vapeur d'eau et d'eau lourde ($^2\text{H}_2\text{O}$). Une précision meilleure que le ppm est atteinte pour le CO_2 et meilleure que 3 ppb pour le CH_4 en moyennant 5 minutes d'acquisition avec une résolution spectrale de 100 MHz. Ils réalisent également un suivi temporel de ces concentrations sur 3 jours consécutifs avec une résolution temporelle de 5 minutes, les courbes sont présentées sur la figure 3.1. En 2015 l'équipe du professeur Zhu [Zhu et collab., 2015] réalise une

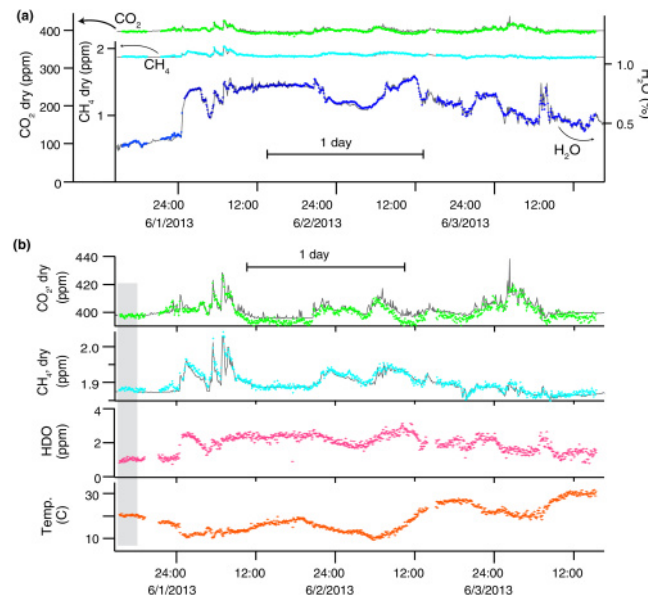


FIGURE 3.1 – (a) : Suivi des concentrations en CO_2 , CH_4 , H_2O , $^2\text{H}_2\text{O}$ sur 3 jours. (b) : De haut en bas suivie des concentrations du CO_2 , CH_4 , HDO et de la température. Courbes tirées de [Rieker et collab., 2014].

mesure de la concentration du méthane ambiant en utilisant une cellule multi-passages de 580 m de longueur effective. La même année l'équipe du NIST réalise de nouvelles mesures de concentration des espèces CO_2 , CH_4 et H_2O en réalisant des spectres de phase démontrant ainsi la possibilité d'enregistrer des spectres complexes complets lors de mesures atmosphériques sur 2 km [Giorgetta et collab., 2015]. L'interaction du champ électrique avec un milieu absorbant modifie le champ en amplitude et en phase, un spectre

de phase consiste à enregistrer non pas l'amplitude du champ électrique en fonction de la longueur d'onde mais la phase du champ. En 2017 l'équipe du NIST réalise des mesures selon la direction verticale de l'atmosphère en utilisant un rétroreflecteur embarqué sur un drone [Cossel et collab., 2017]. La longueur d'interaction entre les faisceaux lasers et l'atmosphère est mesurée à l'aide de la position GPS du drone. La portée des mesures est de un kilomètre. La figure 3.2 représente le schéma de principe de la mesure par drone.

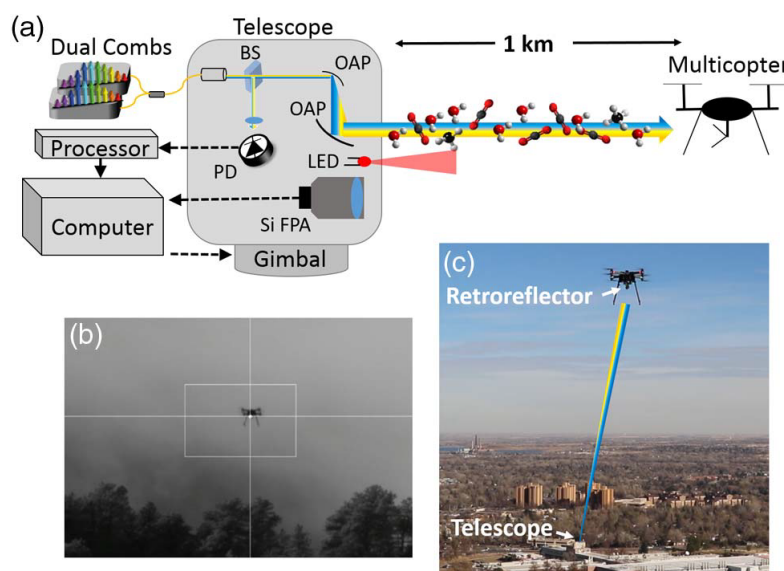


FIGURE 3.2 – Image tirée de [Cossel et collab., 2017]. (a) Schéma du montage utilisé. Un faisceau à 850 nm ainsi qu'une caméra sont utilisés pour réaliser l'alignement entre le système d'émission réception est le drone portant le rétroreflecteur. Un Gimbal est utilisé pour modifier et optimiser l'alignement. (b) Image du drone par la caméra servant à l'alignement. (c) Photo du drone, le trajet des faisceaux lasers est représenté.

Dernièrement l'équipe du NIST a réalisé des mesures DCS permettant de couvrir la surface d'un terrain circulaire dont le diamètre est de 1 km. Pour cela ils ont développé un spectromètre DCS portable et plusieurs rétroreflecteurs disposés sur le périmètre de ce cercle permettant ainsi de cartographier la surface du cercle [Coburn et collab., 2018]. Les mesures de concentrations obtenues, couplées aux informations météorologiques locales ainsi qu'à un modèle de transport atmosphérique ont permis d'identifier les sources de méthane dans la zone couverte ainsi que de quantifier les taux d'émission de ces sources.

Toutes ces mesures ont été réalisées en utilisant un rétroreflecteur, fournissant une mesure de concentration intégrée sur la ligne de visée des lasers.

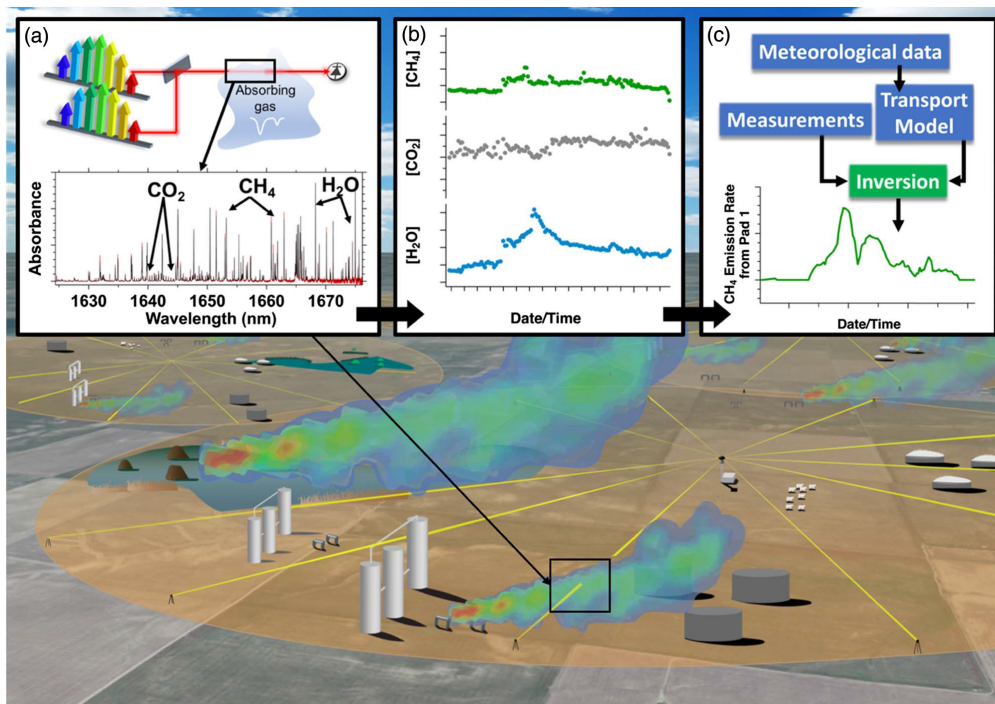


FIGURE 3.3 – Image tirée de [Coburn et collab., 2018], suivi d'émissions de CH_4 dans une surface de quelques km^2 à l'aide d'un système DCS centralisé et de rétroreflecteurs.

3.2 Mesure de la concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré courte portée (27m)

Dans cette section nous présentons notre premier essai de détection et mesure de concentration d'une espèce atmosphérique. Trois espèces chimiques atmosphériques sont détectables dans la bande d'émission spectrale de nos lasers : la vapeur d'eau (6700 cm^{-1}), le dioxyde de carbone (6350 cm^{-1}) et le méthane (6170 cm^{-1}). Cependant les différentes raies d'absorption observables n'ont pas les mêmes forces. La force de raie quantifie le pouvoir absorbant d'une transition, à concentration égale plus la force de raie est élevée plus la transition moléculaire sera absorbante. La figure 3.4 représente les forces de raies des trois espèces appartenant à la bande d'émission de nos lasers. L'eau et le dioxyde de carbone présentent les forces de raies les plus élevées, cependant les concentrations de ces deux espèces dans l'atmosphère au niveau du sol n'ont pas les mêmes ordres de grandeur. La concentration en CO_2 est de l'ordre de 400 ppm et celle de la vapeur d'eau varie entre 40 ppm et 40000 ppm. L'eau est l'espèce qui présente les raies d'absorption les plus intenses dans la bande d'émission de nos lasers ce qui facilite sa détection ainsi que les mesures de concentrations par DCS. Plusieurs dizaines de mètres sont tout de même nécessaires pour obtenir des absorption de quelques dizaines de pourcents. Nous réalisons une mesure de concentration de vapeur d'eau comme première mesure de concentration d'espèces atmosphériques. Pour cela nous allons sonder 54 mètres d'atmosphère (aller-retour) et comparer le résultat obtenu à une valeur d'humidité relative ou une valeur de concentration de vapeur d'eau obtenue à l'aide d'autres instruments.

3.2.1 Montage expérimental

Afin de sonder quelques dizaines de mètres d'atmosphère nous utilisons le couloir du bâtiment dans lequel notre laboratoire est situé. Nous utilisons un miroir pour permettre

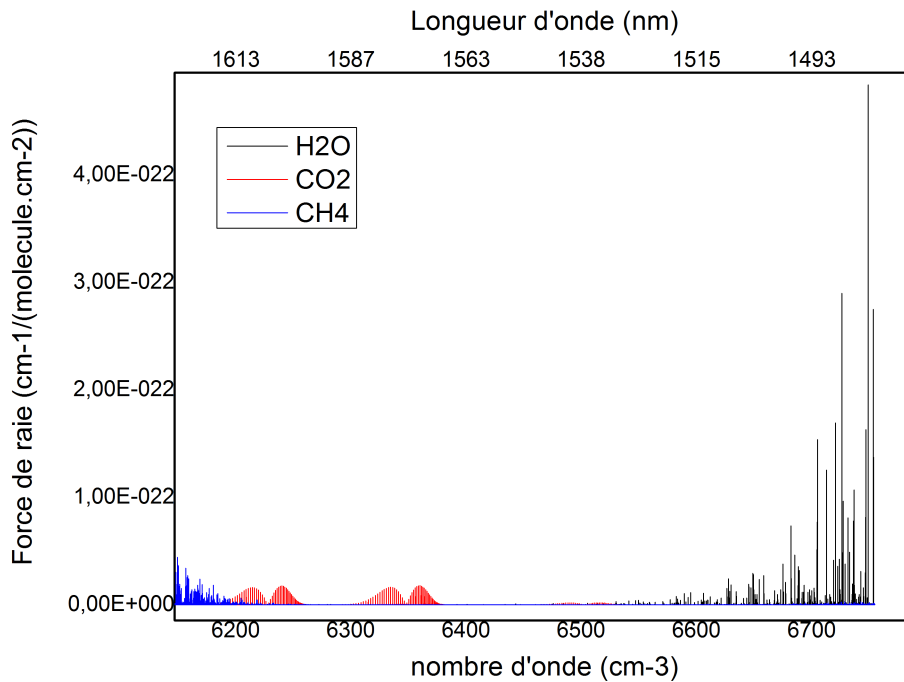


FIGURE 3.4 – Force de raie des espèces CO₂, CH₄ et H₂O sur la bande 6100-6750 cm^{-1} .

à notre faisceau lumineux de réaliser un aller-retour, soit 55 mètres. Le schéma du montage est représenté sur la figure 3.5.

Après avoir couplé les faisceaux de nos deux lasers peignes de fréquences dans la même

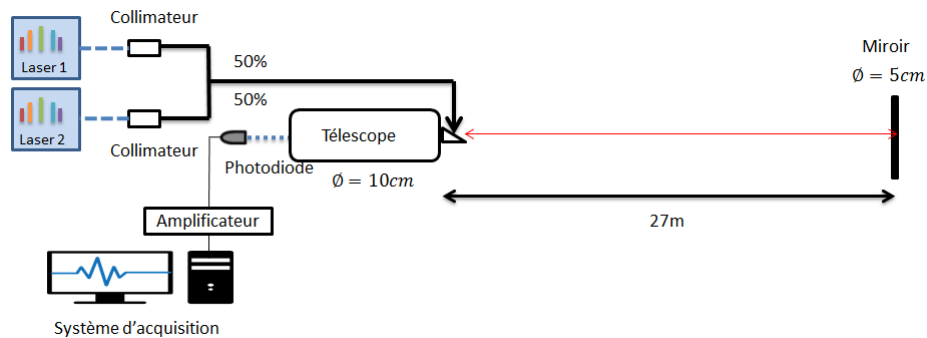


FIGURE 3.5 – Schéma du montage utilisé pour réaliser une mesure DCS de concentration d'H₂O atmosphérique.

fibres optiques nous les envoyons sonder les 27 mètres de couloir, un miroir de 5 cm de diamètre permet de renvoyer les faisceaux jusqu'au télescope de 10 cm de diamètre (Figure 3.6). Pour s'assurer du bon recouvrement entre le champ de vue du télescope et le diamètre de notre faisceau laser après propagation nous utilisons un collimateur composé d'un doublet de lentilles pour collimater le faisceau. La distance focale que l'on note f est de 37 mm. Le faisceau est injecté dans le collimateur grâce à une fibre à maintien de polarisation monomode à 1550 nm. Connaissant le diamètre de mode de la fibre noté MFD = 10 μm (mode field diameter) et la focale du collimateur on calcule la divergence de notre faisceau laser :

$$\theta = \frac{MFD}{f} \times \frac{180}{\pi} \quad (3.1)$$

A partir de la divergence on calcule le diamètre du faisceau après propagation jusqu'à la distance z :

$$\varnothing_z = 2w(z) = 2 \times z \times \tan(\theta) \quad (3.2)$$

En arrivant sur le miroir qui se trouve à 27 m le diamètre du faisceau est d'environ 1,4 cm et de 2,8 cm à 55 m en arrivant sur le télescope. Il n'y a pas de perte de recouvrement entre le diamètre du télescope et le diamètre du faisceau laser après propagation. La lumière dont le champ électrique porte les informations d'absorption du milieu sondé est collectée et focalisée sur notre détecteur. Nous n'avons pas de seconde voie d'acquisition



FIGURE 3.6 – Image du télescope utilisé pour récolter la lumière portant l'information sur les 55 m d'atmosphère sondés.

pour réaliser une mesure de la ligne de base au moment de la mesure, nous avons donc utilisé la méthode numérique consistant à construire une ligne de base en remplaçant les points appartenant à une raie d'absorption par interpolation linéaire.

3.2.2 Mesure de la concentration de la vapeur d'eau en contenu intégré courte portée (27 m)

Basé sur le schéma de la figure 3.5, nous avons réalisé des mesures en suivant le protocole décrit dans la section 2.3.2. On rappelle les 6 étapes de ce protocole :

- On fait ici l'acquisition de 2000 interférogrammes de 80 μ s.
- On effectue une transformation de Fourier sur chacun de ces 2000 interférogrammes pour obtenir 2000 spectres d'absorption. La figure 3.7 représente le spectre d'absorption issu d'un des 2000 interférogrammes acquis. Le rapport signal sur bruit de ce spectre permet de repérer une forte raie d'absorption autour de 1,50 μ m dont le RSB_v vaut 18.
- Chacun de ces 2000 spectres d'absorption est affranchi de sa ligne de base. L'absence de voie de référence pour obtenir la ligne de base des spectres d'absorption a été comblée par l'utilisation d'une méthode numérique. La méthode utilisée est celle qui consiste à filtrer l'enveloppe du spectre d'absorption. En réalisant cela sur chacun des 2000 spectres d'absorption on obtient 2000 transmittances pas encore étalonnées.

- Chacune des transmittances est étalonnée en utilisant la méthode décrite dans la section 2.3.1. La figure 3.8 représente une transmittance expérimentale centrée autour des raies d'absorption de l'eau.
- Ensuite chacune des 2000 transmittances étalonnées est inversée via un ajustement de courbe à partir de la base de données HITRAN en convoluant la transmittance issue de HITRAN par la fonction d'appareil théorique du spectromètre. Pour l'ajustement de courbe la pression et la température sont fixées aux valeurs atmosphériques : $P = 760$ Torr et $T = 18^\circ\text{C}$ (291 K), la longueur d'interaction entre l'échantillon sondé et les faisceaux est fixée à 54 mètres l'incertitude sur la longueur d'interaction est de l'ordre du mètre soit une erreur relative inférieure à 2%. Le seul paramètre ajustable est la concentration en vapeur d'eau. On obtient alors 2000 valeurs de concentration du milieu sondé représentées sur la figure 3.9 la déviation d'Allan de ces mesures sur la figure 3.10.

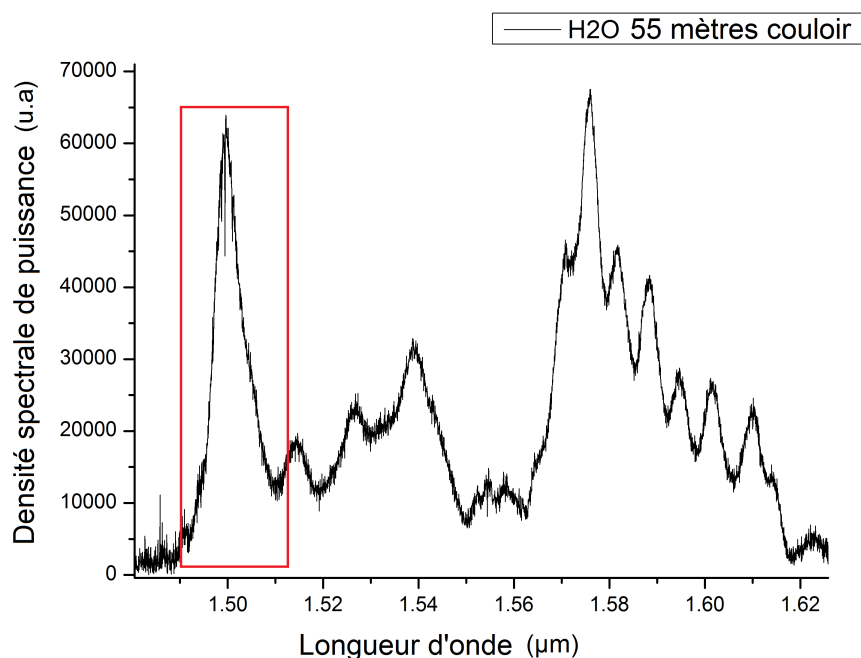


FIGURE 3.7 – Spectre d'absorption d'un interférogramme de 80 μs . La raie d'absorption la plus forte possède une RSB_v égale à 18. En rouge la zone d'intérêt présente un fort pique dû à l'enveloppe spectrale du laser, au sein de ce pique se trouve des raies d'absorption de la vapeur d'eau.

En suivant ce protocole on s'attend à obtenir un biais sur la concentration calculée d'environ 6% inférieur à la concentration attendue. Nous calculons la valeur moyenne et l'écart-type de ces 2000 mesures :

$$\langle N_{\text{H}_2\text{O}} \rangle = 1,98 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ et } \sigma = 0,40 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

L'écart-type des différentes acquisitions représente 20% de la valeur moyenne. Comme pour les mesures en cellule on retrouve une grande dispersion des valeurs calculées. La valeur peut être comparée à celle mesurée à l'aide de l'instrument Picarro placé dans le couloir. L'instrument Picarro modèle G2301 est un spectromètre qui permet de mesurer continuellement les concentrations de CO_2 , H_2O et CH_4 en utilisant la CRDS. L'instrument Picarro présente une erreur relative sur la concentration de vapeur d'eau inférieure à 1%, cet instrument est donc fiable. Avec notre système DCS on s'attend à un biais de mesure sous-estimant la concentration réelle dont l'ordre de grandeur est d'environ 6% à cause

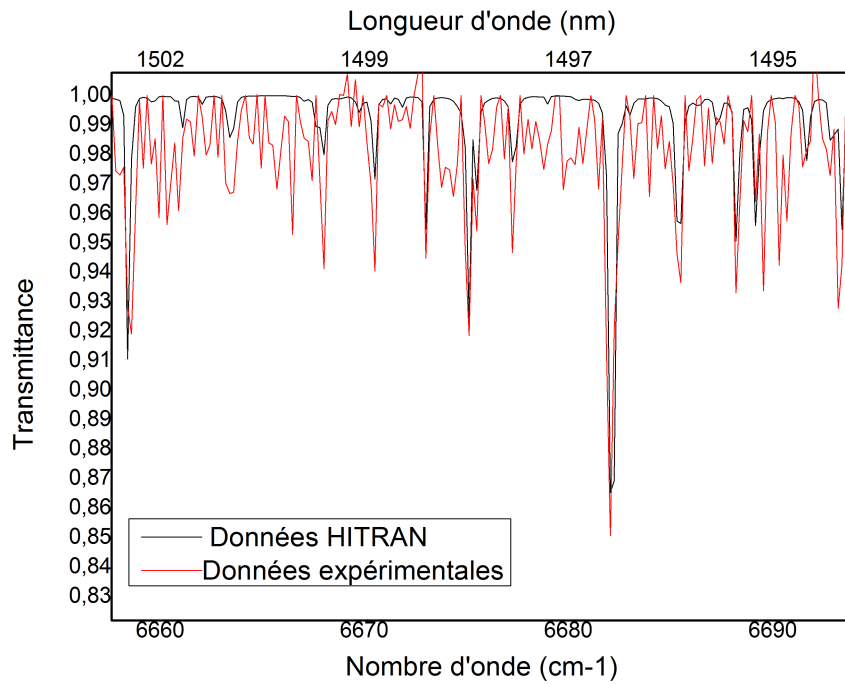


FIGURE 3.8 – Transmittance expérimentale issue d'un interférogramme de 80 μs en rouge et transmittance théorique ajustée à partir de la base de données HITRAN en noire.

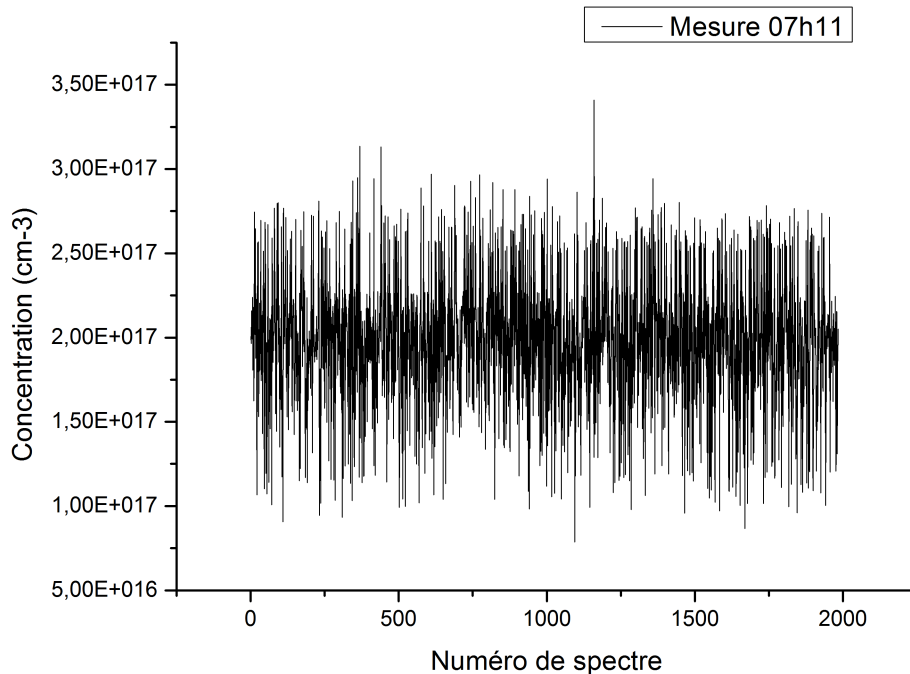


FIGURE 3.9 – Les 2000 valeurs de concentrations issues des 2000 interférogrammes enregistrés à 07H11.

de l'utilisation de l'algorithme servant à déterminer la ligne de base. L'instrument mesure un pourcentage de vapeur d'eau dans l'air de 0,91% soit une densité de vapeur d'eau d'en-

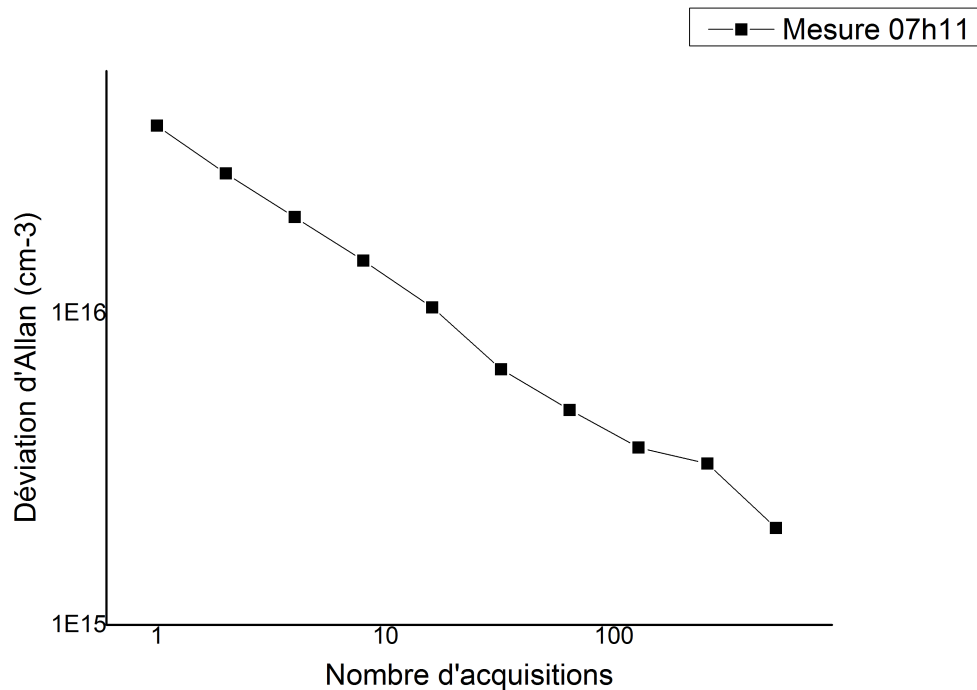


FIGURE 3.10 – Déviation d'Allan des 2000 concentrations calculées à partir des enregistrements de 07H11.

viron $2,41 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. La mesure DCS représente 82% de cette valeur alors que nous nous attendions à 94%. Ce biais supplémentaire peut provenir du bruit de mesure rendant plus difficile l'étape de l'étalonnage en nombre d'onde des transmittances mais également de l'incertitude sur la longueur d'interaction qui est d'environ 2%.

Une seconde mesure est réalisée à un autre moment de la journée. Nous enregistrons une nouvelle fois 2000 acquisitions, on obtient alors 2000 valeurs de concentrations en vapeur d'eau représentées sur la figure 3.11 et la déviation d'Allan de ces mesures sur la figure 3.12.

Nous calculons la valeur moyenne et l'écart-type de ces 2000 mesures :

$$\langle N_{\text{H}_2\text{O}} \rangle = 1,67 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ et } \sigma = 0,34 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

L'écart-type des différentes acquisitions représente encore environ 20% de la valeur moyenne. La mesure réalisée par Picarro nous donne un pourcentage en vapeur d'eau de 0,87% soit une densité d'environ $2,01 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Ici la mesure DCS représente 83% de la valeur obtenue par l'instrument Picarro. Le biais de mesure semble constant, cette deuxième mesure confirme le bruit de sous estimation constaté lors de la première mesure. La différence entre le biais attendu sur la concentration et le biais obtenu est affiché dans le tableau 3.1.

Différentes causes peuvent être à l'origine de l'écart entre le biais attendu et le biais constaté :

- Le bruit de mesure n'est pas pris en compte lors des simulations numériques. Ce bruit de mesure détériore la précision de l'étalonnage au moment où l'on pointe les raies.
- L'incertitude sur la longueur d'interaction entre le faisceau et l'atmosphère.

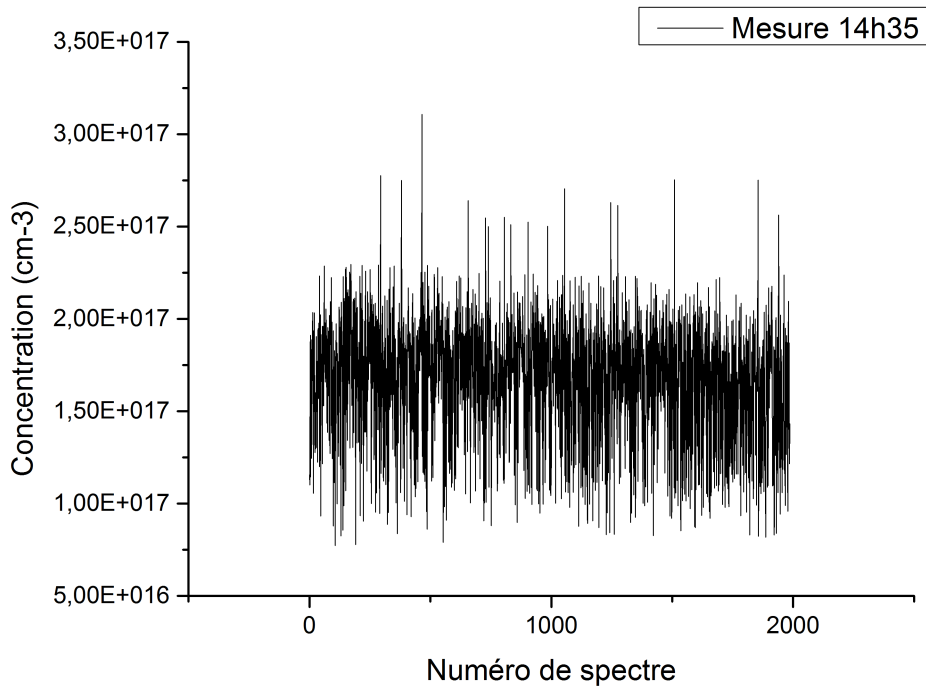


FIGURE 3.11 – Les 2000 valeurs de concentrations issues des 2000 interférogrammes enregistrés à 14H35.

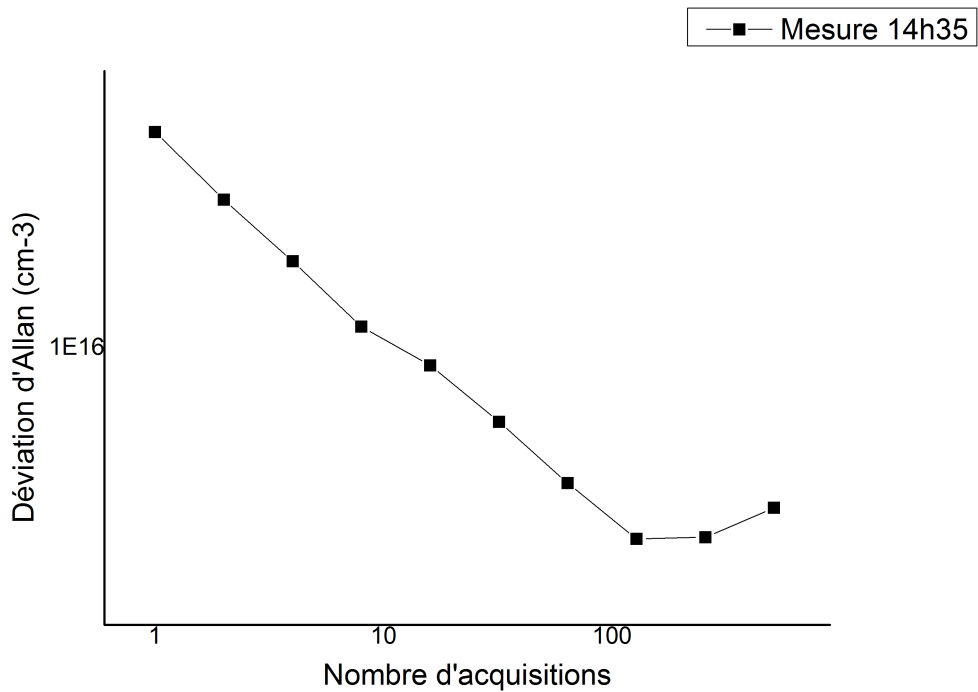


FIGURE 3.12 – Déviation d'Allan des 2000 concentrations calculées à partir des enregistrements de 14H35.

— Une profondeur de raie moins favorable que dans le cas de la cellule d'acétylène. La raie de vapeur d'eau qui absorbe le plus atténue le faisceau d'environ 15%.

	Valeur Picarro	Valeur DCS
Concentration mesure 1 (cm^{-3})	$2,41 \times 10^{17}$	$1,98 \times 10^{17}$
Écart mesure 1	18 %	
Concentration mesure 2 (cm^{-3})	$2,01 \times 10^{17}$	$1,67 \times 10^{17}$
Écart mesure 2	17 %	

TABLEAU 3.1 – Comparaison entre la mesure réalisée avec notre protocole à l'aide de l'instrument DCS et la mesure réalisée avec l'instrument Picarro.

3.3 Détection atmosphérique multi-espèces en contenu intégré à moyenne portée (140m)

Après des premières mesures de concentration de vapeur d'eau atmosphérique cohérentes avec les valeurs attendues, nous souhaitons réaliser une détection multi-espèces dans l'atmosphère. D'après la figure 3.4, après la vapeur d'eau l'espèce atmosphérique procurant des raies d'absorption importantes de par sa concentration atmosphérique et ses forces de raies est le dioxyde de carbone. L'objectif de cette section est de détecter à la fois la vapeur d'eau atmosphérique autour de $1,50 \mu m$ mais aussi les raies d'absorption du dioxyde de carbone atmosphérique autour de $1,56 \mu m$.

3.3.1 Montage expérimental

La distance de 54 mètres aller-retour utilisée pour sonder la vapeur d'eau ne permettait pas d'observer les faibles raies d'absorption du dioxyde de carbone. Pour une couche de 54 mètres d'atmosphère contenant 400 ppm de CO_2 l'absorption des raies les plus fortes est au mieux de 0,4% d'après HITRAN. Nous avons donc augmenté la distance d'interaction entre notre faisceau laser et l'atmosphère en réalisant un aller-retour de la lumière sur une distance totale de 280 mètres, permettant ainsi d'obtenir des raies absorbant jusqu'à 2% de la puissance optique autour de $6350 cm^{-1}$. La figure 3.13 représente le schéma du montage utilisant un télescope de 20 cm de diamètre et un rétro réflecteur de 10 cm de diamètre. Les faisceaux lumineux des deux lasers sont couplés dans le laboratoire et sont envoyés jusque sur le toit du bâtiment à l'aide d'une fibre optique de 200 mètres. Cette fibre est à maintien de polarisation et monomode à $1550 nm$. La propagation des impulsions femtosecondes dans une même fibre optique est décrit dans l'annexe A.1. Cette propagation n'apporte pas de problèmes pour les mesures DCS.

Les figures 3.14 et 3.15 montrent au premier plan le télescope utilisé pour récolter le faisceau lumineux et à l'arrière plan le bâtiment sur lequel est fixé le rétro réflecteur servant à renvoyer le signal.

L'alignement du faisceau avec le télescope et le rétro réflecteur est réalisé en utilisant un laser visible (Figure 3.13). Pour que l'alignement réalisé dans le visible soit valable pour notre faisceau à $1,55 \mu m$ le système d'émission réception doit être composé uniquement de miroirs et non de lentilles, c'est pourquoi nous utilisons un miroir parabolique hors d'axe pour collimater le faisceau sur les 280 mètres. Le faisceau sonde les 280 mètres d'atmosphère, un rétro réflecteur de 10 cm de diamètre permet de renvoyer le faisceau jusqu'au télescope de 20 cm de diamètre (Figure 3.14). Pour s'assurer du bon recouvrement entre le champs de vue du télescope et le diamètre de notre faisceau laser après propagation nous calculons la divergence du faisceau qui est de $0,038^\circ$. On peut ainsi calculer son diamètre au niveau du rétro réflecteur qui est de $\varnothing_{140} = 18,56 cm$ et au niveau du té-

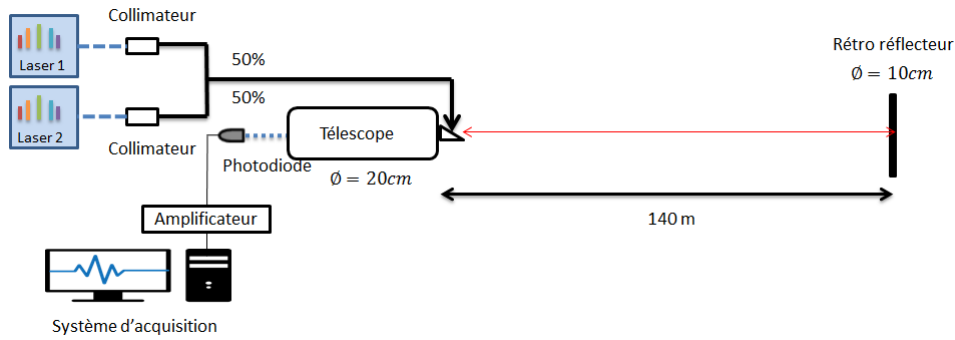


FIGURE 3.13 – Schéma du montage permettant la détection de la vapeur d'eau et du dioxyde de carbone atmosphérique.



FIGURE 3.14 – Télescope au premier plan à l'arrière plan le bâtiment sur lequel est fixé le rétro-réflecteur.



FIGURE 3.15 – Alignement du télescope et du rétro-réflecteur à l'aide d'un laser visible.

lescope $\varnothing_{280} = 37,12$ cm. Ce mauvais recouvrement entre le diamètre du télescope et le diamètre du faisceau laser entraîne une baisse de la puissance collectée d'un facteur 2. Cela entraîne une baisse de puissance sur le détecteur et donc une baisse du RSB_v dans le domaine spectral qui va dégrader nos mesures. Un télescope de 40 cm de diamètre ou un collimateur de faisceau avec une plus longue focale aurait été nécessaire pour éviter ce problème de recouvrement. Cependant cela n'a pas pu être approvisionné ce qui ne nous empêche pas d'explorer les difficultés nouvelles apportées par ces mesures de détection simultanée multi-espèces de gaz à effet de serre en espace libre. Lors de cette expérience nous n'avons pas de voie de référence pour réaliser une mesure de ligne de base. Comme dans l'expérience précédente nous avons utilisé la méthode numérique de filtrage sur les spectres d'absorption.

3.3.2 Mesure de concentration de la vapeur d'eau atmosphérique en contenu intégré moyenne portée (140m)

Comme lors des mesures précédentes nous suivons le protocole décrit dans la section 2.3.2 pour $N = 500$ interférogrammes de $80 \mu s$ avec une différence de fréquence de répétition entre les deux peignes de 220 Hz conduisant à une résolution spectrale de 6 GHz. Après transformations de Fourier des 500 interférogrammes on obtient 500 spectres d'absorption. Le spectre d'absorption d'un interférogramme est représenté sur la figure 3.16.

La raie qui présente le meilleur RSB_v a ici une valeur de 7 ce qui est moins important que la valeur obtenue dans la mesure à courte portée sur 54 m. Cette diminution du RSB est en accord avec la diminution du recouvrement entre le diamètre du télescope et le diamètre du faisceau retour au niveau du télescope.

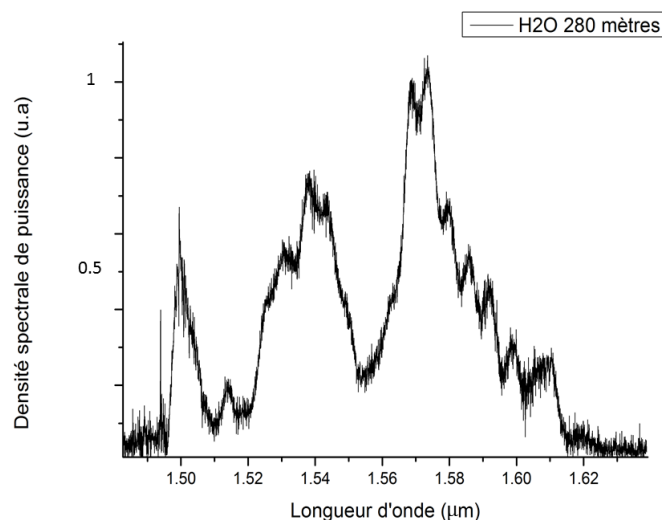


FIGURE 3.16 – Spectre d’absorption issu d’un interférogramme de 80 μs de résolution spectrale 6 GHz. Le meilleur RSB_v est de 7 pour une raie présente autour de 1,50 μm .

On suit le protocole de mesure de la section 2.3.2 :

- Chacun de ces 500 spectres d’absorption est affranchi de sa ligne de base. L’absence de voie de référence pour obtenir la ligne de base des spectres d’absorption a été comblée par l’utilisation d’une méthode numérique. La méthode utilisée est celle qui consiste à filtrer l’enveloppe du spectre d’absorption. En réalisant cela sur chacun des 500 spectres d’absorption on obtient 500 transmittances pas encore étalonnées.
- Chacune des transmittances est ensuite étalonnée en utilisant la méthode écrite dans la section 2.3.1.
- Ensuite chacune des 500 transmittances étalonnées est inversée via un ajustement de courbe à partir de la base de données HITRAN en convoluant la transmittance issue de HITRAN par la fonction d’appareil théorique du spectromètre. Lors de l’ajustement de courbe la pression et température sont fixées à valeur atmosphérique, la longueur d’interaction entre l’échantillon sondé et les faisceaux est fixée à 280 mètres, le seul paramètre ajustable est la concentration en vapeur d’eau. On obtient alors 500 valeurs de concentration du milieu sondé représentées sur la figure 3.17.

La valeur moyenne et l’écart type valent :

$$\langle N_{\text{H}_2\text{O}} \rangle = 1,21 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ et } \sigma = 0,28 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

L’écart-type correspond à 23 % de la valeur moyenne.

La valeur moyenne de la densité de la vapeur d’eau peut être convertie en humidité rela-

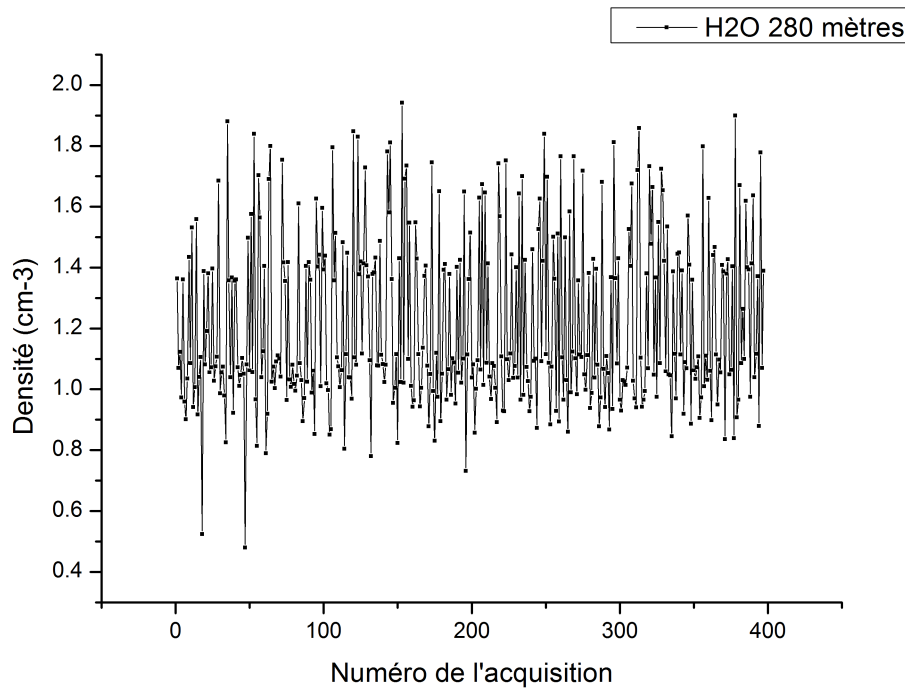


FIGURE 3.17 – Densité d'H₂O obtenues pour chacun de 500 interférogrammes.

tive avec l'équation suivante :

$$\varphi = \frac{P_{vap}}{P_{sat}(T)} \times 100 \quad (3.3)$$

et

$$n_{H_2O} = \frac{P_{vap}}{k_B T} \times 10^6 \quad (3.4)$$

Avec φ ou HR l'humidité relative donnée en pourcentage, $P_{sat}(T)$ la pression de vapeur saturante de l'eau à la température T, P_{vap} la pression partielle de l'eau, n_{H_2O} la densité d'H₂O et k_B la constante de Boltzmann. Soit :

$$\varphi = \frac{n_{H_2O} k_B T}{P_{sat}(T)} \times 10^{-4} \quad (3.5)$$

L'humidité relative associée à cette densité de vapeur d'eau peut être calculée à partir de la température extérieure moyenne fournie par la météo locale. Ce jour la, la température était de 10°C, la pression de vapeur saturante associée est de 1228 Pa conduisant à une humidité relative $\varphi = 38\%$

La figure 3.18 montre l'évolution de l'humidité relative en fonction de l'altitude du capteur le jour de la mesure. Cette mesure est réalisée par le SIRTA qui se trouve à Palaiseau à quelques kilomètres du lieu de notre mesure.

L'humidité relative relevée par le SIRTA fluctue au cours de la journée entre environ 77% et 95%. Ces mesures montrent la variation d'humidité relative qu'il peut y avoir au cours d'une journée en un point donné mais également en fonction de la position. L'humidité relative peut varier fortement à l'échelle locale, ainsi les mesures du SIRTA ne constituent pas une référence absolue pour évaluer la précision de notre mesure. Cependant il semble clair que notre instrument sous estime la concentration réelle en vapeur d'eau. Cette

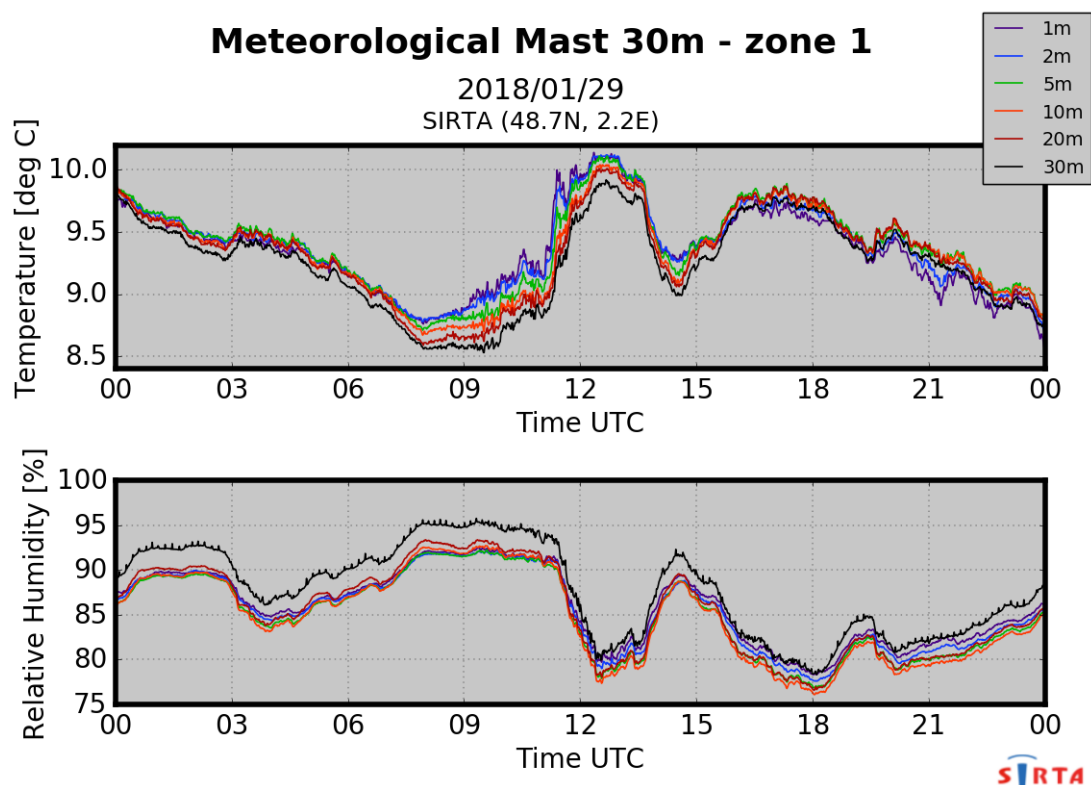


FIGURE 3.18 – Mesure réalisée par le SIRTA de l'évolution de l'humidité relative le jour de notre mesure.

comparaison montre un désaccord entre la valeur obtenue par DCS et celle fournie par le SIRTA. D'après le tableau 3.2 :

	Valeur du SIRTA	Valeur DCS
Humidité relative	[77-95] %	38 %
Écart	56 %	

TABEAU 3.2 – Comparaison entre notre mesure de concentration de vapeur d'eau sur 280 m aller-retour et la mesure de concentration fournie par le SIRTA.

Lors des mesures courte portée les valeurs calculées par DCS présentaient un biais d'environ 18% par rapport aux mesures réalisées par l'instrument Picarro. Le désaccord constaté ici pour la mesure moyenne portée peut s'expliquer par la perte de puissance collectée sur le télescope qui engendre un RSB_v plus faible que lors des mesures courte portée. Cette baisse du RSB_v rend plus difficile l'étape de l'étalonnage puisque un RSB_v suffisamment élevé est nécessaire pour pointer les raies comme décrit dans la section 2.3.1. De plus il y a un écart géographique entre le site du SIRTA et le lieu de réalisation de nos mesures ce qui génère certainement une différence d'humidité relative locale. Afin de déployer notre système d'émission- réception sur le toit du laboratoire une fibre optique à maintien de polarisation monomode à 1555 nm est tirée depuis le niveau -1 du bâtiment jusqu'au toit du bâtiment de 5 étages. Le système d'émission - réception est placé dans une structure préfabriquée placée sur le toit du bâtiment. Le manque de stabilité de la structure entraîne des vibrations du système d'émission - réception ce qui conduit à d'importantes fluctuations de la lumière récoltée sur le détecteur.

3.3.3 Détection du dioxyde de carbone

Pour mettre en évidence les raies d'absorption du CO₂ absorbant au mieux jusqu'à 2% pour une propagation de 280 m nous ne suivons pas le protocole décrit dans la section 2.3.2 puisque le RSB_v des raies serait trop faible pour que l'on puisse exploiter les spectres d'absorption. On applique une transformation de Fourier aux 500 interférogrammes enregistrés pour obtenir 500 spectres d'absorption. Les 500 spectres d'absorption sont moyennés. Juste avant d'appliquer ce moyennage les fluctuations du paramètre Δf_0 d'un spectre à l'autre sont corrigées à la résolution spectrale près comme décrit dans la section 2.2.5 le paragraphe nommé "Correction post acquisition et moyennage des spectres d'absorption". Le spectre d'absorption moyenné sur les 500 spectres acquis est représenté sur la figure 3.19. Nous savons que le moyennage avec le manque de cohérence mutuelle entre les deux peignes induit des distorsions du spectre moyenné. Nous avons également quantifié le biais induit par ce moyennage, on rappelle qu'il engendre une sous estimation de la concentration calculée d'environ 25% de la concentration attendue.

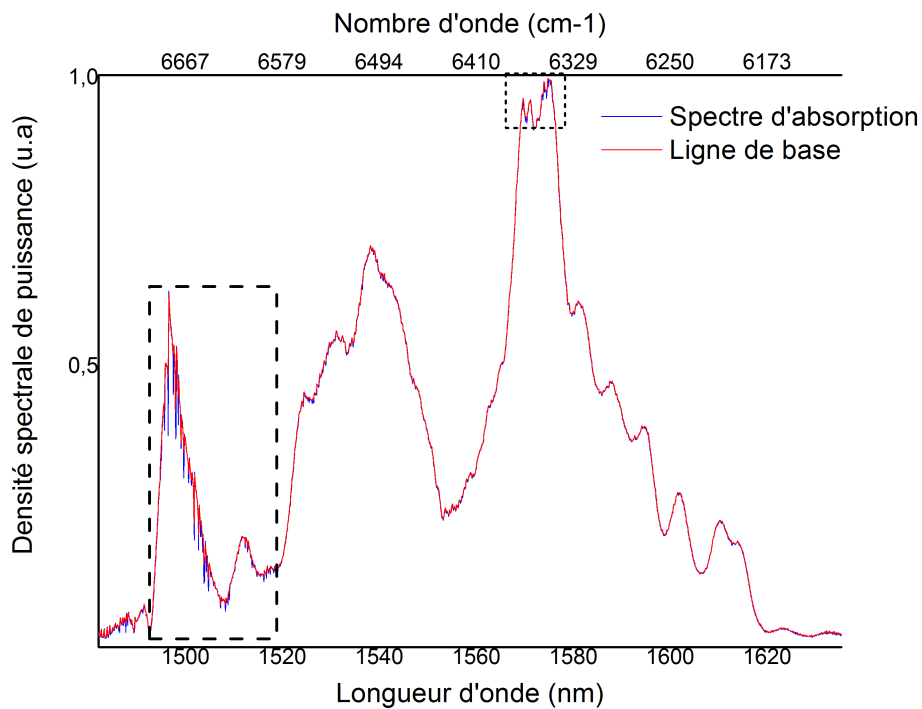


FIGURE 3.19 – En bleu le spectre d'absorption moyenné sur 500 interférogrammes. Autour de 1,50 μm les raies d'absorption de la vapeur d'eau et autour de 1,57 μm les raies d'absorption du dioxyde de carbone sont visibles. En rouge la ligne de base du spectre d'absorption obtenue en remplaçant les points appartenant aux raies d'absorption par une interpolation linéaire. Sans moyennage des spectres d'absorption il n'est pas possible d'observer les raies de dioxyde de carbone à cause du RSB_v trop faible.

Pour affranchir ce spectre moyenné de la ligne de base et obtenir la transmittance moyenne on utilise une méthode numérique. Ici nous avons obtenue la ligne de base du spectre d'absorption en remplaçant les points appartenant aux raies d'absorption par une interpolation linéaire. La ligne de base ainsi obtenue est représentée en rouge sur la figure 3.17. La méthode de filtrage est moins adaptée pour obtenir la transmittance du CO₂ que pour obtenir celle de la vapeur d'eau. Le recouvrement est trop important entre la TF de la transmittance du CO₂ et la TF de ligne de base comme expliqué dans le paragraphe

méthodes numériques de la section 2.3.1. La figure 3.20 représente le spectre d'absorption moyenné centré sur les raies de CO₂ autour de 1,572 μm (6350 cm⁻¹). La figure 3.19 représente la transmittance expérimentale issue de la division du spectre d'absorption moyenné par sa ligne de base qui a ensuite été étalonnée comme décrit dans la section 2.3.1 le paragraphe nommé "Étalonnage du spectre en en nombre d'onde". La transmittance expérimentale est ajustée avec une transmittance théorique issue de la base de données HITRAN. Malgré les distorsions spectrales l'ajustement entre les deux courbes nous permet de confirmer que ces raies appartiennent bien au CO₂. La concentration attendue en CO₂ dans l'atmosphère est d'environ 400 ppm. La concentration calculée à partir de cette transmittance moyennée est de 300 ppm, les distorsions induites par le moyennage conduisent à une sous estimation de la concentration réelle d'environ 25% comme attendue. En effet le moyennage a pour effet à la fois d'élargir et de diminuer la profondeur des raies d'absorption de façon importante.

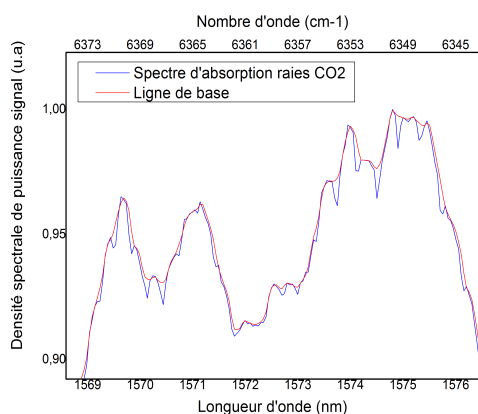


FIGURE 3.20 – En bleu le spectre d'absorption expérimental centré sur les raies du CO₂ et en rouge la ligne de base du spectre.

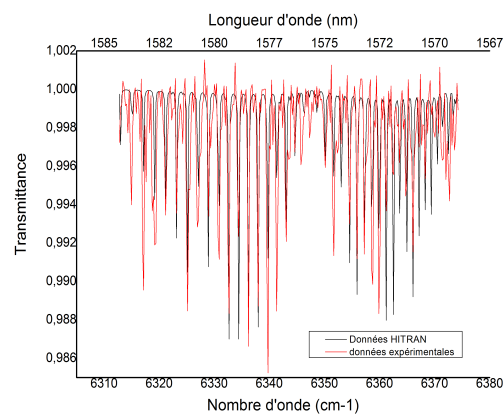


FIGURE 3.21 – En rouge la transmittance expérimentale centrée sur les raies de CO₂. En noire la transmittance théorique des raies de CO₂ issue de la base de données HITRAN.

	Valeur usuelle	Valeur DCS
Concentration (ppm)	400	300
Écart	25 %	

TABEAU 3.3 – Comparaison la concentration de dioxyde de carbone mesurée sur 280 m aller-retour avec notre système DCS et la valeur usuelle dans l'atmosphère. L'écart entre les deux mesures est de 25 % comme obtenu par simulation numérique.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons réalisé des premiers tests de détection de gaz en espace libre, à courte portée (27 m) et moyenne portée (140 m). Nous avons obtenu des mesures de concentration intégrées en utilisant un rétroreflecteur ou un miroir pour réfléchir le signal. Les résultats obtenus confirment la principale limite de notre système qui est le

manque de sensibilité. Notre mesure de densité de vapeur d'eau à courte portée s'accorde bien avec la valeur donnée par l'instrument Picarro. En revanche pour la mesure à moyenne portée la valeur mesurée ($1,21 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) se trouve très éloignée de la valeur attendue ($2,86 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$). Le fait que les valeurs mesurées et valeurs attendues s'accordent à courte portée mais ne s'accordent plus à longue portée peut s'expliquer par la dégradation du RSB_v lors de la mesure à moyenne portée qui passe de 18 à 7. Cette dégradation rend plus difficile le traitement du spectre d'absorption notamment au niveau de l'étalonnage et de la détermination de la ligne de base ce qui se traduit par une erreur systématique ne nous permettant pas de calculer une concentration proche de celle attendue.

Pour améliorer ce résultat, c'est à dire réussir à obtenir une mesure quantitative de la concentration atmosphérique en accord avec la valeur attendue il est nécessaire d'optimiser le système d'émission réception. Cela permettrait d'obtenir un RSB_v similaire à celui obtenu lors des mesures sur 54 mètres. L'utilisation d'une voie de référence comme lors des mesures en cellule d'acétylène permettrait de minimiser le biais ayant pour origine la détermination de la ligne de base du spectre d'absorption. La stabilisation complète des peignes de fréquence à la fois en fréquence de répétition et en fréquence d'offset permettrait d'utiliser l'une des caractéristiques de la DCS à savoir l'étalonnage direct à partir des dents résolues des peignes, ce qui diminuerait l'erreur systématique associée à l'étalonnage en nombre d'onde du spectre.

3.5 Références

«Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique», <https://sirta.ipsl.fr/index.html>. 90

Coburn, S., C. B. Alden, R. Wright, K. Cossel, E. Baumann, G.-W. Truong, F. Giorgetta, C. Sweeney, N. R. Newbury, K. Prasad, I. Coddington et G. B. Rieker. 2018, «Regional trace-gas source attribution using a field-deployed dual frequency comb spectrometer», *Optica*, vol. 5, n° 4, doi :10.1364/OPTICA.5.000320, p. 320–327. URL <http://www.osapublishing.org/optica/abstract.cfm?URI=optica-5-4-320>. 91, 92

Cossel, K. C., E. M. Waxman, F. R. Giorgetta, M. Cermak, I. R. Coddington, D. Hesselius, S. Ruben, W. C. Swann, G.-W. Truong, G. B. Rieker et N. R. Newbury. 2017, «Open-path dual-comb spectroscopy to an airborne retroreflector», *Optica*, vol. 4, n° 7, doi :10.1364/OPTICA.4.000724, p. 724–728. URL <http://www.osapublishing.org/optica/abstract.cfm?URI=optica-4-7-724>. 91

Giorgetta, F. R., G. B. Rieker, E. Baumann, W. C. Swann, L. C. Sinclair, J. Kofler, I. Coddington et N. R. Newbury. 2015, «Broadband phase spectroscopy over turbulent air paths», *Physical review letters*, vol. 115, n° 10, p. 103 901. 90

Rieker, G. B., F. R. Giorgetta, W. C. Swann, J. Kofler, A. M. Zolot, L. C. Sinclair, E. Baumann, C. Cromer, G. Petron, C. Sweeney et collab.. 2014, «Frequency comb-based remote sensing of greenhouse gases over kilometer air paths», *Optica*, vol. 1, n° 5, p. 290–298. 90

Zhu, F., A. Bicer, R. Askar, J. Bounds, A. Kolomenskii, V. Kelessides, M. Amani et H. Schuessler. 2015, «Mid-infrared dual frequency comb spectroscopy based on fiber lasers for the detection of methane in ambient air», *Laser Physics Letters*, vol. 12, n° 9, p. 095 701. 90

Chapitre 4

Mesures Lidar par spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences

Sommaire

4.1 Mesures LiDAR IPDA	108
4.1.1 Equation du signal	108
4.1.2 Utilisation d'une cible diffusante	110
4.1.3 Extrapolation mesures longues portées	117
4.2 Mesures résolues spatialement	121
4.2.1 Laser haute cadence et distance d'ambiguïté	122
4.2.2 Utilisation d'un pulse picker	123
4.2.3 Utilisation d'une configuration d'imagerie Scheimpflug	128
4.3 Conclusion	133
4.4 Références	133

L'objectif de ce chapitre est d'étudier la faisabilité des mesures de gaz Lidar par spectroscopie à deux lasers peigne de fréquences. Dans le chapitre précédent nous avons réalisé des mesures intégrées en utilisant un miroir ou un rétro réflecteur pour renvoyer le faisceau lumineux vers le télescope. En pratique les mesures Lidar n'utilisent pas ces outils pour renvoyer le signal, le support retour de la lumière est une cible diffusante ou les aérosols contenus dans l'atmosphère.

Dans une première partie on réalise des mesures intégrées sur la ligne de visée des lasers avec réflexion sur une cible diffusante. Ces mesures sont extrapolées pour déterminer la possibilité de réaliser des mesures longues portées.

Dans la seconde partie on s'intéresse à la rétrodiffusion du signal sur les aérosols pour bénéficier d'une résolution spatiale. La haute cadence des lasers peigne de fréquences ne permet pas d'utiliser la méthode de localisation des impulsions par leur temps de vol. Nous ne réalisons pas ici de modèle complet de rapport signal à bruit mais nous proposons des concepts envisagés pour contourner cette difficulté : l'utilisation d'un pulse picker pour réduire la cadence d'émission des lasers ou l'utilisation d'une configuration Scheimpflug.

4.1 Mesures LiDAR IPDA

Le chapitre précédent présente des mesures réalisées à l'aide d'un miroir et d'un rétro réflecteur pour renvoyer le signal vers le télescope. Les mesures Lidar n'utilisent pas de miroir ni de rétro réflecteur, le support retour du signal est soit une cible dure soit les aérosols présents dans l'atmosphère. La figure 4.1 schématise la différence entre une mesure utilisant une cible dure et une mesure utilisant des aérosols. L'utilisation d'une cible dure permet de renvoyer une partie de la lumière incidente vers le télescope. L'ensemble de la lumière récoltée a réalisé le même trajet et porte donc la même information. Les informations spectrales sur l'absorption sont intégrées sur la ligne de visée du laser, on appelle ce type de mesure IPDA pour Integrated Path Differential Absorption. L'utilisation des aérosols pour renvoyer la lumière vers le télescope permet de renvoyer une fraction de la lumière vers le télescope. La lumière récoltée provient des différentes couches d'aérosols ce qui permet d'obtenir une résolution spatiale. Ce type de mesure est appelée DiAL pour Differential Absorption Lidar.

4.1.1 Equation du signal

La puissance reçue à la longueur d'onde λ lors d'une mesure IPDA sur cible diffusante placée à la distance R peut s'écrire [Ehret et collab., 2008] :

$$P_{\lambda}(R) = T_{\lambda} \frac{A_{pup}}{R^2} O_{\lambda}(R) \rho_{\lambda,i}^* T_{\lambda}^2(R) \frac{E_{\lambda}}{\Delta t_{eff}} \quad (4.1)$$

Avec les paramètres instrumentaux suivants :

- T_{λ} est la transmission du système de réception,
- A_{pup} est la surface effective de la pupille d'entrée du télescope,
- O_{λ} est la fonction de recouvrement entre le faisceau émis et le champ du télescope,

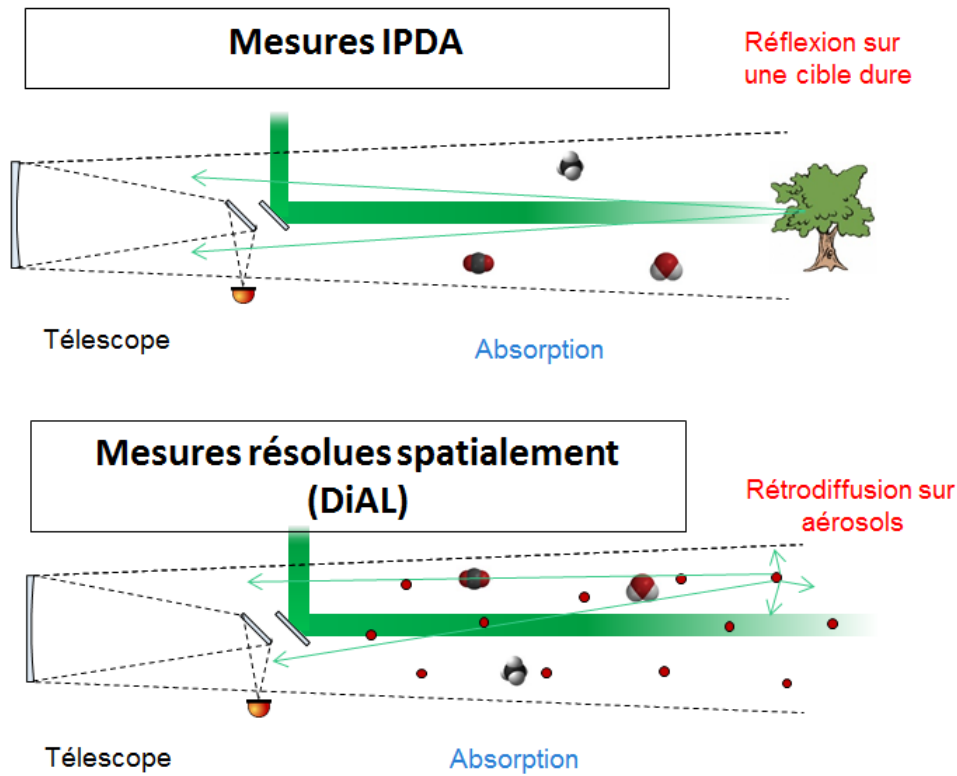


FIGURE 4.1 – En haut une mesure IPDA, la lumière atteint une cible dure qui diffuse la lumière vers le télescope, il n’y a pas de résolution spatiale, la mesure est intégrée sur la ligne de visée du laser. En bas une mesure DiAL, les aérosols rétrodiffusent la lumière jusqu’au télescope, permettant une résolution spatiale.

- $\rho_{\lambda,i}^*$ est la réflectance directionnelle. Elle caractérise la proportion du flux incident diffusé dans la direction du LIDAR par unité d’angle solide. Elle est égale à la valeur de sa fonction de distribution de réflectance bidirectionnelle (BRDF) pour l’angle i formé par l’axe du LiDAR et le plan de la surface ciblée. Dans le cas d’une surface Lambertienne, elle s’exprime en fonction de l’albédo (ou réflectance) ρ_{λ} : $\rho_{\lambda}^* = \rho_{\lambda} / \pi$ [Kavaya et collab., 1983]. L’albédo caractérise le pouvoir réfléchissant d’une surface. Il est nul pour une surface noire et égal à 1 pour une surface blanche. Il est en général compris entre 0,01 et 0,90 pour les surfaces naturelles [Wang et collab., 2013].
- T_{λ} est la transmission du milieu sondé donnée par l’équation de Beer-Lambert :

$$T_{\lambda} = \exp\left(-\int_0^R \alpha(\lambda, r) dr\right) \quad (4.2)$$

- Δt_{eff} est la longueur effective de l’impulsion. Elle prend en compte, la largeur temporelle initiale de l’impulsion Δt_L , l’élargissement dû au différentiel de profondeur de la cible que l’on note Δh et la bande passante du détecteur Δf . L’impulsion détectée étant le résultat de la convolution de l’impulsion émise avec les fonctions de transfert de ces deux phénomènes, la longueur effective de l’impulsion s’écrit :

$$\Delta t_{eff} = \sqrt{\Delta t_L^2 + \left(\frac{1}{3\Delta f}\right)^2 + \left(\frac{2\Delta h}{c}\right)^2} \quad (4.3)$$

Dans le cas d'impulsions femtoseconde la largeur temporelle initiale de l'impulsion est négligeable devant l'inverse de la bande passante de détection. Ce qui conduit à :

$$\Delta t_{eff} = \sqrt{\left(\frac{1}{3\Delta f}\right)^2 + \left(\frac{2\Delta h}{c}\right)^2} \quad (4.4)$$

On note que la puissance récoltée par le télescope décroît en $\frac{1}{R^2}$ à cause de la réflexion diffuse sur la cible dure. La puissance récoltée lors d'une mesure utilisant une cible diffuse est donc plus faible que la mesure en utilisant un miroir ou un rétro réflecteur.

4.1.2 Utilisation d'une cible diffusante

Dans ce chapitre nous utilisons une cible dure pour renvoyer le signal jusqu'au télescope en lieu et place du miroir et ainsi réaliser des mesures Lidar IPDA. Nous réalisons une mesure Lidar IPDA courte portée en DCS. Par la suite nous utiliserons l'équation (4.1) pour extrapoler des mesures longues portée.

La puissance émise par nos lasers est limitée à 260 mW une fois couplés, ce qui fixe une limite à la portée atteignable en fonction du télescope, du détecteur et de la cible diffuse utilisée. Nous souhaitons utiliser une cible à fort pouvoir de diffusion afin de récolter le plus de lumière possible sur notre détecteur. Pour une puissance émise donnée nous pouvons augmenter le signal reçu par diffusion sur cible dure en optimisant trois paramètres :

- en augmentant la surface de collection du télescope,
- en choisissant une cible à fort pouvoir de diffusion,
- en utilisant une courte portée de mesure en plaçant la cible proche du télescope.

Nous utilisons un miroir primaire de télescope disponible au laboratoire dont le diamètre est de 10 cm et la focale de 125 mm, le schéma du montage est représentée sur la figure 4.2.

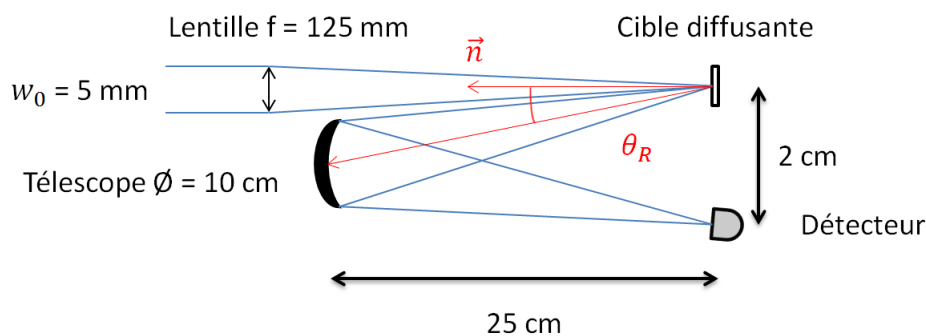


FIGURE 4.2 – Schéma du montage permettant de vérifier les valeurs de BRDS de la cible infragold.

Nous disposons au laboratoire d'une cible infragold dont les propriétés de diffusion sont Lambertiennes. Cette cible est commercialisée par Labsphere. La fiche technique fournie par le constructeur ne renseigne pas les valeurs de la BRDF. Cependant un article de conférence rapporte des mesures de BRDF réalisées sur cette cible [Balling et Marciniak, 2009]. La BRDF correspond au ratio différentiel entre la luminance réfléchie L_r et la luminance incidente L_i . La BRDF est notée $f(\Omega_i, \Omega_r, \lambda)$:

$$f(\Omega_i, \Omega_r, \lambda) = \frac{dL_r(\Omega_i, \Omega_r, \lambda)}{dL_i(\Omega_i, \lambda)} \quad (4.5)$$

Avec $\Omega_{i,r}$ les directions définies par les angles $\theta_{i,r}$ et $\varphi_{i,r}$ les angles zénithal et azimut. Typiquement la BRDF est mesurée en utilisant un appareil qui permet d'éclairer avec un faisceau collimaté ou convergent l'échantillon à caractériser selon une certaine direction définie par θ_i et φ_i . Un système de collection sous-tendu par l'angle solide Ω voit la surface éclairée et peut être positionné suivant une certaine direction définie par θ_r et φ_r .

$$\text{BRDF} = \frac{P_r / \Omega A \cos(\theta_r)}{P_i / A} = \frac{P_r}{P_i \Omega \cos(\theta_r)} \quad (4.6)$$

Avec A la surface éclairée, P_i la puissance incidente et P_r la puissance collectée. Les mesures de BRDF de la cible infragold tirées de [Balling et Marciniak, 2009] sont présentées sur la figure 4.3.

Dans un premier temps on cherche à retrouver les valeurs de BRDF rapportées par Bal-

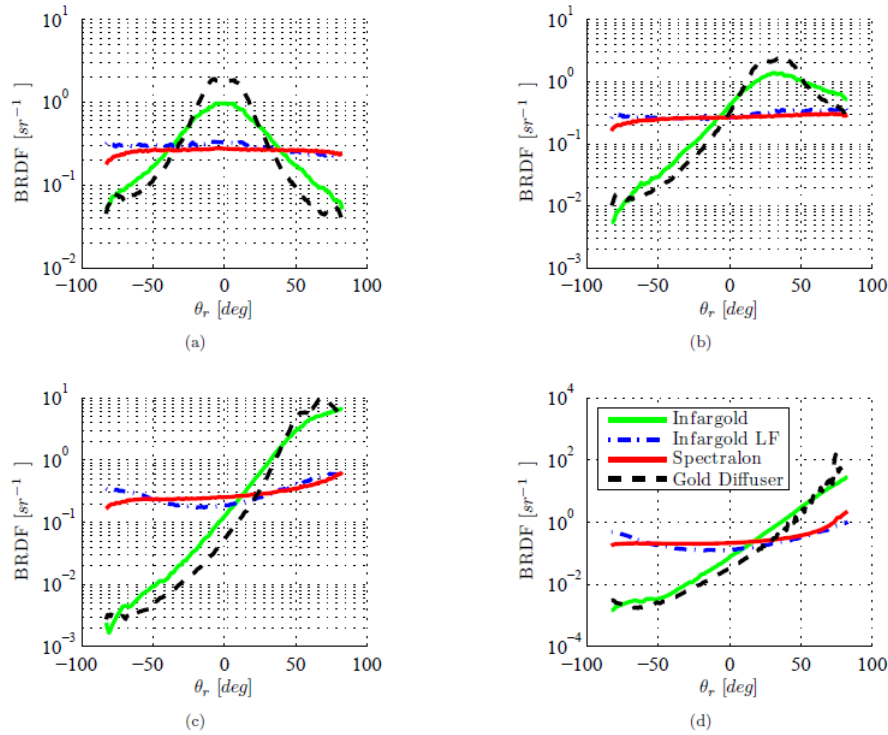


FIGURE 4.3 – Courbes de BRDF mesurée par Balling et al. pour la cible infragold vendue par Labsphere suivant différent angle θ_i a) $\theta_i = 0^\circ$, b) $\theta_i = 30^\circ$, c) $\theta_i = 60^\circ$, d) $\theta_i = 75^\circ$.

ling et al. en configuration 2f-2f c'est à dire avec une distance cible-télescope de 25 cm et une distance télescope-détecteur de 25 cm comme représenté sur la figure 4.2. Nous avons choisi cette configuration car elle permet d'avoir une courte distance entre la cible et le télescope de collection.

La puissance injectée sur la cible est d'environ 260 mW. Dans le but d'obtenir une image de l'éclairement de la cible inférieure au diamètre de notre détecteur (Menlosystem FPD 310) nous utilisons une lentille de focale 125 mm. Le diamètre du faisceau collimaté passant dans la lentille est de 5 mm. On obtient un diamètre de faisceau (waist) w'_0 dans le plan focale image :

$$w'_0 = \frac{2\lambda f}{\pi w_0} = 25\mu m \quad (4.7)$$

Soit un diamètre de 25 μm pour un faisceau à 1,55 μm de longueur d'onde, nous permettant d'avoir un bon recouvrement avec le détecteur de 80 μm de diamètre. Cependant

les mesures de BRDF de la cible que l'on obtient s'avèrent non reproductibles et très dépendantes de la position du faisceau lumineux sur la cible. Balling et al. fournissent une image obtenue par microscope de la surface de la cible infragold représentée sur la figure 4.4. On y distingue un motif en forme de demie sphère ayant un diamètre caractéristique de 50 μm . Notre diamètre de faisceau est trop petit devant le diamètre des grains composant la cible. Avec ce diamètre de faisceau la cible ne présente plus les propriétés Lambertiennes attendues. Avec le matériel à disposition nous ne pouvons pas à la fois avoir un diamètre de faisceau dans le plan focale largement supérieur à la taille caractéristique des demi-sphères de la cible et suffisamment de puissance sur la pastille de 80 μm de notre détecteur le plus sensible. Nous faisons donc le choix d'utiliser une autre cible, une feuille de papier blanche. Une feuille de papier blanche est composé de fibres de cellulose d'environ 1 à 3 mm de longueur et de diamètre de 15 à 40 μm suivant le type de bois utilisé. Ces fibres sont entrelacées entre elles et donnent une rigidité à la feuille de papier. Avant

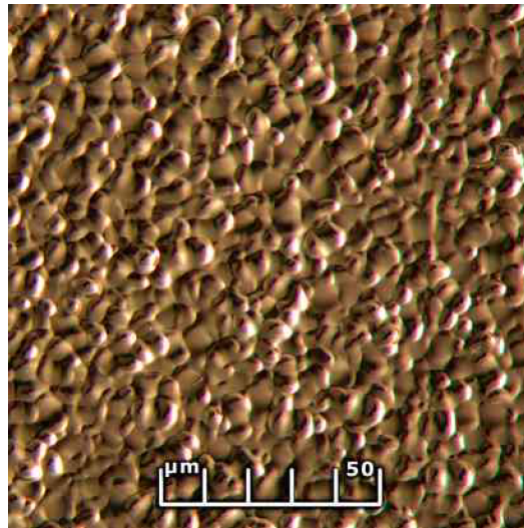


FIGURE 4.4 – Image au microscope de la surface de la cible infragold tirée de [Balling et Marciniak, 2009]. Le motif a une taille caractéristique d'environ 50 μm .

de réaliser des mesures DCS en utilisant une feuille de papier blanche comme cible nous mesurons la valeur de BRDF de la configuration expérimentale choisie. Nous avons choisi un angle d'éclairage de la cible $\theta_i = 0^\circ$ par rapport à la normale de la cible et un angle de collection $\theta_r = 30^\circ$ afin d'éviter les réflexions spéculaires. Dans ces conditions nous récoltons une puissance optique $P_{reçu} = 6 \pm 0,2 \text{ mW}$ pour une puissance incidente $P_{émis} = 263 \text{ mW}$ soit environ 2% du signal émis. La BRDF peut se calculer :

$$\text{BRDF}(\theta_i = 0^\circ, \theta_r = 30^\circ) = \frac{P_{reçu}}{P_{émise}} \times \frac{1}{\Omega \cos(\theta_r)} = 0,21 \text{ sr}^{-1} \quad (4.8)$$

Avec $\Omega = 1,256 \times 10^{-1} \text{ sr}$ l'angle solide correspondant à la surface de collection du miroir de 10 cm de diamètre placé à la distance de 25 cm de la cible. Nous réalisons ensuite une mesure DCS avec les 6 mW récoltés et une cellule d'acétylène. Le faible rapport signal sur bruit nous oblige à moyennner les interférogrammes pour observer les raies d'absorption de la cellule d'acétylène. La figure 4.5 représente le spectre moyennné avec 500 interférogrammes de 80 μs . Le moyennnage est réalisé en corrigeant les fluctuations de Δf_0 à la résolution spectrale près c'est à dire 6 GHz. En ce qui concerne Δf_{rep} , les fréquences de répétitions sont stabilisées durant l'acquisition et aucune correction n'est ensuite apportée. Sur ce spectre les raies d'absorption de l'acétylène sont clairement visibles.

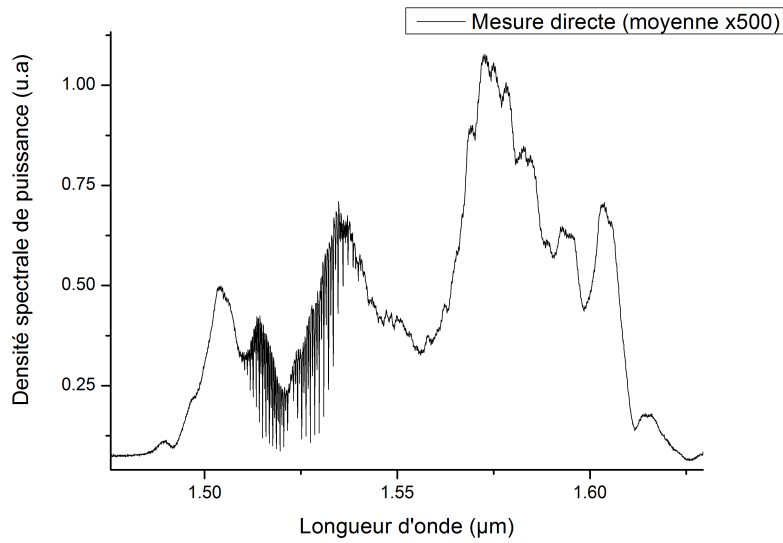


FIGURE 4.5 – Spectre d’absorption obtenu après réflexion d’un faisceau sur une cible dure. 500 interférogrammes de 80 μs sont moyennés pour obtenir ce spectre et avoir un RSB permettant de distinguer les raies d’absorption de l’acétylène.

Figure de Speckle

L’utilisation d’une cible dure présentant des irrégularités à sa surface peut engendrer une figure de speckle dans le plan du détecteur conduisant à des effets de modulation d’amplitude sur le spectre d’absorption. La figure de speckle résulte des interférences entre les champs diffusés par les multiples diffuseurs de taille microscopique répartis de manière aléatoire sur une surface ou dans un volume. La dimension d’un grain de speckle notée ϵ est donnée par la formule suivante tirée de [Goodman, 1976] :

$$\epsilon = \frac{\lambda L}{D} \quad (4.9)$$

Avec D le diamètre de la tâche laser sur le diffuseur, λ la longueur d’onde d’émission du laser et L la distance entre la surface diffusante et le plan d’observation comme représentée sur la figure 4.6. Il faut tenir compte de notre système d’imagerie pour calculer le nombre

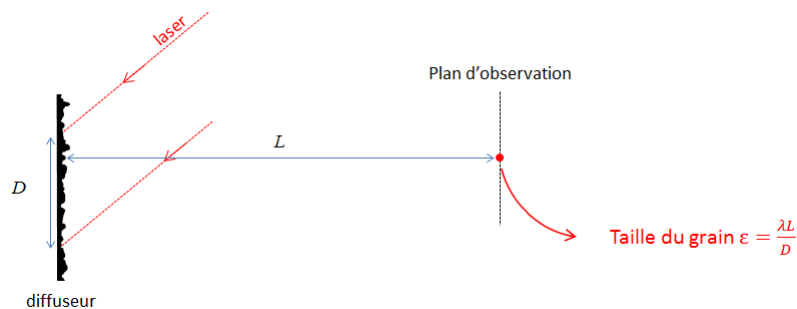


FIGURE 4.6 – Schéma représentant les paramètres responsables de la taille des grains de speckle.

de grains de speckle apparaissant sur notre détecteur. Dans ce cas il faut tenir compte de la diffraction par le diamètre de la lentille ϕ de collection et de la distance lentille plan-

image L' . La taille du grain ϵ' dans le plan image est alors (cf figure 4.7) :

$$\epsilon' = 1,22 \frac{\lambda L'}{\phi} \quad (4.10)$$

Dans notre cas la taille des grains de speckle dans le plan du détecteur est de $4,7 \mu\text{m}$. Le nombre de grains vu par le détecteur M_{det} peut être estimé en divisant la surface du détecteur par la surface d'un grain de speckle dans son plan, ce qui est valable si le diamètre du faisceau éclairant le détecteur est supérieur au diamètre du détecteur, ou bien en divisant la surface de l'image dans le plan du détecteur par la surface d'un grain, ce qui est valable lorsque le diamètre du faisceau éclairant le détecteur est inférieur au diamètre du détecteur ce qui est notre cas :

$$M_{det} = \left(\frac{D'}{2\epsilon'}\right)^2 = \left(\frac{\phi D'}{2 \times 1,22 \lambda L'}\right)^2 \quad (4.11)$$

La figure 4.7 nous montre les différents paramètres mis en jeu pour le calcul du nombre de grains dans le plan du détecteur.

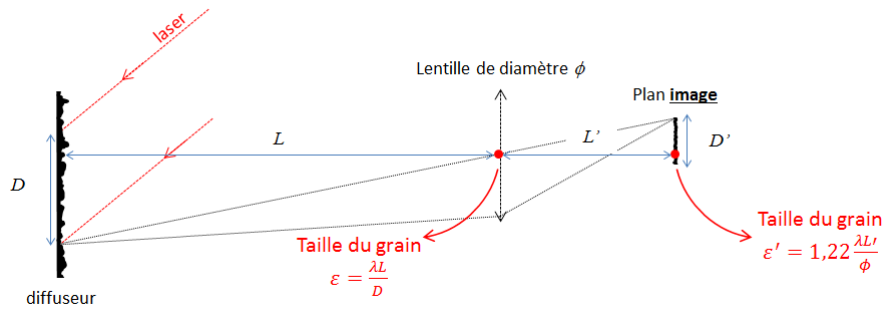


FIGURE 4.7 – Schéma simplifié des paramètres mis en jeu pour le calcul du nombre de grains de speckle dans le plan du détecteur.

Dans notre expérience D' est de $25 \mu\text{m}$, $\phi = 10 \text{ cm}$ le diamètre de notre miroir primaire et $L' = 25 \text{ cm}$, nous conduisant à un nombre de grains dans le plan du détecteur égal à environ 6.

Le bruit de speckle correspond à une incertitude sur l'intensité captée par le système de collection. Cette incertitude est reliée au nombre de grains captés par le détecteur. La fonction densité de probabilité de l'intensité d'une figure de speckle composée d'un seul grain suit une loi en exponentielle décroissante [Goodman, 2007] :

$$P_1(I) = \frac{1}{\langle I \rangle} \exp(-I / \langle I \rangle) \quad (4.12)$$

Avec l'intensité moyenne notée $\langle I \rangle$ et l'écart-type de l'intensité égale à $\langle I \rangle$.

La densité de probabilité de l'intensité d'une figure de speckle composée de N grains suit la loi suivante [Goodman, 2007] :

$$P_N(I) = \frac{I^{N-1}}{(N-1)!} \left(\frac{N}{\langle I \rangle}\right)^N \exp(-NI / \langle I \rangle) \quad (4.13)$$

Avec l'intensité moyenne notée $\langle I \rangle$ et l'écart-type de l'intensité $\sigma_I = \frac{\langle I \rangle}{\sqrt{N}}$. Ce qui donne un rapport signal à bruit proportionnel à \sqrt{N} .

En ayant 6 grains sur la figure de speckle imagée sur le détecteur, le bruit de speckle n'est pas négligeable puisque le RSB ne vaut que $\sqrt{6}$ soit $\sim 2,4$. Toutefois si l'on considère comme fixe les paramètres géométriques de notre mesure l'intensité mesurée au cours du temps doit être stationnaire mais incertaine. C'est à dire qu'il n'y a pas de fluctuations temporelles de l'intensité dues au bruit de speckle. En effet malgré le faible nombre de grains moyen ($N = 6$) arrivant sur notre détecteur nous n'avons pas observé de fluctuation de l'intensité au cours du temps. Notre figure de speckle peut être considérée stationnaire.

Cependant l'importante largeur spectrale de notre source pourrait engendrer une figure de speckle différente pour les différentes longueurs d'onde émises. L'intensité enregistré par le détecteur pourrait alors être la somme des différentes figures de speckle issues de notre large spectre. Nous devons donc vérifier l'ordre de grandeur de l'écart spectral nécessaire pour décorréler deux figures de speckle provenant de deux longueurs d'onde différentes.

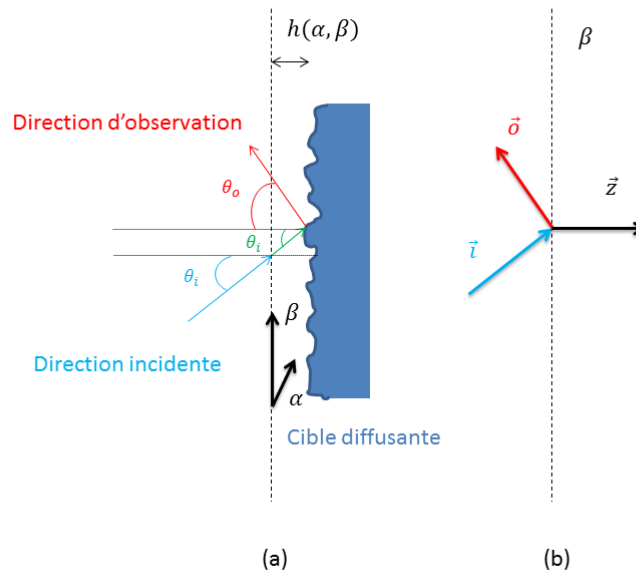


FIGURE 4.8 – (a) Schéma de principe de la diffusion de la lumière incidente sur une cible dure dont la variation d'épaisseur est notée $h(\alpha, \beta)$. θ_i représente l'angle du faisceau incident avec la normale au plan α, β). θ_o représente l'angle de la direction d'observation avec la normale au plan α, β). (b) représente les vecteurs unitaires indiquant la direction d'observation \vec{o} , la direction du faisceau illuminant la cible \vec{i} et la normale au plan d'observation \vec{z} .

La figure 4.8 montre le schéma de la diffusion de rayons lumineux sur une cible dure. Considérons un rayon lumineux incident de longueur d'onde λ arrivant sur la surface d'une cible diffusante (α, β) . La surface diffusante est caractérisée par la variation de son épaisseur dans le plan (β, α) . La cible est illuminée avec un angle d'incidence θ_i suivant un vecteur unitaire \vec{i} . La lumière diffusée est observée avec un angle θ_o dans un le plan dont la normale est \vec{z} . La direction d'observation suit un vecteur unitaire \vec{o} . Si l'on note $h(\beta, \alpha)$ l'épaisseur de la cible diffusante, le déphasage d'un rayon diffusé se note :

$$\phi(\beta, \alpha) = \frac{2\pi}{\lambda} (\vec{i} \cdot \vec{z} + \vec{o} \cdot \vec{z}) h(\alpha, \beta) \quad (4.14)$$

L'équation 4.14 peut se réécrire comme la variance du déphasage σ_ϕ^2 en fonction de la variance des fluctuations d'épaisseur de la cible σ_h^2 :

$$\sigma_\phi^2 = \left\{ \frac{2\pi}{\lambda} (\vec{i} \cdot \vec{z} + \vec{o} \cdot \vec{z}) \right\}^2 \sigma_h^2 \quad (4.15)$$

Dans des conditions normales d'illumination et d'observation, c'est à dire \vec{i} , \vec{o} et \vec{z} colinéaires l'équation 4.15 permet de relier l'écart-type de la phase introduite par diffusion avec l'écart-type de la variation d'épaisseur de la cible.

$$\sigma_\phi = \frac{2\pi}{\lambda} \times 2 \times \sigma_h \quad (4.16)$$

Les mesures Lidar par spectroscopie de Fourier à deux peignes de fréquences sont décorréelées si la différence relative de phase obtenue est au moins supérieure à 2π [Trisnadi, 2002]. On obtient la relation donnant l'ordre de grandeur de l'écart spectral permettant de décorréler deux figures de speckles en fonction de l'écart-type de l'épaisseur de la cible :

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2\sigma_h} \quad (4.17)$$

L'équation 4.17 peut se réécrire en fréquence en utilisant c la vitesse de la lumière :

$$\Delta\nu = \frac{c}{2\sigma_h} \quad (4.18)$$

La largeur spectrale de notre source est de 100 nm autour de 1,55 μm ce qui correspond à une largeur de 12 THz. L'écart-type de l'épaisseur de l'infragold n'est pas fournie, cependant on peut estimer que son ordre de grandeur équivaut au diamètre des demi-sphères composant la surface rugueuse de la cible soit 50 μm . On obtient un $\Delta\nu$ d'environ 3 THz ce qui est légèrement supérieure à la largeur de notre source laser. On s'attend donc à observer un léger effet de speckle sur la densité spectrale de puissance obtenue en utilisant la cible dure et cette configuration géométrique.

En revanche il faut retenir que pour d'autres cibles dures des effets dus au speckle peuvent apparaître comme des modulations d'amplitude du spectre. Par exemple pour un faisceau éclairant une cible rugueuse dont l'écart-type de l'épaisseur σ_h vaut 2,5 cm nous aurions une décorrélation des images de speckle générées à des longueurs d'onde espacées de 6 GHz correspondant à notre résolution spectrale. Dans cette configuration le bruit de speckle apparaîtrait sur le spectre enregistré, puisque chaque point du spectre aurait un bruit de speckle d'amplitude différente.

Afin de vérifier les effets de speckle sur nos spectres nous réalisons une mesure directe sans cible dure dans un but comparatif. Nous utilisons des densités optiques pour obtenir 6 mW de puissance sur le détecteur et ainsi travailler dans des conditions de RSB similaires. Le spectre obtenue est représenté sur la figure 4.9, il ne présente pas d'effet notable de speckle.

Il n'y a pas d'effet de speckle sur le spectre tel que des modulations d'amplitude. L'utilisation d'une cible dure pour réaliser des mesures DCS nous a conduit à étudier la présence de speckle et ses effets sur les spectres d'absorption, nous avons vu que cela est déterminé par les paramètres géométriques de l'expérience. A présent nous allons nous intéresser à des projections de performances à plus longue portée.

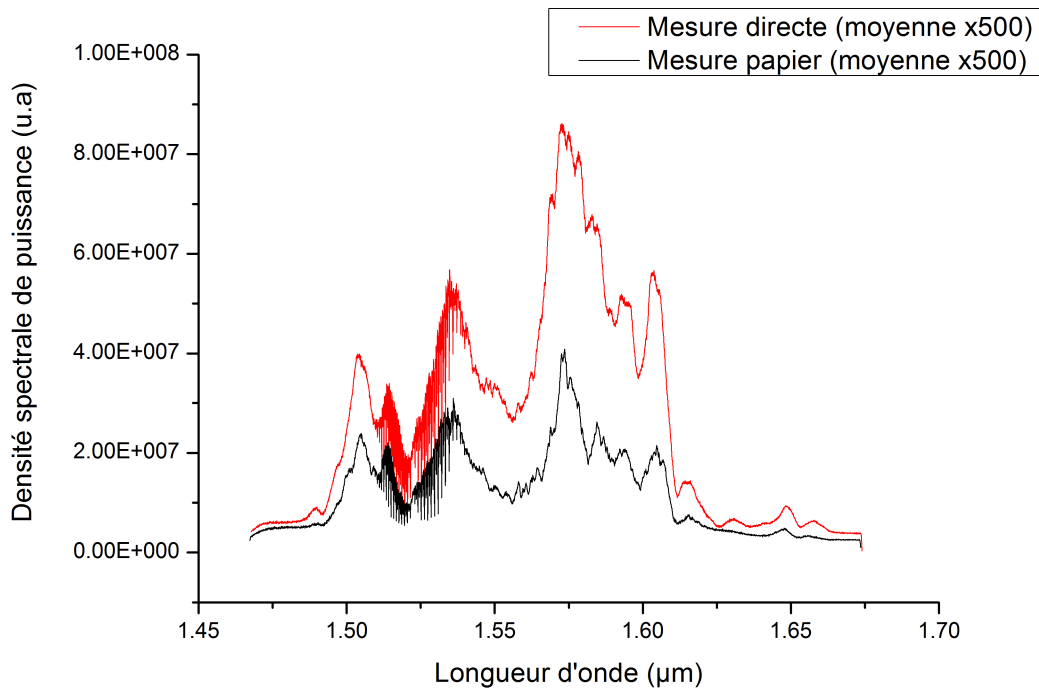


FIGURE 4.9 – En rouge la mesure directe sans cible dure et en noire la mesure utilisant la réflexion diffuse sur feuille de papier Les deux mesures sont réalisées pour la même puissance incidente sur les détecteurs.

4.1.3 Extrapolation mesures longues portées

A partir de notre expérience

Les mesures réalisées dans la section précédente sur une portée de 25 cm ne permettent pas de calculer les concentrations de gaz sur la ligne de visée. En effet le RSB_v d'un spectre est trop faible pour pouvoir distinguer une raie du bruit, il n'est donc pas possible de calculer une concentration à partir de ces spectres. Avec notre système actuel (puissance laser, stabilité f_{rep} et f_0 , détecteur, diamètre de télescope) il n'est donc pas possible de réaliser des mesures sur une plus grande distance. On s'intéresse à de plus longues portées car cela permet d'augmenter l'absorption ce qui permet de mieux distinguer les raies du bruit, mais étant donnée la décroissance du signal Lidar en $1/r^2$, augmenter la distance impose d'augmenter la puissance émise. Pour estimer la puissance requise nous pouvons nous baser sur l'équation Lidar IPDA que l'on peut vérifier grâce aux informations obtenues dans la partie précédente avec les paramètres de notre expérience. Nous allons ici voir les leviers permettant d'augmenter la puissance récoltée sur le détecteur et évaluer cette puissance à différentes portées arbitraires. Réécrivons l'équation Lidar :

$$P_{collectée}(\lambda) = K_{\lambda}(R) \frac{A_{pupille}}{R^2} \rho_{\lambda,i}^* P_{émise} \quad (4.19)$$

Avec $K_{\lambda}(R)$ un paramètre regroupant la transmission du télescope, la fonction de recouvrement du faisceau émis avec le champ de vue du télescope et la transmission du milieu sondé. En considérant le paramètre $K_{\lambda}(R)$ égal à 1, et en prenant la BRDF mesurée pour notre cible de papier comme valeur pour $\rho_{\lambda,i}^*$, on retrouve une puissance optique collectée de 6,9 mW pour une puissance émise de 263 mW. Ce qui est en accord avec la puissance mesurée expérimentalement (6,3 mW). A partir de cette équation nous pouvons dimen-

sionner une expérience similaire en faisant varier les différents paramètres, notamment l'albédo de la cible, sa distance mais aussi le diamètre du télescope et la puissance laser. Le tableau 4.1 fournit des valeurs d'albedo pour différents types de cible.

Type de cible	Réflectance (sr^{-1})
Végétation	0,025
Sable	0,29
Océan tropique	0,08
Neige	0,005
Nuages	0,15
Forêt de feuillus	0,05

TABLEAU 4.1 – Différentes valeurs de réflectance directionnels ρ^* à $2 \mu m$. ρ^* est définie comme la proportion du flux incident diffusé dans la direction du lidar par unité d'angle solide. Pour une cible lambertienne, elle est liée à l'albedo ρ par la relation $\rho^* = \rho/\pi$

En ciblant une forêt de feuillus la réflectance directionnelle passe de $0,21 sr^{-1}$ à $0,05 sr^{-1}$ soit une diminution de la puissance reçue d'un facteur 4,2. En augmentant la distance de la cible (forêt de feuillus) de 25 cm à 100 m on diminue encore la puissance récoltée cette fois ci d'un facteur $1,6 \times 10^5$. En remplaçant la feuille de papier à 25 cm du télescope par une forêt de feuillus à 100 m du télescope, la puissance récoltée est diminuée d'un facteur totale $6,72 \times 10^5$.

Pour obtenir une puissance permettant d'exploiter le signal reçu nous pouvons jouer sur différents leviers :

- Le diamètre du télescope : nous pouvons raisonnablement augmenter le diamètre à 50 cm, ce qui correspond au diamètre des plus grands télescopes commerciaux.
- La puissance : il a été démontré récemment par [Gaida et collab., 2018] qu'on pouvait obtenir une puissance moyenne de 60 W répartie entre 1700 nm et 2200 nm soit une largeur spectrale $\Delta v = 500$ nm, avec un laser peigne de fréquence Erbium cadencé à 100 MHz comme le notre.

Le tableau 4.2 montre la valeur de la puissance récoltée pour différents types de cible, un diamètre de télescope de 50 cm, une distance cible-télescope de 100 m ou 10 m. On considère également que la puissance émise de [Gaida et collab., 2018] de 60 W dont la densité spectrale de puissance est répartie sur 500 nm puisse se répartir uniquement sur nos 100 nm ce qui revient à augmenter la densité spectrale de puissance obtenue par Gaida d'un facteur 5. Ce qui revient à considérer une puissance émise de $60 \times 5 = 300$ W pour notre largeur spectrale.

La puissance nécessaire arrivant sur notre détecteur FPD 310 pour calculer une concentration à partir de la cellule d'acétylène est de 10 mW. En utilisant une puissance émise élevée de 300 W au lieu de nos 260 mW disponible, il est possible de réaliser des mesures Lidar IPDA en DCS sur des cibles naturelles qui soient exploitables avec notre système actuel sur une portée de 10 m mais pas de 100 m. Une autre possibilité afin d'augmenter la puissance collectée serait de réduire la largeur spectrale utilisée pour réaliser les mesures. Actuellement notre laser possède une largeur spectrale notée Δv égale à 100 nm on pourrait choisir une bande plus étroite par exemple 1 nm centrée sur une zone d'intérêt. L'utilisation d'un spectre moins large permettrait d'atteindre une densité spectrale de puissance plus élevée dans la zone d'intérêt. Un compromis entre largeur spectrale et portée de la mesure avec une bande spectrale bien choisie d'un ou quelques nm serait intéressante. Cette idée est d'ailleurs exploitée par François Lemaitre de l'ONERA et

Type de cible	Puissance récoltée à 100 m (μW)	Puissance récoltée à 10 m (mW)
Sable	1700	170
Nuages	883	88
Océan tropique	471	47
Forêt de feuillus	294	29
Végétation	147	15
Neige	29	3

TABLEAU 4.2 – Puissance récoltée par le télescope en fonction des différents types de cibles. On considère ici une puissance émise de 300 W, un télescope de 50 cm de diamètre, une largeur spectrale de 100 nm et une distance cible-télescope de 100 m pour la première colonne et de 10 m pour la seconde colonne.

Philippe-Jean Hébert du CNES qui réalisent des mesures DCS avec des peignes de fréquence électro-optique [Hébert et Lemaître, 2019]. Leur système leur permet de générer entre 3 et 13 dents sur une largeur spectrale de quelques GHz dont la position centrée autour de $1,5 \mu\text{m}$ peut être accordée. La figure 4.11 montre une transmittance obtenue pour une cellule de $\text{H}_{13}\text{C}_{14}\text{N}$. Ce système permet de sonder une raie d'absorption atmosphérique à la fois. Des raies d'absorption du CO_2 et H_2O sont atteignables en accordant la diode laser continue autour de $1,5 \mu\text{m}$. Ce système fait l'objet d'une étude de faisabilité de mesure de concentration de CO_2 depuis un satellite.

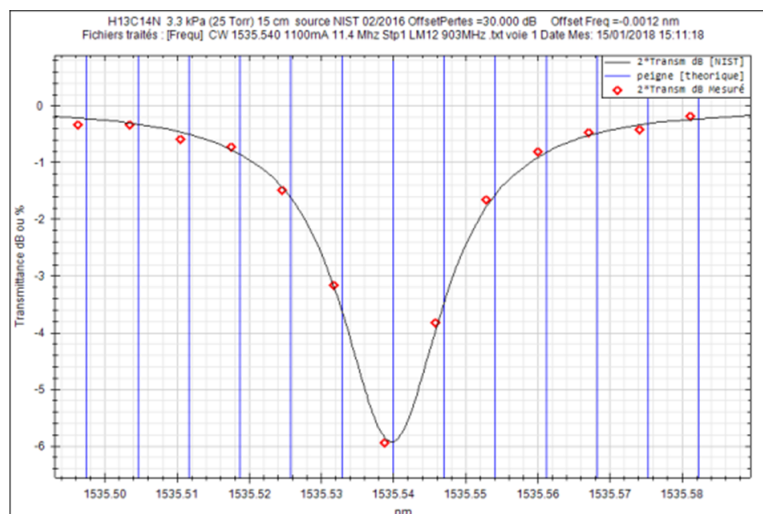


FIGURE 4.10 – Transmittance expérimentale d'une mesure réalisée sur une cellule de $\text{H}_{13}\text{C}_{14}\text{N}$. En rouge les mesures expérimentales des 13 dents du mini-peigne, en noire une mesure comparative du NIST. Figure tirée de [Hébert et Lemaître, 2019]

En modifiant la largeur spectrale de notre système en la faisant passer de 100 nm de large à 1 nm, ce qui revient à augmenter artificiellement la puissance émise d'un facteur 100 soit 30 kW nous recalculons les puissances collectées à 100 m de portées pour différents types de cibles naturelles dans le tableau 4.3.

La puissance nécessaire de collection de 10 mW avec notre détecteur actuel est atteinte pour l'ensemble de ces cibles sauf la neige. Deux autres leviers restent à utiliser :

- La sensibilité du détecteur.

Type de cible	Puissance récoltée à 100 m (mW)
Sable	170
Nuages	88
Océan tropique	47
Forêt de feuillus	29
Végétation	15
Neige	3

TABLEAU 4.3 – Puissance récoltée par le télescope en fonction des différents types de cibles. On considère ici une puissance émise de 30 kW, un télescope de 50 cm de diamètre, et une distance cible-télescope de 100 m et une largeur spectrale de 1 nm.

- La durée d'intégration qui nécessite une stabilisation complète de f_{rep} et f_0 des lasers et qui permettrait de moyennner les acquisitions pour augmenter le RSB afin de pouvoir exploiter ces puissance optiques. Dans la section suivante ces deux leviers pour augmenter le RSB des acquisitions seront utilisés.

A partir de la littérature

En se basant sur la littérature il est possible d'extrapoler la puissance ainsi qu'un diamètre de télescope nécessaire à des mesures longues portées sur cible diffuse avec des lasers entièrement stabilisés permettant de moyennner les acquisitions. La publication du NIST [Rieker et collab., 2014] rapportent des mesures de concentrations de CO₂, CH₄ et H₂O sur 2 km d'atmosphère à l'aide d'un rétro réflecteur. Cette publication peut être utilisée comme standard pour estimer la puissance collectée par le détecteur nécessaire pour avoir des mesures de qualité comme obtenue dans l'article de Rieker et al. Le détecteur utilisé n'est pas spécifié, cependant on apprend que la puissance récoltée sur le détecteur n'excède pas les 50 μ W correspondant au seuil de non linéarité du détecteur (CF Annexe) pour une largeur spectrale du laser de 80 nm. Avec cette puissance récoltée et un temps d'intégration de 5 minutes les auteurs obtiennent une précision de l'ordre du ppm sur le dioxyde de carbone et de l'ordre de 3 ppb pour le méthane. En considérant une cible infragold dont la réflectance bidirectionnelle vaut 1 sr^{-1} , un télescope de 50 cm de diamètre et une puissance émise de 60 W correspondant à l'amplification de [Gaida et collab., 2018] sur la largeur spectrale de 500 nm, il est alors possible de réaliser des mesures jusqu'à une distance de 110 m et de récolter une puissance de 310 μ W correspondant à la puissance laser nécessaire sur le détecteur équivalente à une puissance laser de 50 μ W répartie sur 80 nm. En effet si la largeur spectrale de la mesure passe de 80 nm à 500 nm alors la puissance laser minimale nécessaire passe de 50 μ W à 310 μ W pour conserver le RSB des mesures de Rieker. Il est intéressant de savoir la portée atteignable en fonction du type de cible utilisé et en fonction de la largeur spectrale utilisée à savoir Δv égale 500 nm ou 80 nm.

Des mesures embarquées longues portées tel que depuis un avion, un ballon ou un satellite ne sont pour le moment pas envisageables. Nous pouvons toutefois estimer la puissance nécessaire à de telles mesures. Nous considérons un télescope de 1 m de diamètre, une cible dont la réflectance bidirectionnelle vaut 0,05 sr^{-1} (foret de feuillus), une largeur spectrale de 80 nm c'est à dire que la puissance à collecter nécessaire est de 50 μ W. Nous obtenons les puissances suivantes :

L'utilisation de la DCS en réflexion diffuse sur une cible dure n'offre qu'une portée très limitée lorsque l'on considère une largeur spectrale de l'ordre de plusieurs centaines de

Type de cible	portée (m) $\Delta\nu = 500$ nm	portée (m) $\Delta\nu = 80$ nm
Cible infragold	110	275
Sable	60	150
Nuages	40	105
Océan tropique	30	77
Forêt de feuillus	25	60
Végétation	17	40
Neige	7	20

TABLEAU 4.4 – Portée atteignable en fonction des différentes cibles diffusantes. La portée maximale est définie comme la distance au delà de laquelle la puissance récoltée est inférieure à $50 \mu\text{W}$ lorsque la largeur spectrale vaut 80 nm et inférieure à $310 \mu\text{W}$ lorsque la largeur spectrale vaut 500 nm. On considère un diamètre de télescope de 50 cm, la puissance émise considérée est de 60 W [Gaida et collab., 2018].

Embarquement	portée (km)	Puissance nécessaire (W)
Satellite	400	$6,4 \times 10^9$
Avion	2	$1,6 \times 10^5$

TABLEAU 4.5 – Puissance nécessaire pour des mesures longues portées en considérant une puissance récoltée de $50 \mu\text{W}$, un télescope de 1 m de diamètre et une cible de type forêt de feuillus dont la réflectance bidirectionnelle vaut $0,05 \text{ sr}^{-1}$

nm. Cette limitation est due à la puissance d'émission des peignes de fréquences. Même si ces lasers peuvent émettre jusqu'à 60 W, cette puissance se répartie sur l'ensemble du spectre $1700 - 2200$ nm dans [Gaida et collab., 2018]. Une solution intéressante est donc de limiter l'étendue spectrale à amplifier et de se contenter d'une largeur d'un ou quelques nm afin d'atteindre des densités spectrales de puissance dans la zone d'intérêt qui permettent de réaliser des mesures longues portées. Il s'agit de trouver le bon compromis entre largeur spectrale et portée souhaitée.

4.2 Mesures résolues spatialement

Les mesures Lidar IPDA et DiAL se différencient par le support de retour de la lumière. Dans le premier cas le faisceau lumineux est diffusé par une cible dure positionnée à une distance R . Les informations de pression, température et concentration déduites du spectre d'absorption sont intégrées sur la ligne de visée du laser. Il n'y a pas de résolution spatiale possible. Dans le second cas il n'y a plus de cible dure. La lumière est rétrodiffusée par les aérosols présents sur la ligne de visée du laser, le milieu diffusant se comporte comme une suite de couches de profondeur $\Delta r = \frac{c\Delta t_L}{2}$ pour lesquelles $\rho_\lambda^*(r) = \beta(r)\Delta r$. où $\beta(r)$ est le coefficient de rétrodiffusion du milieu en $m^{-1} \text{ sr}^{-1}$. On peut montrer que la puissance collectée est donnée par l'équation [Weitkamp, 2006] :

$$P_\lambda(r) = \Gamma_\lambda \frac{A_{pup}}{r^2} O_\lambda(r) \beta(r) \frac{c}{2} T_\lambda^2(r) E_\lambda \quad (4.20)$$

Le coefficient de rétrodiffusion β est de l'ordre de $10^{-7} m^{-1} sr^{-1}$ autour de $1,5 \mu m$, la fraction de puissance rétrodiffusée pour une tranche d'un mètre est équivalente à celle d'une surface ayant un albédo de l'ordre de $3 \times 10^{-7} sr^{-1}$. La puissance optique instantanée reçue en provenance des aérosols est donc typiquement 10^{-5} à 10^{-6} fois plus faible que la puissance reçue par rétrodiffusion sur une cible dure.

L'utilisation d'un laser pulsé couplé à la rétrodiffusion des aérosols permet d'obtenir une information spatiale du milieu sondé. La méthode de localisation des impulsions par leur temps de vol consiste à relier le temps de propagations des impulsions à la distance parcourue [Zieliński et collab., 2004], [Ussyshkin et Theriault, 2011], [Brede et collab., 2017]. Le temps de propagation d'une impulsion entre son émission à $t = t_E$ et sa réception à $t = t_R$ après qu'elle se soit rétrodiffusée sur un support est directement relié à la distance parcourue, puisque dans l'intervalle de temps $\Delta t = t_R - t_E$ l'impulsion a parcourue un aller-retour que l'on note $2\Delta z$. Connaissant la vitesse de propagation de la lumière c , nous calculons la distance :

$$\Delta z = \frac{c\Delta t}{2} \quad (4.21)$$

Δz correspond à la position de la rétrodiffusion de l'impulsion. Dans le cas où le support de rétrodiffusion sont les aérosols, l'impulsion émise ne se rétrodiffuse pas en un point précis mais tout le long du chemin contenant des aérosols. Le signal retour n'est plus une impulsion courte mais un signal continu. Le schéma de la figure 4.12 représente le principe de temps de vol et propose les situations où le support retour est une tranche d'aérosols et celui où le support est un miroir.

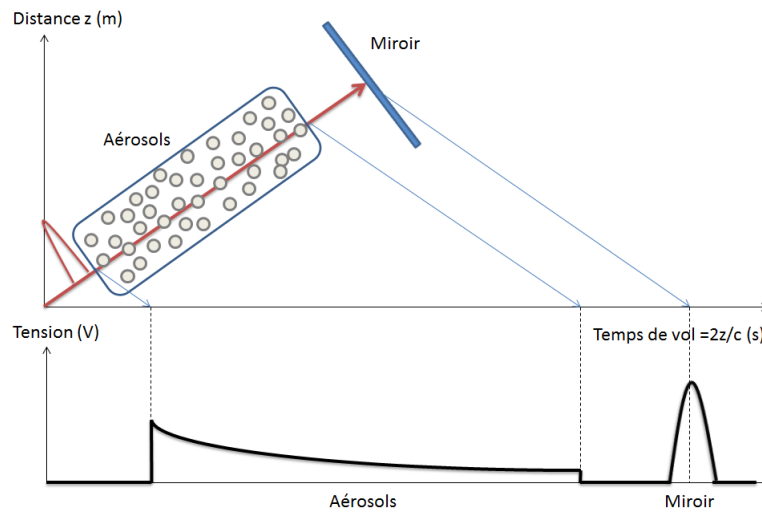


FIGURE 4.11 – Schéma représentant le principe de localisation des impulsions lumineuses par leur temps de vol. La couche d'aérosols renvoie un signal aussi large temporellement que l'épaisseur de la couche. La cible, par exemple un miroir renvoie l'impulsion telle quelle.

4.2.1 Laser haute cadence et distance d'ambiguïté

Le principe de localisation des impulsions par leur temps de vol dépend de la fréquence de répétition des impulsions f_{rep} . La période séparant deux impulsions consécutive détermine la profondeur maximale Δz_{max} de la couche sondable.

$$\Delta z_{max} = \frac{c}{2f_{rep}} \quad (4.22)$$

Au delà de cette profondeur appelée la distance d’ambiguïté les impulsions émises se superposent à leur retour et il n’est pas possible de les discerner. Dans le cas de nos laser la fréquence de répétition étant de 100 MHz, nous obtenons une distance d’ambiguïté de 1,5 m. Cela signifie qu’au delà de cette distance, la méthode de localisation des impulsions par leur temps de vol n’est plus applicable. Des méthodes provenant des lidars continus peuvent être utilisées pour augmenter la distance d’ambiguïté. La méthode la plus connue repose sur la modulation pseudo aléatoire de l’amplitude [Takeuchi et collab., 1983], [Takeuchi et collab., 1986], [Nagasawa et collab., 1990], [Ai et collab., 2011], cette méthode a même été importée à la DCS afin de réaliser des mesures de distances résolue spectralement [Godbout et collab., 2010], des méthodes basées sur le déphasage des impulsions ou la modulation de fréquences [Amann et collab., 2001], [Piracha et collab., 2010]. sont aussi envisageables.

4.2.2 Utilisation d’un pulse picker

Description de la méthode

Puisque la distance d’ambiguïté dépend de la fréquence de répétition des lasers, elle peut être augmentée en diminuant cette fréquence. Le pulse picker est un appareil électro-optique composé d’une cellule de pockels qui est pilotée pour modifier la polarisation des impulsions qui la traversent. Un polariseur est placé en sortie de traversée pour filtrer les impulsions. Les impulsions filtrées sont cadencées à plus basse fréquence que l’initiale. L’utilisation d’un pulse picker semble idéale pour augmenter la portée des mesures en rétrodiffusion. Il est utile de définir N le facteur de division de la fréquence. Le pulse picker permet de sélectionner une impulsion sur N , si on sélectionne une impulsion sur deux avec le pulse picker ($N = 2$), la cadence est divisée par deux. La Figure 4.13 représente le schéma de principe du pulse picker.

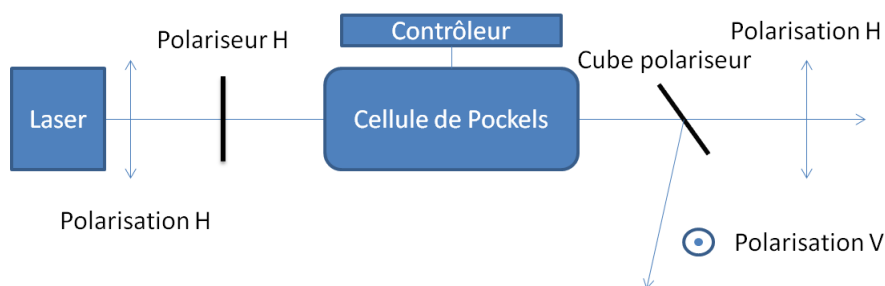


FIGURE 4.12 – Schéma de principe du pulse picker. Les impulsions émises par le laser à la fréquence de répétition f_{rep} sont polarisées horizontalement, un polariseur horizontal permet de s’assurer que seule cette direction de polarisation soit transmise à la cellule de Pockels. Lorsqu’elle est alimentée par de la haute tension la cellule permet de tourner la direction de polarisation des impulsions qui la traverse afin d’avoir une polarisation verticale en sortie. Un cube polariseur permet de séparer la polarisation verticale de la polarisation horizontale. Les impulsions polarisées verticalement sont cadencées à $\frac{f_{rep}}{N}$. Le contrôleur de la cellule de Pockels permet de gérer la valeur de N .

L’utilisation du pulse picker permet de réduire la fréquence de répétition et donc d’obtenir la distance d’ambiguïté nécessaire pour sonder une épaisseur de milieu diffusant. Cependant réduire la fréquence de répétition d’un facteur N nécessite certaines précautions pour produire un interférogramme car il se construit en faisant varier le délai entre

les impulsions arrivant sur le détecteur. Considérons une impulsion du premier laser et une impulsion du second laser arrivant sur le détecteur comme une paire d'impulsions notées p_n . Le délai séparant ces deux impulsions peut être noté δ_n . La paire d'impulsions suivante p_{n+1} est associée au délai δ_{n+1} qui est égal au délai de δ_n incrémenté de la valeur $\frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}^2}$. Le tableau 4.6 récapitule les paramètres de l'interférogramme dans des conditions normales de DCS et ceux lors de l'utilisation du pulse picker sélectionnant une impulsion sur N.

Paramètres	Sans pulse picker	Avec pulse picker
Fréquence de répétition	f_{rep}	$\frac{f_{rep}}{N}$
Différence de fréquence de rép. optimale	Δf_{rep}	$\frac{\Delta f_{rep}}{N^2}$
Distance d'ambiguïté	$\frac{2c}{f_{rep}}$	$N \frac{f_{rep}}{2c}$
Incrément du délai optique	$\frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}^2}$	$\frac{N \Delta f_{rep}}{f_{rep}^2}$
Temps d'acquisition d'un int.	T_{acq}	$N^2 \times T_{acq}$

TABEAU 4.6 – Différents paramètres concernant l'interférogramme avec et sans utilisation de pulse picker.

L'enregistrement par la photodiode du signal interférométrique rétrodiffusé ne fournit pas des interférogrammes successifs résolus spatialement. Le signal acquis est noté $S(t, p_{n(t)})$. La paire d'impulsions émises que l'on note p_n va sonder le milieu diffusant et revenir avant l'émission de la paire suivante (p_{n+1}) puisque la distance d'ambiguïté est supérieure à la profondeur à sonder. Le milieu à sonder peut être découpé en plusieurs couches de largeur Δz dépendantes du temps de montée de la photodiode utilisée t_m :

$$\Delta z = \frac{c \times t_m}{2} \quad (4.23)$$

La rétrodiffusion de la lumière de la paire d'impulsions p_n va nous permettre d'enregistrer un signal interférométrique $S(t, p_{n(t)})$. La localisation des impulsions par leur temps de vol nous permet de faire correspondre une distance au temps, on obtient donc $S(z, p_{n(t)})$. La paire d'impulsions p_n est associée à un délai δ_n , le signal peut donc se réécrire $S(z, \delta_n)$. Nous obtenons donc un signal interférométrique résolu spatialement associé au délai δ_n . La paire d'impulsions suivante p_{n+1} nous donne le signal interférométrique associé cette fois au délai δ_{n+1} . Il faut garder à l'esprit que pour construire un interférogramme le délai δ doit être balayé. Après avoir balayé un délai suffisant le signal enregistré doit être traité pour reconstruire un interférogramme correspondant à chaque couche d'atmosphère sondée.

Les Figures 4.14 et 4.15 récapitulent le principe de reconstruction des interférogrammes résolus spatialement à partir du signal rétrodiffusé brut.

La transformation de Fourier de chacun de ces interférogrammes fournit un spectre d'absorption, permettant ainsi d'obtenir un spectre d'absorption par couche sondée. On obtient donc un spectre d'absorption résolu spatialement. L'équipe du professeur Genest a réalisé en 2013 des mesures de spectroscopie de Fourier par peignes de fréquences avec un pulse picker cependant la méthode de reconstruction des interférogrammes n'est pas

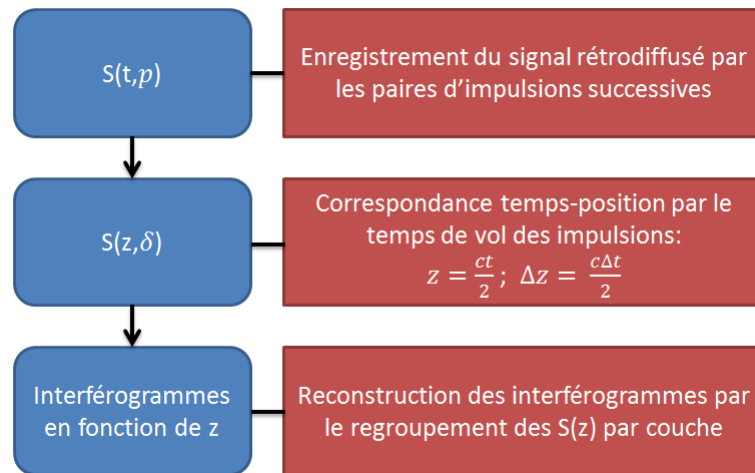


FIGURE 4.13 – Principe de reconstruction des interférogrammes résolues spatialement.

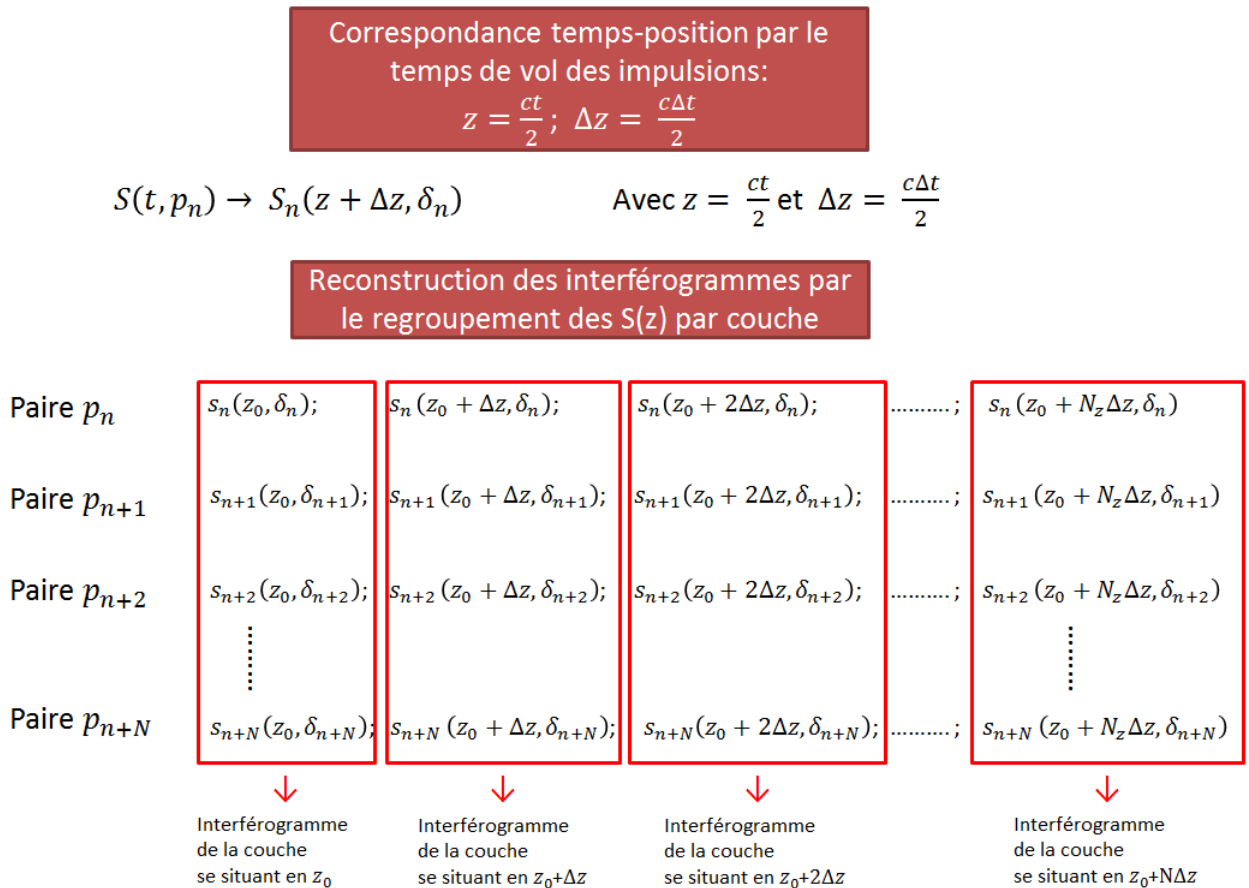


FIGURE 4.14 – Principe de reconstruction des interférogrammes. Le signal provenant de la même couche balaye le délai δ construisant l'interférogramme de la largeur du milieu diffusant défini par le temps de montée de la photodiode utilisée pour enregistrer le signal.

spécifiée [Boudreau et collab., 2013]. Les résultats obtenus sont représentés sur la Figure 4.16.

Ce papier, est le seul à ce jour à proposer une expérience de Lidar résolue spatialement en utilisant la DCS. Les lasers utilisés sont des lasers de chez Menlo émettant autour de

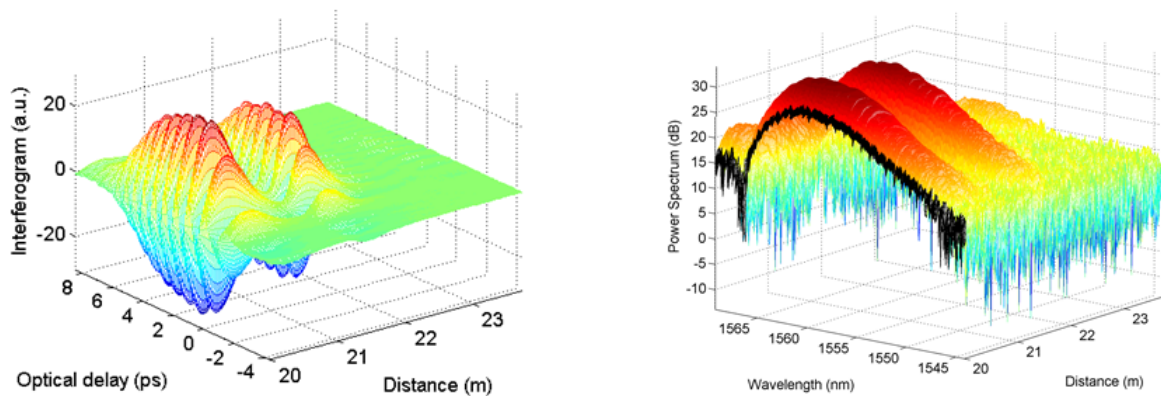


FIGURE 4.15 – Courbes tirées de [Boudreau et collab., 2013]. A gauche l’interférogramme résolue spatialement et à droite la transformation de Fourier fournissant le spectre d’absorption résolue spatialement.

1,5 μm à 100 MHz comme les nôtres. La distance d’ambiguïté initiale de 1,5 mètres est augmentée à 4,5 mètres en réduisant la fréquence de répétition des lasers d’un facteur 3. Cette nouvelle distance d’ambiguïté permet de résoudre spatialement la scène d’environ 3 mètres de profondeur comprenant, une cellule de HCN, un nuage de gouttelettes d’eau d’un mètre de profondeur et une cible Lambertienne Spectralon. La scène est positionnée à une vingtaine de mètres du télescope de collection. La puissance moyenne du faisceau émis est de l’ordre du watt, les deux faisceaux sondent la scène. La puissance collectée sur le détecteur est de quelques nW. Le signal est enregistré à l’aide d’une photodiode à avalanche dont le temps de montée est de 2,7 ns fournissant une résolution spatiale de la scène d’environ 40 cm. Le temps de mesure total des interférogrammes est d’environ 45 minutes. La résolution spectrale est de 0,04 nm soit environ 5 GHz. Le RSB de ces mesures ne permet pas de calculer la concentration en HCN de la cellule mais permet d’identifier les raies d’absorption. Ce papier démontre la faisabilité de mesures résolues spatialement en utilisant la DCS, il est donc en principe possible d’utiliser la rétrodiffusion sur les aérosols pour réaliser des mesures atmosphériques d’absorption résolues spatialement. Un pulse picker a été approvisionné lors de cette thèse mais nous n’avons pas pu tester la méthode présentée ici par faute de temps.

Application numérique et limitations

Le tableau 4.7 donne les valeurs des paramètres d’acquisition du système DCS pour une largeur spectrale d’émissions $\Delta\nu = 100$ nm et pour une distance d’ambiguïté de 1,5 m pour la colonne de gauche et 1000 m pour la colonne de droite. La valeur de $\Delta\nu$ fixe le paramètre Δf_{rep} optimal alors que la distance d’ambiguïté fixe la valeur de N du pulse picker.

La durée d’acquisition d’un interférogramme complet passe alors de 2 ms pour une distance d’ambiguïté de 1,5 m à 900 s pour une distance d’ambiguïté de 1 km. L’atmosphère ne peut être considéré comme figé durant cette durée d’acquisition. L’interférogramme associé à une épaisseur d’atmosphère s’est alors construit à partir d’un signal rétrodiffusé par une atmosphère ayant varié au cours de l’acquisition. Cet effet mériterait d’être étudié en détails mais il n’a pas été fait ici.

En diminuant la largeur spectrale d’émission des lasers $\Delta\nu$ de 100 nm à 1 nm on peut voir dans le tableau 4.8 que la valeur de Δf_{rep} optimale passe de 500 Hz à 100 mHz. La durée

Paramètres	A.N sans pulse picker ($L_{amb} = 1,5 \text{ m}$) $\Delta\nu = 100 \text{ nm}$	A.N avec pulse picker ($L_{amb} = 1 \text{ km}$) $\Delta\nu = 100 \text{ nm}$
Fréquence de répétition	100 MHz	150 kHz
Différence de fréquence de rép. optimale	500 Hz	1 mHz
Distance d'ambiguïté	1,5 m	1000 m
Incrément du délai optique	500 ps	6 ns
Temps d'acquisition d'un int.	2 ms	900 s

TABLEAU 4.7 – Différents paramètres concernant l'interférogramme avec et sans utilisation de pulse picker et leurs applications numériques pour $\Delta\nu = 100 \text{ nm}$. La première application numérique est réalisée avec les valeurs des paramètres utilisés dans nos mesures expérimentales. La seconde application numérique est réalisée en fixant la distance d'ambiguïté à 1000 m soit une valeur de $N = 666$.

d'acquisition d'un interférogramme complet passe alors de 2 ms à 9 μs . L'augmentation de la distance d'ambiguïté d'un facteur N se traduit par une augmentation de la durée d'acquisition d'un interférogramme d'un facteur N^2 .

Paramètres	A.N sans pulse picker ($L_{amb} = 1,5 \text{ m}$) $\Delta\nu = 1 \text{ nm}$	A.N avec pulse picker ($L_{amb} = 1 \text{ km}$) $\Delta\nu = 1 \text{ nm}$
Fréquence de répétition	100 MHz	150 kHz
Différence de fréquence de rép.	50 kHz	100 mHz
Distance d'ambiguïté	1,5 m	1000 m
Incrément du délai optique	5 ps	60 ps
Temps d'acquisition d'un int.	20 μs	9 s

TABLEAU 4.8 – Différents paramètres concernant l'interférogramme avec et sans utilisation de pulse picker et leurs applications numériques pour $\Delta\nu = 1 \text{ nm}$. La première application numérique est réalisée avec les valeurs des paramètres utilisés dans nos mesures expérimentales. La seconde application numérique est réalisée en fixant la distance d'ambiguïté à 1000 m, soit une valeur de $N = 666$.

Un des avantages de la DCS est la vitesse d'acquisition d'un spectre d'absorption. Lorsque l'on augmente la distance d'ambiguïté avec un pulse picker, on diminue quadratiquement la vitesse d'acquisition, cela est dû à la différence de fréquence de répétition optimale qui doit être divisée non pas par N mais par N^2 pour éviter le recouvrement entre les répliques RF du peigne. L'avantage de la vitesse d'acquisition de la méthode est donc perdue. Lorsque l'on cherche à obtenir une distance d'ambiguïté d'un kilomètre on a un double intérêt à diminuer la largeur spectrale d'émission des lasers et de se restreindre sur une zone d'intérêt d'un ou quelques nm de large :

- On augmente alors comme on la vu précédemment la densité spectrale de puissance dans la zone d'intérêt permettant ainsi d'augmenter la puissance récolter sur le détecteur.
- On diminue la durée d'acquisition d'un interférogramme complet permettant ainsi d'être moins sensible aux fluctuations de l'atmosphère durant la durée d'acquisition.

4.2.3 Utilisation d'une configuration d'imagerie Scheimpflug

Description de la méthode

En utilisant un pulse picker on doit s'assurer que la distance d'ambiguïté déterminée soit inférieure à la portée des mesures réalisées. Cette condition augmente considérablement le temps d'acquisition d'un interférogramme. L'utilisation d'une configuration d'imagerie Scheimpflug permet d'obtenir une durée d'acquisition plus courte que celle obtenue avec un pulse picker pour la même portée de mesure. La méthode Scheimpflug permet d'obtenir une résolution spatiale à partir d'un laser continue ou haute cadence. Cette méthode est basée sur la loi de Scheimpflug [Scheimpflug, 1904]. Cette loi peut être énoncée en considérant un objet imagé par une lentille. La loi stipule que si le plan objet (O) et le plan de la lentille (L) servant à l'imager sont tous les deux parallèles alors le plan image (I) l'est également. En revanche si le plan objet et le plan de la lentille ne sont pas parallèles alors le plan image est un plan passant par l'intersection du plan objet et le plan de la lentille. La figure 4.16 schématise la configuration d'un Lidar Scheimpflug, la barrette CCD permet d'imager le plan défini par la ligne de visée du laser et d'obtenir une résolution spatiale. Les variables mises en jeu sont représentées sur ce schéma.

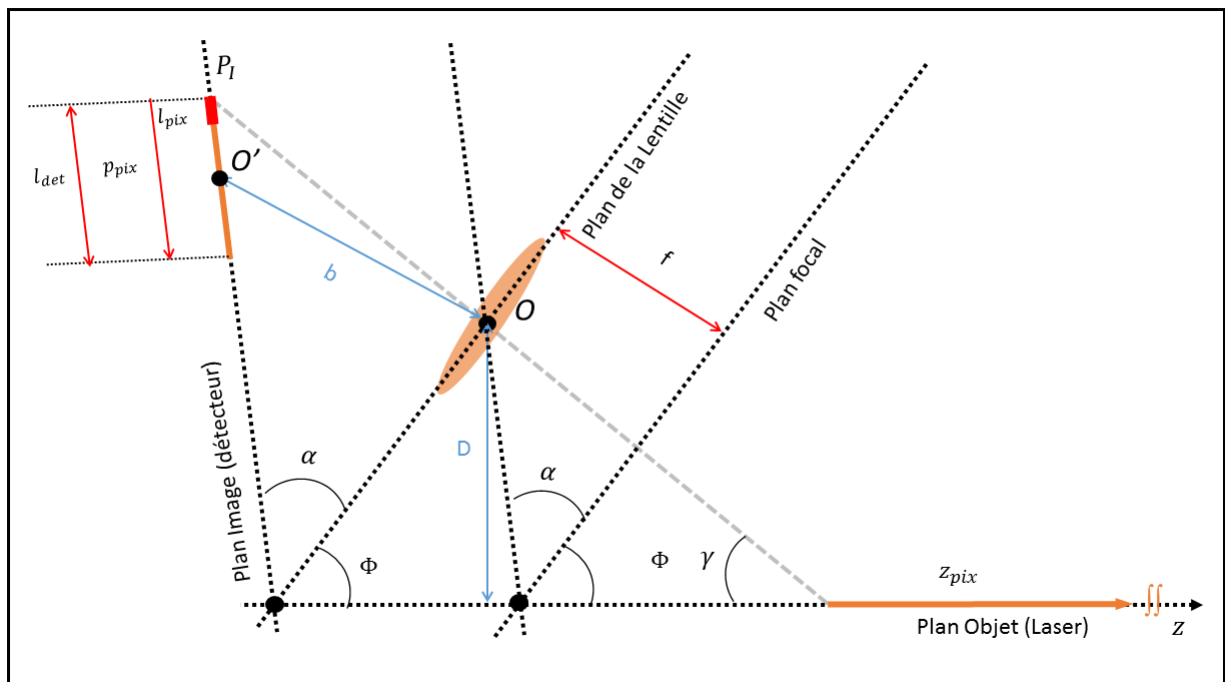


FIGURE 4.16 – Schéma d'une configuration Scheimpflug.

Précédemment nous utilisons la méthode de localisation des impulsions par leur temps de vol, le principe est d'imager une portion d'atmosphère en fonction du temps sur un détecteur unique. En configuration d'imagerie Scheimpflug on image simultanément toute la ligne de visée du laser sur une barrette de détecteurs comme représenté sur la figure 4.17. Cette configuration géométrique permet d'imager la colonne éclairée par un laser sondant l'atmosphère. La distance est résolue angulairement plutôt que par temps de vol des impulsions.

Les lasers continus peuvent donc être utilisés. Ce principe est utilisé depuis des décennies pour résoudre spatialement des courtes distances. Récemment il a été adapté et employé dans des systèmes Lidars afin de réaliser des mesures de concentration de gaz

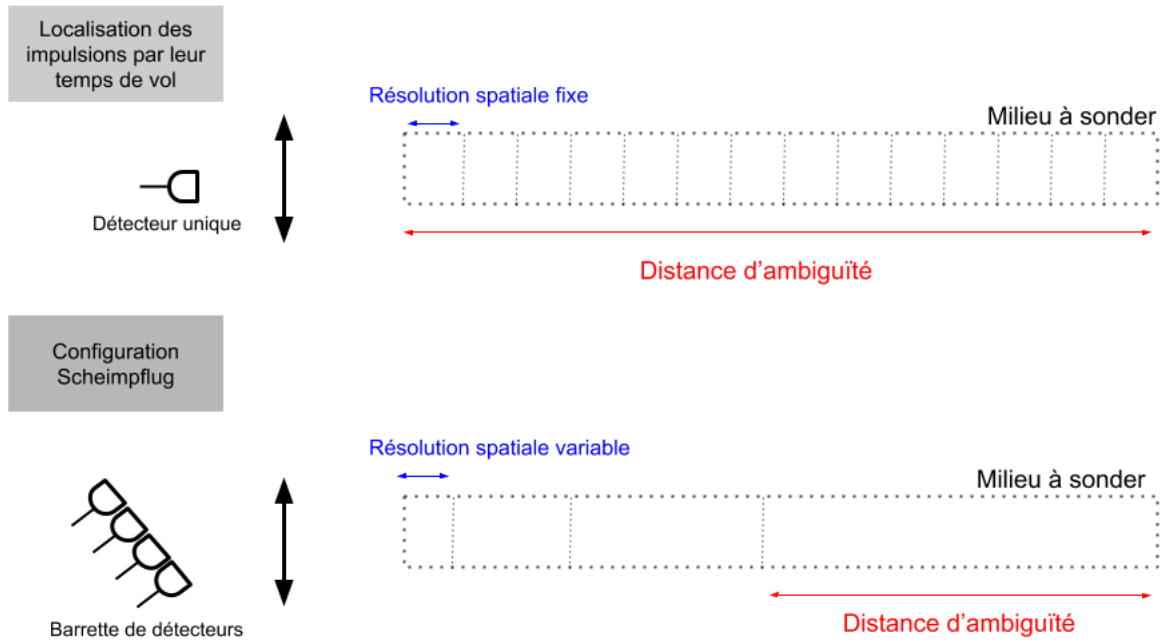


FIGURE 4.17 – Schéma de principe d’une configuration TOF (Time Of Flight) en haut. Schéma de principe d’une configuration Scheimpflug.

atmosphériques avec une portée de plusieurs kilomètres [Mei et Brydegaard, 2015a], [Mei et Brydegaard, 2015b]. Pour bénéficier de la résolution spatiale, une barrette CCD ou une caméra sont utilisées dans une configuration respectant la loi de Scheimpflug. La portion d’atmosphère observée par chaque pixel varie, autrement dit la résolution spatiale n’est pas constante contrairement à l’utilisation du temps de vol des impulsions. La portion z_{pix} observée par le pixel numéro m dont la position est notée p_{pix} peut être calculée à partir des lois de Scheimpflug et du levier.

$$z_{pix} = D \times \frac{b + p_{pix}(\sin(\alpha) - \cos(\alpha)\cot(\phi))}{b \times \cot(\phi) + p_{pix}(\sin(\alpha)\cot(\phi) + \cos(\alpha))} \quad (4.24)$$

Avec :

$$D = \frac{b}{\tan(\alpha)} \times \sin(\phi) \quad (4.25)$$

$$\phi = \arctan\left(\frac{f \times \tan(\alpha)}{b - f}\right) \quad (4.26)$$

$$p_{pix} = m \times l_{pix} - l_{det}/2 \quad (4.27)$$

Afin de pouvoir déterminer la portion z_{pix} observée par chaque pixel, la constante b inconnue doit être déterminée. Pour cela il faut utiliser une cible coopérative dont on connaît la position, que l’on note z_{ref} . Cette cible va éclairer le pixel que l’on note m_{ref} . A partir de la relation entre m_{ref} et z_{ref} définie par les équations nous pouvons calculer b . Ainsi connaissant b , la portion z_{pix} observée par chaque pixel m peut être calculée. Chaque pixel voit une portion d’atmosphère plus ou moins étendue qui dépend notamment de la taille du pixel. Les équations montrent que la résolution spatiale du Lidar Scheimpflug est contrainte non seulement par la largeur du pixel mais également par son

angle d'observation du faisceau laser. La dépendance en position de la résolution s'obtient de dérivant z_{pix} par rapport à p_{pix} . On obtient :

$$dz_{pix} = \frac{z_{pix}^2 b \times \cos(\alpha)(1 + \cot(\phi)^2)}{D^2(b + p_{pix}(\sin(\alpha) - \cos(\alpha)\cot(\phi)))^2} dp_{pix} \quad (4.28)$$

La résolution spatiale croît en z_{pix}^2 , chaque pixel image une longueur de portion du faisceau laser différente. La puissance reçue par chaque pixel est indépendante de la portée du laser puisque la décroissance de la puissance récoltée en $\frac{1}{z^2}$ due à l'angle solide est compensée par l'augmentation de la longueur de la portion imagée.

Le tableau 4.9 recense les variables servant à décrire les équations du Lidar Scheimpflug ainsi que leur définition.

Variable	Définition
l_{det}	Longueur du détecteur
l_{pix}	Largeur d'un pixel
m	Numéro de pixel
p_{pix}	Position du pixel m sur le détecteur
z_{pix}	Portée du pixel m positionné en p_{pix}
dz_{pix}	Résolution du pixel m
f	Focale du système de collection
D	Distance perpendiculaire entre le faisceau laser et le centre de la lentille de collection
b	Distance perpendiculaire entre le centre de la barrette de détection et le centre de la lentille
α	Angle entre le plan de la lentille et le plan du faisceau laser
ϕ	Angle entre le plan de la lentille et le plan image

TABLEAU 4.9 – Définition des paramètres utilisés pour décrire les équations d'un Lidar Scheimpflug.

La figure 4.18 montre la résolution spatiale obtenue en fonction de la distance sondée pour une configuration Lidar Scheimpflug dont les paramètres sont donnés dans le tableau 4.10.

Variable	Définition
l_{det}	5 cm
l_{pix}	200 μm
f	75 cm
D	100 cm
b	75 cm
α	45°
γ	1,352°
ϕ_{tel}	20 cm
λ	1,55 μm
$P_{émise}$	60 W

TABLEAU 4.10 – Valeurs des paramètres utilisés pour simuler les performances d'un Lidar Scheimpflug.

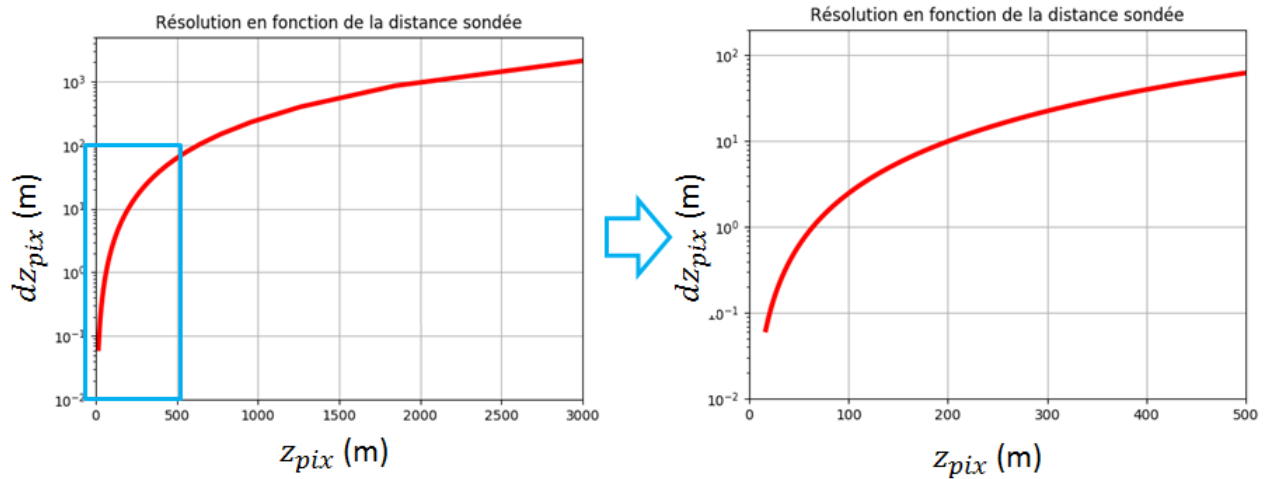


FIGURE 4.18 – Simulation numérique de la résolution spatiale d’un Lidar Scheimpflug en fonction de la distance sondée.

La puissance récoltée pour chaque tranche d’atmosphère sondée dépend de la distance sondée. Puisque la résolution spatiale décroît avec la distance sondée, la puissance récoltée sur chaque pixel de la barrette CCD est quasiment constante en fonction le long de la trajectoire du laser. La figure 4.19 représente l’évolution de la puissance récoltée en fonction de la distance sondée pour les paramètres du tableau 4.10.

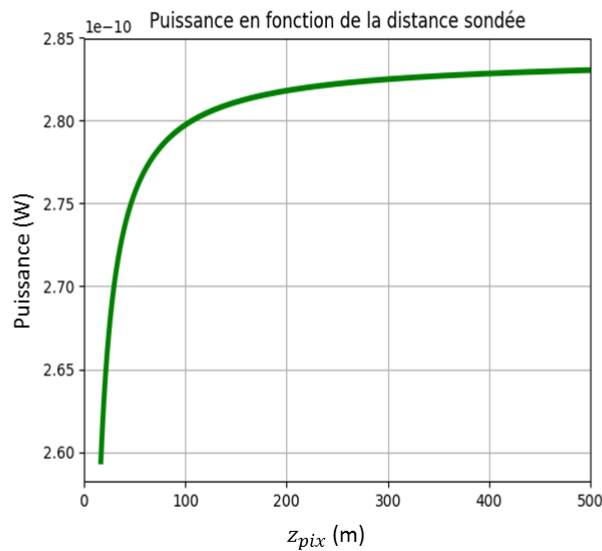


FIGURE 4.19 – Simulation numérique représentant la puissance récoltée sur les pixels de la barette CCD en fonction de la distance sondée.

Afin d’obtenir sur chaque pixel un signal construisant un interférogramme exploitable il est nécessaire que chaque pixel de la barrette CCD ne reçoive pas simultanément du signal provenant à la fois d’une paire d’impulsions notée p_n dont le délai associé vaut δ_n et du signal provenant d’une autre paire d’impulsions notée p_m dont le délai associé est

différent et vaut δ_m . Si tel est le cas le signal enregistré par le pixel sera alors une superposition d'interférogrammes et l'information sera alors brouillée. Afin d'éviter cette superposition il est nécessaire d'utiliser un pulse picker, afin que la distance d'ambiguïté soit supérieure à la plus grande distance imagée par les pixels de la barrette CCD. Autrement dit il est nécessaire que la distance d'ambiguïté soit supérieure à la plus grande distance résolue par le système optique :

$$L_{ambiguïté} > dz(z_{pix}) \quad (4.29)$$

Le tableau 4.11 compare la durée d'acquisition d'un interférogramme complet par la méthode de localisation des impulsions par leur temps de vol et par la méthode utilisant la configuration d'imagerie Scheimpflug.

Paramètres	TOF	Configuration Scheimpflug
Portée de la mesure	1 km	1 km
Résolution spatiale	Constante (3 m)	Variable [0,1 - 200] m
Distance d'ambiguïté	1 km	200 m
Temps d'acquisition ($\Delta v = 1 \text{ nm}$)	9 s	0,35 s

TABLEAU 4.11 – Comparaison de la durée d'acquisition d'un interférogramme complet avec les deux méthodes présentées : localisation des impulsions par leur temps de vol (en anglais Time Of Flight : TOF) et configuration d'imagerie Scheimpflug. La seconde méthode permet de lever légèrement la contrainte sur la distance d'ambiguïté et donc de réduire la durée d'acquisition.

Limitations

Tout comme la méthode utilisant un pulse picker, la puissance des lasers femtoseconde peigne de fréquences est une limitation. Cependant ici la puissance collectée ne décroît pas en fonction de la portée c'est la résolution spatiale qui se dégrade. En configuration Scheimpflug une barrette CCD est nécessaire pour enregistrer les informations de toute la ligne de visée du laser en même temps. Même si il est nécessaire d'utiliser un pulse picker afin de réduire la fréquence d'émission des impulsions ce qui a pour conséquence d'augmenter la durée d'acquisition d'un interférogramme complet, la contrainte sur la distance d'ambiguïté imposée par la configuration Scheimpflug est moins exigeante que celle imposée par la méthode utilisant uniquement un pulse picker. En utilisant un pulse picker il est nécessaire que la distance d'ambiguïté soit supérieure à la portée des mesures alors qu'en utilisant la configuration d'imagerie Scheimpflug il est nécessaire que la distance d'ambiguïté soit supérieure à la résolution spatiale. La résolution spatiale étant inférieure à la portée des mesures, la distance d'ambiguïté nécessaire en configuration Scheimpflug est donc plus faible.

La principale contrainte de la méthode Scheimpflug est la bande passante nécessaire aux pixels de la barrette CCD pour enregistrer des interférogrammes. Par exemple pour une résolution spatiale inférieure ou égale à 150 m il est nécessaire de réduire la fréquence d'émission des impulsions d'un facteur 100 ainsi la distance d'ambiguïté vaut 150 m (distance d'ambiguïté à 100 MHz = 1,5 m, distance d'ambiguïté à 1 MHz = 150 m). La nouvelle fréquence d'émission des impulsions vaut donc $100 \text{ MHz} \times 10^{-2}$ soit 1 MHz. L'interférogramme est alors composé de fréquences appartenant à la gamme $[0; \frac{f_{rep}}{2}]$. C'est à dire des fréquences allant jusque 500 kHz, il est donc nécessaire que la bande passante des

pixels de la barrette CCD soit supérieure ou égale à 1 MHz. Actuellement il n'est pas possible d'obtenir une barrette CCD dont la bande passante des pixels atteigne 1 MHz. Toutes les configurations du système d'imagerie Scheimpflug ne sont donc pas permises. Il faudra donc se tourner vers une barrette de photodiode où la bande passante (atteignant facilement le GHz) n'est plus une limitation.

4.3 Conclusion

Dans ce chapitre on s'est intéressé aux mesures Lidar IPDA et Dial utilisant non plus un miroir ou un rétro réflecteur comme au chapitre 3 pour renvoyer la lumière mais une cible dure diffusante ou bien la rétrodiffusion sur les aérosols. La mesure Lidar IPDA réalisée à très courte portée (25 cm) nous a permis d'appréhender d'éventuels effets de Speckle liés à des mesures DCS en fonction de la configuration géométrique du système d'émission réception du faisceau laser ainsi que le type de cible. Ce sujet n'a jamais été traité dans la littérature des mesures DCS. Même si notre système DCS ne permet pas actuellement de réaliser des mesures Lidar IPDA permettant de calculer une concentration intégrée de gaz, la mesure réalisée à très courte portée nous a permis de vérifier l'équation Lidar IPDA et de calculer la puissance collectée par un télescope en fonction du type de cible utilisée pour renvoyer le signal à différentes distances cible-télescope.

On s'est également basé sur la littérature, notamment un article du NIST pour déterminer des portées de mesure Lidar IPDA en DCS avec des peignes entièrement stabilisés permettant de moyenniser les acquisitions. Actuellement la puissance moyenne la plus élevée jamais démontrée avec un laser femtoseconde peigne de fréquences Erbium (60 W sur $\Delta\nu = 500$ nm) permet d'atteindre des faibles portées (à peine 100 m) lorsque la largeur spectrale des lasers $\Delta\nu$ est de 500 nm. Un compromis entre portée des mesures et largeur spectrale d'émission permettra centrée sur la zone d'intérêt de l'espèce à mesurer permettrait de réaliser des mesures sur plusieurs centaines de mètres.

Nous avons exposé la problématique de la haute cadence d'émission des lasers femtosecondes peigne de fréquences ne permettant pas de réaliser de mesures Dial classiques (rétrodiffusion sur des aérosols) en utilisant la localisation des impulsions par leur temps de vol. Nous avons proposé deux solutions pour contourner cette difficulté. Une première solution uniquement basée sur l'utilisation d'un pulse picker, l'autre basée sur l'ajout d'une configuration d'imagerie Scheimpflug. Ces deux méthodes semblent bien adaptées pour contourner le problème de la haute cadence d'émission cependant la démonstration expérimentale de ces méthodes reste actuellement difficile puisque le signal récolté par rétrodiffusion sur des aérosols est très faible $\sim 10^{-10}$ W. De plus la durée d'acquisition d'un interférogramme est trop longue pour réaliser des applications atmosphériques.

4.4 Références

Ai, X., R. Nock, J. G. Rarity et N. Dahnoun. 2011, «High-resolution random-modulation cw lidar», *Applied optics*, vol. 50, n° 22, p. 4478–4488. [123](#)

Amann, M.-C., T. M. Bosch, M. Lescure, R. A. Myllylae et M. Rioux. 2001, «Laser ranging : a critical review of unusual techniques for distance measurement», *Optical engineering*, vol. 40. [123](#)

Balling, B. L. et M. A. Marciniak. 2009, «Comparison of several surfaces for use as mirror

- brdf standard», dans *Infrared Spaceborn Remote Sensing and Instrumentation XVII*, vol. 7453, International Society for Optics and Photonics, p. 745300. [110](#), [111](#), [112](#)
- Boudreau, S., S. Levasseur, C. Perilla, S. Roy et J. Genest. 2013, «Chemical detection with hyperspectral lidar using dual frequency combs», *Optics express*, vol. 21, n° 6, p. 7411–7418. [125](#), [126](#)
- Brede, B., A. Lau, H. Bartholomeus et L. Kooistra. 2017, «Comparing riegli ricopeter uav lidar derived canopy height and dbh with terrestrial lidar», *Sensors*, vol. 17, n° 10, p. 2371. [122](#)
- Ehret, G., C. Kiemle, M. Wirth, A. Amediek, A. Fix et S. Houweling. 2008, «Space-borne remote sensing of co₂, ch₄, and n₂o by integrated path differential absorption lidar : a sensitivity analysis», *Applied Physics B*, vol. 90, n° 3-4, p. 593–608. [108](#)
- Gaida, C., T. Heuermann, M. Gebhardt, E. Shestaev, T. P. Butler, D. Gerz, N. Lilienfein, P. Sulzer, M. Fischer, R. Holzwarth et collab.. 2018, «High-power frequency comb at 2 μm wavelength emitted by a tm-doped fiber laser system», *Optics letters*, vol. 43, n° 21, p. 5178–5181. [118](#), [120](#), [121](#)
- Godbout, M., J.-D. Deschênes et J. Genest. 2010, «Spectrally resolved laser ranging with frequency combs», *Optics express*, vol. 18, n° 15, p. 15 981–15 989. [123](#)
- Goodman, J. W. 1976, «Some fundamental properties of speckle», *JOSA*, vol. 66, n° 11, p. 1145–1150. [113](#)
- Goodman, J. W. 2007, *Speckle phenomena in optics : theory and applications*, Roberts and Company Publishers. [114](#)
- Hébert, P. J. et F. Lemaître. 2019, «Scale : validations and prospects for a novel type of sounding lidar using short frequency combs», dans *International Conference on Space Optics ICSO 2018*, vol. 11180, International Society for Optics and Photonics, p. 111801T. [119](#)
- Kavaya, M. J., R. T. Menzies, D. A. Haner, U. P. Oppenheim et P. H. Flamant. 1983, «Target reflectance measurements for calibration of lidar atmospheric backscatter data», *Applied optics*, vol. 22, n° 17, p. 2619–2628. [109](#)
- Mei, L. et M. Brydegaard. 2015a, «Atmospheric aerosol monitoring by an elastic scheimpflug lidar system», *Optics express*, vol. 23, n° 24, p. A1613–A1628. [129](#)
- Mei, L. et M. Brydegaard. 2015b, «Continuous-wave differential absorption lidar», *Laser & Photonics Reviews*, vol. 9, n° 6, p. 629–636. [129](#)
- Nagasawa, C., M. Abo, H. Yamamoto et O. Uchino. 1990, «Random modulation cw lidar using new random sequence», *Applied optics*, vol. 29, n° 10, p. 1466–1470. [123](#)
- Piracha, M. U., D. Nguyen, D. Mandridis, T. Yilmaz, I. Ozdur, S. Ozharar et P. J. Delfyett. 2010, «Range resolved lidar for long distance ranging with sub-millimeter resolution», *Optics express*, vol. 18, n° 7, p. 7184–7189. [123](#)
- Rieker, G. B., F. R. Giorgetta, W. C. Swann, J. Kofler, A. M. Zolot, L. C. Sinclair, E. Baumann, C. Cromer, G. Petron, C. Sweeney et collab.. 2014, «Frequency comb-based remote sensing of greenhouse gases over kilometer air paths», *Optica*, vol. 1, n° 5, p. 290–298. [120](#)

- Scheimpflug, T. 1904, «Improved method and apparatus for the systematic alteration or distortion of plane pictures and images by means of lenses and mirrors for photography and for other purposes», *GB patent*, vol. 1196. [128](#)
- Takeuchi, N., H. Baba, K. Sakurai et T. Ueno. 1986, «Diode-laser random-modulation cw lidar», *Applied optics*, vol. 25, n° 1, p. 63–67. [123](#)
- Takeuchi, N., N. Sugimoto, H. Baba et K. Sakurai. 1983, «Random modulation cw lidar», *Applied optics*, vol. 22, n° 9, p. 1382–1386. [123](#)
- Trisnadi, J. I. 2002, «Speckle contrast reduction in laser projection displays», dans *Projection Displays VIII*, vol. 4657, International Society for Optics and Photonics, p. 131–137. [116](#)
- Ussyshkin, V. et L. Theriault. 2011, «Airborne lidar : advances in discrete return technology for 3d vegetation mapping», *Remote sensing*, vol. 3, n° 3, p. 416–434. [122](#)
- Wang, D., S. Liang, T. He et Y. Yu. 2013, «Direct estimation of land surface albedo from viirs data : Algorithm improvement and preliminary validation», *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, vol. 118, n° 22, p. 12–577. [109](#)
- Weitkamp, C. 2006, *Lidar : range-resolved optical remote sensing of the atmosphere*, vol. 102, Springer Science & Business. [121](#)
- Zieliński, M., D. Chaberski, M. Kowalski, R. Frankowski et S. Grzelak. 2004, «High-resolution time-interval measuring system implemented in single fpga device», *Measurement*, vol. 35, n° 3, p. 311–317. [122](#)

Chapitre 5

Conclusion générale

Résumé des résultats obtenus

La caractérisation du potentiel et des limitations de notre système DCS nous a permis de mettre en évidence les différentes sources de biais : la stabilité des degrés de liberté des lasers peigne de fréquences, la prise en compte de la fonction d'appareil, l'étalonnage en nombre d'onde et la détermination de la ligne de base des spectres d'absorption. Cette caractérisation nous a conduit à déterminer un protocole de mesure qui consiste à calculer une concentration du gaz sondé à partir de chaque interférogramme et à moyennner les concentrations obtenues. Nous avons également estimé l'erreur associée à ce protocole. Nous avons réalisé une mesure de concentration de gaz intégrée dans une cellule d'acétylène et comparé la valeur obtenue à l'aide d'une autre méthode de spectrométrie la TDLAS. Cette cellule est un milieu stable et les transmissions des raies d'absorption sont inférieures à 50 % ce qui fournit un excellent RSB. L'écart entre la mesure de concentration attendue fournie par la TDLAS et la valeur obtenue par DCS est supérieure à l'écart estimé. L'erreur sur la concentration est de 7% au lieu de 1%, l'origine de cette différence provient du bruit de détection et de l'étalonnage en nombre d'onde de la mesure DCS qui génère une erreur systématique.

Dans le chapitre suivant nous avons réalisé des mesures de concentration de gaz intégrées en espace libre, en utilisant un miroir ou un rétro-rélecteur pour renvoyer le signal. La première mise en œuvre est faite à courte portée (27 m) nous permettant de mesurer une concentration intégrée de vapeur d'eau que nous avons comparée à des mesures réalisées avec l'instrument Picarro. L'écart entre la valeur attendue fournie par l'instrument Picarro et la valeur obtenue par notre système DCS est d'environ 17% et s'avère constant. Cet écart supérieur à celui estimé dans le chapitre 2 semble avoir plusieurs origines :

- Le bruit de détection qui génère une erreur systématique lors de l'étalonnage.
- Un RSB plus faible que dans les expériences en cellule de gaz puisque ici la raie ayant la plus forte absorption n'est que de 15 %.
- Le manque d'une voie de référence pour obtenir la ligne de base des spectres d'absorption.

Ensuite nous avons réalisé des mesures sur une plus grande distance (140 m) permettant de réduire la transmission des raies d'absorption du CO₂ ce qui nous a permis de réaliser une détection multi-espèces de deux gaz à effet de serre : la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone. L'écart entre la concentration attendue pour la vapeur d'eau fournie par les données du SIRTa et la valeur mesurée par notre système DCS est d'environ 44% ce qui est supérieur à l'écart attendu déterminé dans le chapitre 2. Les différentes origines de cet

écart semblent être :

- Le bruit de détection qui génère une erreur systématique lors de l'étalonnage.
- Un RSB plus faible que dans la mesure sur 27 m dû à un mauvais recouvrement entre le diamètre du faisceau lumineux dans le plan du télescope et le diamètre du télescope. Cette détérioration du RSB est critique pour l'étape de l'étalonnage.
- Le manque d'une voie de référence pour obtenir la ligne de base des spectres d'absorption.

Concernant la mesure de concentration de dioxyde de carbone, les raies d'absorption ayant une transmission d'environ 98%, nous avons moyenné les spectres d'absorption enregistrés et appliqué une correction post-acquisition des instabilités du paramètre Δf_0 . L'écart entre la concentration attendue d'environ 400 ppm et la concentration mesurée par DCS est en accord avec l'écart déterminé dans le chapitre 2 à savoir une sous estimation de la concentration de 25% dûe à la correction partielle des fluctuations de Δf_0 .

Dans le dernier chapitre nous avons appréhender d'éventuels effets de Speckle liés à des mesures DCS en fonction de la configuration géométrique du système d'émission réception du faisceau laser ainsi que le type de cible. Ce sujet n'a jamais été traité dans la littérature des mesures DCS. Par la suite nous avons estimé à partir de notre mesure sur cible diffusante et à partir de la littérature les différentes portées atteignables en fonction du type de cible utilisé pour renvoyer la lumière vers le télescope. La puissance optique atteignable pour un peigne de fréquences s'étalant sur plusieurs centaines de nm est aujourd'hui trop faible pour réaliser des mesures sur cible diffusante avec une portée supérieure à quelques mètres. En revanche un compromis entre largeur spectrale des sources laser et portée de mesure permet d'atteindre des portées de plusieurs centaines de mètres.

Nous avons terminé en évoquant le problème de la haute cadence des lasers peigne de fréquences qui ne permet pas d'utiliser la méthode traditionnelle de localisation des impulsions par leur temps de vol afin de bénéficier d'une résolution spatiale. Nous avons proposé deux concepts envisagés pour contourner cette difficulté : l'utilisation d'un pulse picker pour réduire la cadence d'émission des lasers ou l'utilisation d'une configuration Scheimpflug. Ces deux méthodes semblent bien adaptées pour contourner le problème de la haute cadence d'émission cependant elles ont toutes les deux le défaut d'augmenter la durée d'acquisition du système de DCS qui peut être critique pour des applications atmosphériques. La démonstration expérimentale de ces méthodes reste actuellement difficile puisque le signal récolté par rétrodiffusion sur des aérosols est très faible $\sim 10^{-10}$ W et nécessite une très forte amplification telle que celle réalisée par Gaida et al.

Perspectives

Il est essentiel de travailler avec des lasers femtosecondes peigne de fréquences dont les paramètres Δf_0 et Δf_{rep} sont entièrement stabilisés dans le but de bénéficier des avantages de la méthode DCS à savoir :

- Augmenter le temps d'intégration des acquisitions et augmenter ainsi le RSB des spectres d'absorption, le système devient alors plus sensible.
- Bénéficier de la pleine résolution de la méthode c'est à dire une résolution égale à la fréquence de répétition des lasers.

- Profiter ainsi de l'auto-étalonnage en nombre d'onde grâce à la résolution spectrale des dents des peignes et éviter ainsi les erreurs systématiques apparaissant à l'étape de l'étalonnage.

La stabilisation permettrait de réaliser des mesures de concentration plus précises qu'actuellement en diminuant les erreurs systématiques liées au RSB des spectres d'absorption et à leur étalonnage.

Une fois les mesures utilisant un miroir comme support retour de la lumière bien maîtrisées il est essentiel de s'intéresser aux mesures qui utilisent une cible diffusante comme support retour. Il serait intéressant d'étudier plus en détails les effets de speckle sur le spectre obtenu par mesure DCS en réalisant des mesures exploratoires sur cible diffusante afin de mettre en évidence les modulations d'amplitude et ainsi mieux comprendre les difficultés supplémentaires apportées dans ce cas de figure.

L'étape d'après est l'utilisation des aérosols comme support retour de la lumière. Pour s'assurer de la possibilité de fonctionnement des deux méthodes proposées dans ce manuscrit il faudrait les mettre en pratique sur quelques mètres. Cependant au vu de la faible puissance optique du signal retourné par les aérosols il est nécessaire de passer par une étape d'amplification laser.

Annexe A

Annexes

Sommaire

A.1 Propagation des impulsions femtosecondes	I
A.1.1 Fibre monomode à maintien de polarisation	I
A.1.2 Coupleur monomode à maintien de polarisation	IV
A.2 Caractérisation des détecteurs	VI
A.2.1 montage expérimental	VI
A.2.2 Saturation	VI
A.2.3 Effets de bords	VII
A.2.4 Réponses fréquentielles	VIII
A.3 Non-linéarité du détecteur	IX
A.4 Mesures dans le domaine visible	IX
A.4.1 Génération d'un peigne de fréquences dans le visible par généra- tion de seconde harmonique	X
A.4.2 Application à la mesure de dioxygène O ₂ en espace libre	XI
A.5 Références	XIII

A.1 Propagation des impulsions femtosecondes

A.1.1 Fibre monomode à maintien de polarisation

La propagation des impulsions femtoseconde dans un milieu dispersif comme une fibre optique modifie la phase spectrale du champs électrique $\varphi(\omega)$ qui n'est pas responsable de modification du profil spectral. La propagation dans un milieu dispersif est un effet linéaire, la phase spectrale évolue le long de l'axe de propagation z selon l'équation :

$$\varphi(\omega) = k(\omega)z$$

Habituellement on effectue un développement limité du vecteur d'onde :

$$k(\omega) = k_0 + k_0^1 \Delta\omega + \frac{1}{2} k_0^2 \Delta\omega^2$$

Avec k_0^n la $n^{\text{ème}}$ dérivé du vecteur d'onde prise en la valeur ω_0 : $k_0^n = \frac{d^n k(\omega_0)}{d\omega^n}$. Plus l'impulsion est courte plus élevé devra être l'ordre du développement limité. Différentes contributions sont présentes.

$$\varphi_0 = k_0 z = \frac{n\omega_0}{c}$$

Avec $\frac{c}{n_0}$ la vitesse de phase notée v_ϕ . φ_0 est une phase constante n'entraînant pas de modification dans le domaine temporel comme illustrée sur la Figure A.1.

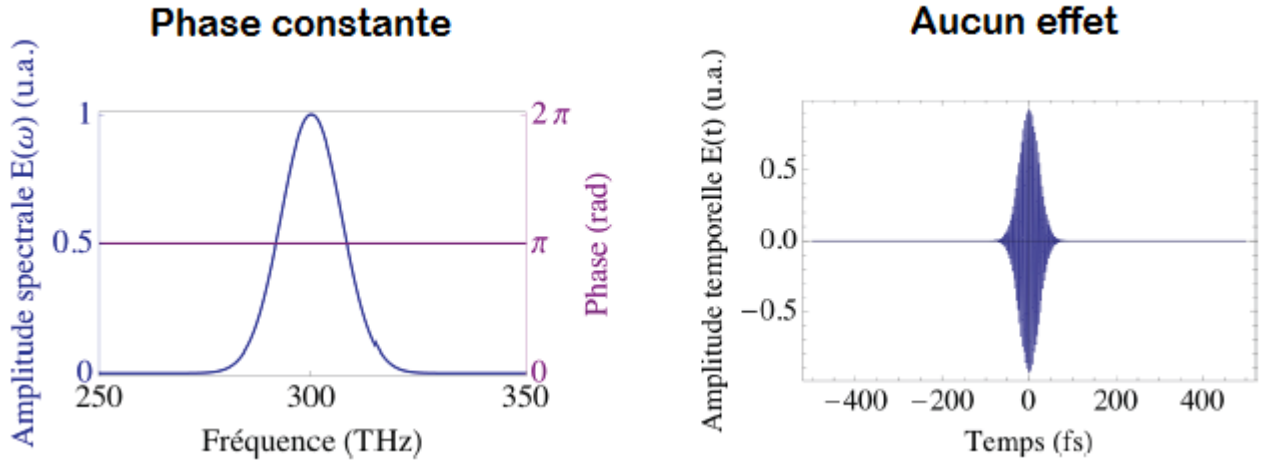


FIGURE A.1 – Phase constante, pas de modification dans le domaine temporel.

$$\varphi_1 = k_0^1 z = \frac{dk(\omega = \omega_0)}{d\omega} z$$

Avec $\frac{dk(\omega = \omega_0)}{d\omega}$ la vitesse de groupe notée $\frac{1}{v_g}$. φ_1 génère un décalage temporel de l'impulsion, elle est alors retardée de la valeur φ_1 comme illustrée sur la Figure A.2.

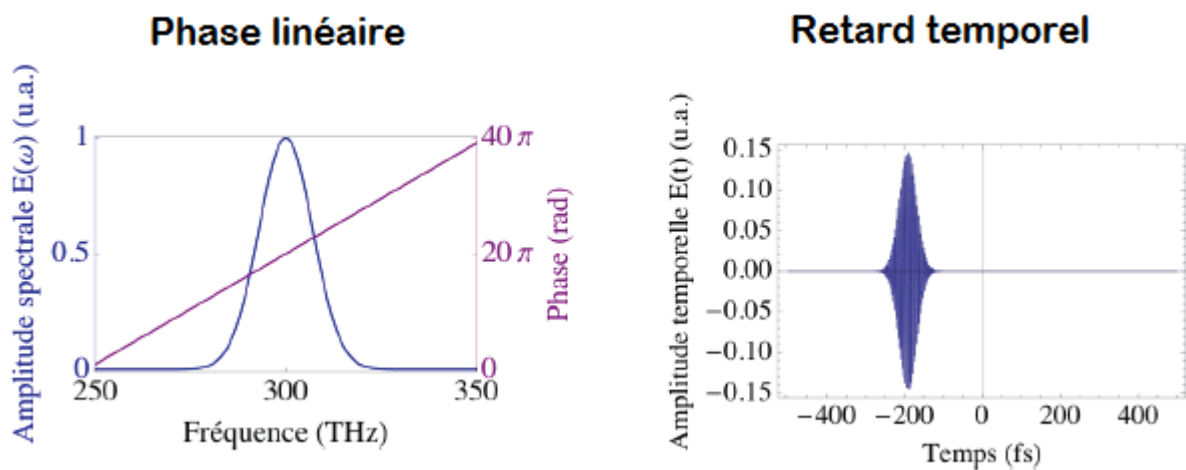


FIGURE A.2 – Phase linéaire, induit un retard de l'impulsion dans le domaine temporel.

$$\varphi_2 = \frac{d^2 k(\omega = \omega_0)}{d\omega^2} z$$

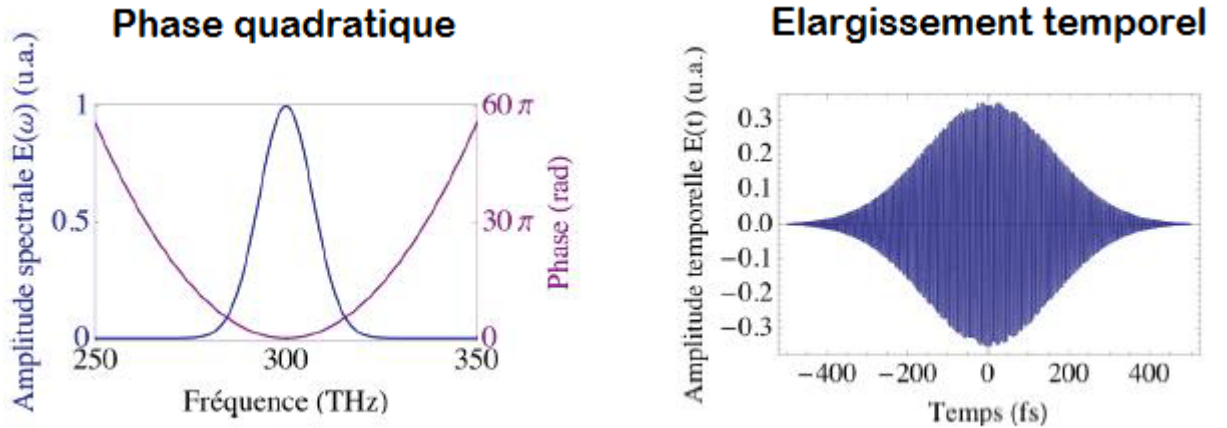


FIGURE A.3 – Phase quadratique, induit un élargissement de l'impulsion dans le domaine temporel.

Correspond à la dispersion des vitesses de groupes notée GVD (Group Velocity Dispersion). Cette phase spectrale parabolique induit un élargissement temporel des impulsions comme illustré sur la Figure A.3.

Pour une impulsion gaussienne, le champs spectral gaussien $E(\omega)$ s'écrit :

$$E(\omega) = \text{TF}\{E(t)\} = E_0 \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2\Delta\omega_0^2}\right)$$

Avec E_0 l'amplitude spectrale, ω_0 la pulsation de la porteuse et $\Delta\omega_0$ la grandeur liée à la largeur à mi hauteur de l'impulsion gaussienne $\text{FWHM} = 2\sqrt{\ln 2}\Delta\omega_0$. Par abus de langage on dans la suite on considère la largeur à mi hauteur (FWHM) comme étant l'écart type de l'enveloppe gaussienne. La largeur temporelle de l'impulsion gaussienne après propagation dans un milieu dispersif s'écrit :

$$\Delta t(z) = (\Delta t(0))^2 + \left(\frac{d^2 k(\omega_0)}{d\omega^2}\right)^2 \times \Delta\omega_0^2 z^2)^{1/2}$$

Avec $\frac{d^2 k(\omega_0)}{d\omega^2} = k_0^2$ le coefficient GVD, $\Delta t(0)$ la largeur temporelle initiale de l'impulsion avant propagation et $\Delta\omega_0$ la largeur spectrale de l'impulsion. Le paramètre de dispersion D exprimé en ps/km/nm est parfois utilisé à la place du coefficient GVD notamment dans les fibres.

$$D = \frac{d}{d\lambda} \left(\frac{1}{v_g}\right) = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} k_0^2$$

On peut définir la grandeur critique L_D comme :

$$L_D = \frac{T_0^2}{k_0^2}$$

L_D est la longueur à partir de laquelle la dispersion aura un effet sensible sur la largeur d'impulsion initiale. Plus l'impulsion est brève et ou plus la dispersion est élevée, plus la longueur critique sera courte. D'après [ASNIS et collab., 2010], la transmission d'une impulsion femtoseconde au travers une fibre optique monomode se traduit à la fois dans le domaine temporel et spectral. Un élargissement temporel est dû à la dispersion et un élargissement spectral à cause d'effet non linéaire comme l'automodulation de phase.

A.1.2 Coupleur monomode à maintien de polarisation

Les mesures de dual comb spectroscopy nécessitent de superposer les faisceaux lumineux issus des deux lasers peignes de fréquences. Soit les faisceaux sont couplés au travers d'une lame ou cube 50/50 en espace libre, soit en utilisant un coupleur fibré (Wavelength Division Multiplexing). A priori il n'y a pas de différence à utiliser l'une ou l'autre de ces méthodes. Expérimentalement nous avons utilisés un coupleur fibré. Nous avons constaté que l'enveloppe des spectre de DCS obtenu près passage dans le coupleur variait fortement en fonction de la puissance injectée. Le schéma du montage expérimentale est représentée sur la figure A.4. La figure A.5 représente trois spectres DCS correspondant

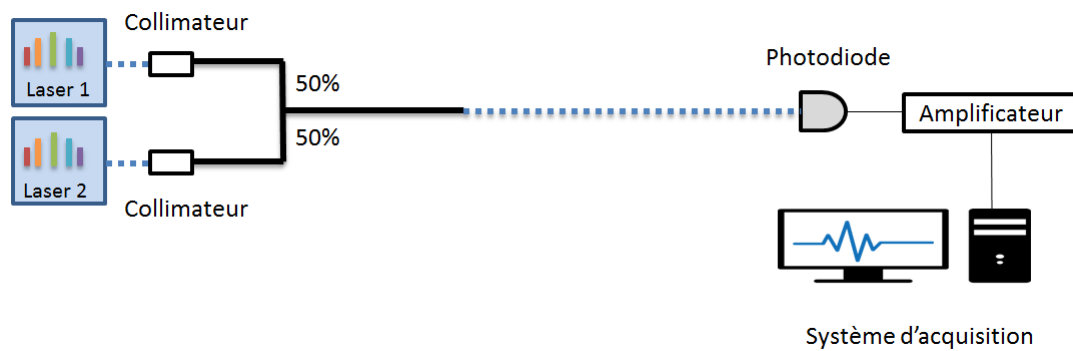


FIGURE A.4 – Schéma du montage expérimental permettant de mesurer des spectres DCS avec un coupleur fibré monomode à maintien de polarisation.

à trois différentes puissances optiques injectée dans le coupleur fibré. Les trois spectres sont normalisés. Pour une puissance injectée autour de 10-15 mW on observe une modulation sinusoïdale du spectre sur ses plus grandes longueurs d'onde. En augmentant la puissance à 25 mW les modulations disparaissent. Les mêmes effets sont visibles lorsque

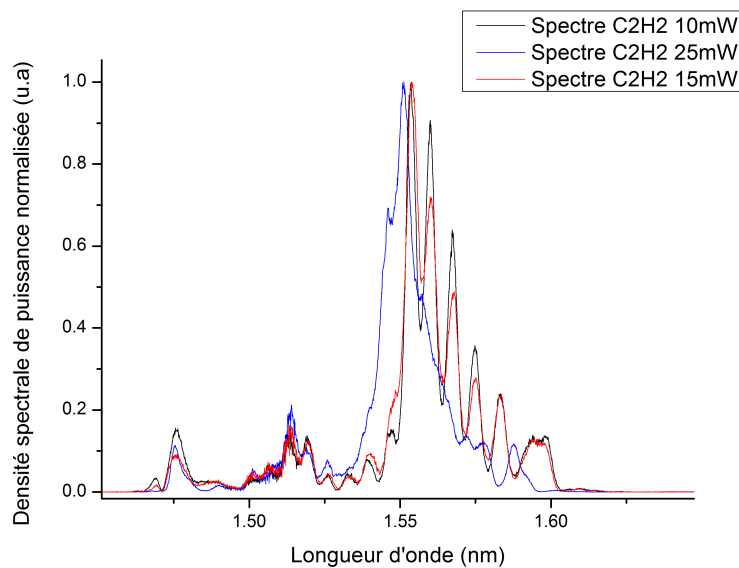


FIGURE A.5 – Spectres issues de mesures DCS, la puissance injectée correspond à 10, 15 et 25 mW.

l'on injecte le faisceau d'un seul peigne de fréquence dans le coupleur et qu'on analyse la sortie à l'analyseur de spectre optique. La figure A.6 représente sept spectres enregistré pour différentes puissances optiques injectées dans le coupleur. Plus la puissance aug-

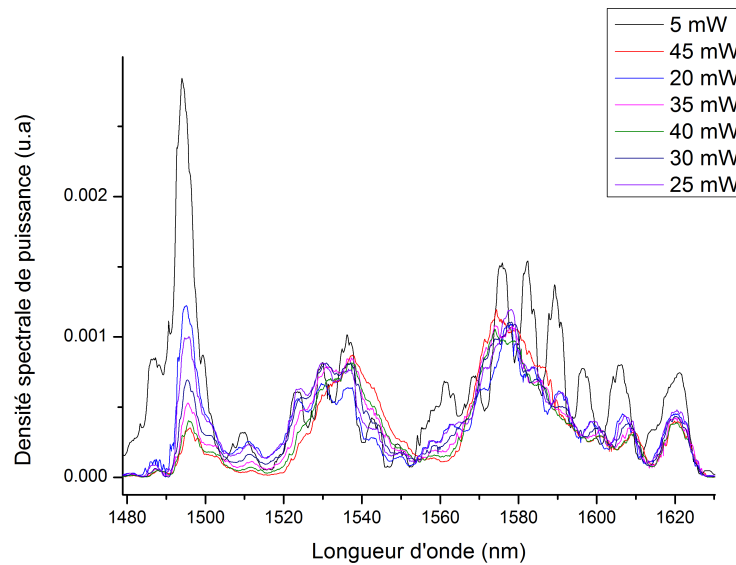


FIGURE A.6 – Spectres analyseur de spectre optique en fonction de la puissance injectée dans le coupleur.

mente à l'entrée du coupleur plus la densité spectrale de puissance se transfère des basses longueurs d'onde vers les hautes longueurs d'onde du spectre. La modulation de la puissance optique injectée se fait en désalignant le faisceau lumineux avec l'entrée du collimateur. La modulation de la densité spectrale de puissance pourrait être expliquée par une dispersion angulaire des longueurs d'onde lors d'un passage dans une optique. Cette dispersion angulaire plus le défaut d'alignement du faisceau dans le collimateur agirait comme un filtre spectral. Cependant lorsqu'on applique cette méthode à un couplage dans une fibre de type SMF28 à maintien de polarisation à la place du coupleur, ces effets ne sont plus visibles, le spectre ne subit plus de distorsion en fonction de la puissance injectée. Nous avons donc décidé de coupler nos deux lasers peignes de fréquences dans une fibre de type SMF28 à maintien de polarisation sans utiliser de coupleur fibré. Nous avons utilisé un cube 50/50 pour superposer les faisceaux lasers. Le désavantage du cube 50/50 par rapport au coupleur fibré est la perte de 50% de la puissance optique totale. Le schéma du montage utilisé est représenté sur la figure A.7. L'origine des fluctuations constatées avec le coupleur sont : [comparer les diamètres des fibres pour déterminer si les effets non linéaires peuvent être plus importants dans le coupleur que dans la SMF28]

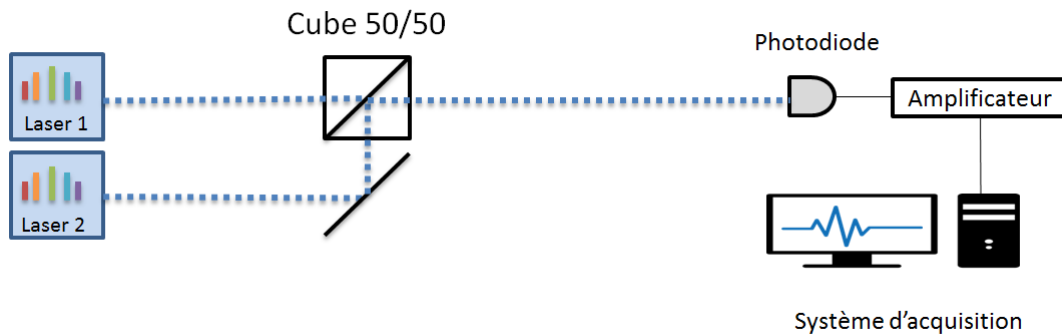


FIGURE A.7 – Schéma du montage de couplage des deux lasers peignes de fréquences dans une fibre optique SMF 28 à l'aide d'un cube 50/50.

A.2 Caractérisation des détecteurs

Nous caractérisons nos deux modèles de photodiode, la Newport 1623 et la MenloSystem FPD 310. Nous vérifions la puissance de saturation, les effets de bords et la réponse fréquentielle.

A.2.1 montage expérimental

Pour réaliser ces tests nous utilisons une diode laser émettant à 6490cm^{-1} (1540 nm) et un modulateur électro-optique de type Mach Zehnder permettant de moduler temporellement l'émission de la diode laser. Des densités optiques sont utilisées suivant la puissance optique souhaitée et nous utilisons une lentille convergente de 50 mm pour focaliser le faisceau lumineux sur la pastille de notre détecteur monté sur platine de translation permettant d'ajuster la position de la photodiode suivant les 3 axes. Une photo du montage est représenté en A.8.

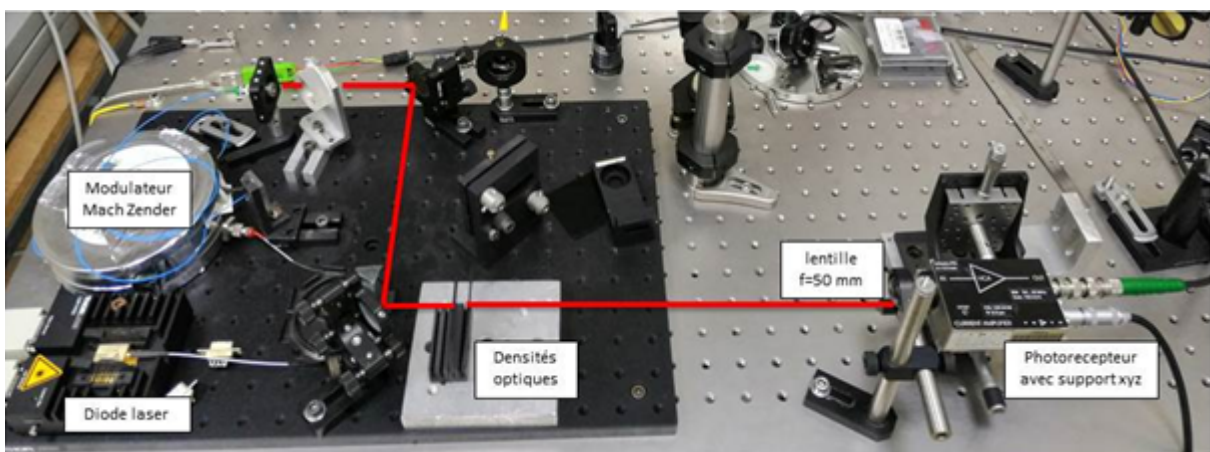


FIGURE A.8 – Photo du montage expérimental permettant de réaliser les tests de saturation, effets de bords et réponse fréquentielle de nos détecteurs.

A.2.2 Saturation

La puissance de saturation de nos deux détecteurs est mesurée. Le principe de la mesure consiste à envoyer sur la photodiode le faisceau lumineux issue de la diode laser.

Le faisceau lumineux est au préalable modulé temporellement à l'aide d'un modulateur électro-optique de type Mach-Zehnder. Le principe du MachZehnder est de séparer sur deux bras le signal lumineux d'entrée et de le recombina après introduction d'un déphasage sur l'un des deux bras permettant ainsi de moduler l'intensité lumineuse sortante. La modulation choisie est sinusoïdale. Le critère de saturation choisie est l'apparition d'un plateau au sommet de la sinusoïde. La puissance de la diode laser est alors augmentée jusqu'à apparition du critère comme illustré sur la figure A.9. La puissance de saturation

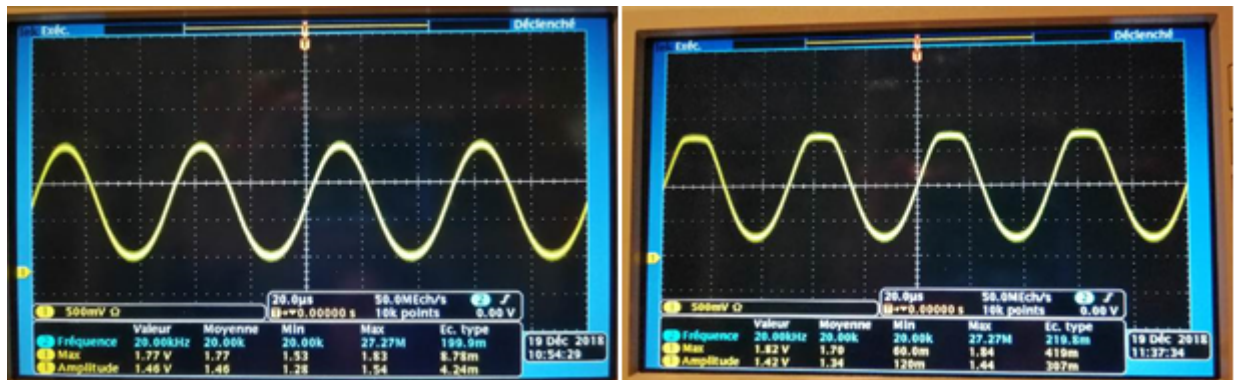


FIGURE A.9 – Critère de saturation de la photodiode.

du détecteur MenloSystem FPD 310 est mesurée à 4,6 mW.

A.2.3 Effets de bords

Les effets de bords se manifestent lorsque le recouvrement entre le faisceau lumineux arrivant sur la photodiode est la pastille active du détecteur n'est pas optimum. C'est à dire que le faisceau lumineux déborde de la pastille et cela se traduit en une déformation du photo-courant car bande passante du détecteur se réduit. Les effets de bords peuvent être repérés expérimentalement en envoyant des impulsions rectangulaires sur la photodiode. Il faut s'assurer que le diamètre du faisceau lumineux est inférieur au diamètre de la photodiode. Il s'agit ensuite de balayer la position du faisceau lumineux dans le plan du détecteur afin d'obtenir un mauvais recouvrement. La réduction de la bande passante se traduit par une déformation du photo-courant qui ne présente plus de modulations rectangulaires. Le principe de la détection des effets de bord est représenté sur la figure A.10. Le détecteur NewFocus 1623 présente des effets de bords en revanche le détecteur

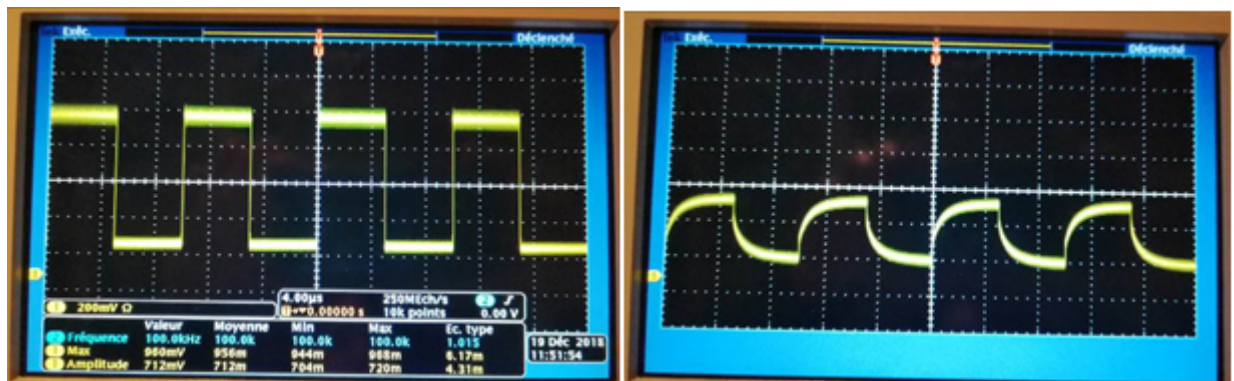


FIGURE A.10 – Détection des effets de bord par déformations des modulations rectangulaires du photo-courant.

MenloSystem FPD 310 n'a pas pu être testé car sa bande passante est comprise entre 1 MHz et 1500 MHz ce qui ne lui permet pas d'observer de formes rectangulaires majoritairement composées de basses fréquences. Pour éviter ces effets d bords il faut s'assurer du bon recouvrement entre le faisceau lumineux est le détecteur. Il faut donc placer le détecteur dans le plan focale d'une lentille. Le diamètre du faisceau dans le plan focale doit être inférieur au diamètre du détecteur et correctement centré. Si ces précautions ne sont pas prises les effets de bord ont pour conséquences de diminuer la bande passante et donc de modifier les spectres d'absorption mesurés.

A.2.4 Réponses fréquentielles

La détection des effets de bords et de ses conséquences nous amène à étudier la réponse fréquentielle de nos détecteurs. En dual comb spectroscopy nous enregistrons des interférogrammes composés d'une large bande de radio fréquences sur une large bande spectrale optique. Dans nos expériences nous utilisons deux lasers dont les bandes spectrales d'émission s'étalent sur une centaine de nanomètres autour de 1,55 μm et cadencés à 100 MHz. La différence de fréquence de répétition entre les lasers est fixée à 220 Hz nous enregistrons des interférogrammes composés de radio fréquences allant de 1 MHz à 50 MHz. Il est nécessaire que la réponse du détecteur sur cette plage de fréquences soient la plus constante possible pour ne pas déformer le spectre d'absorption. Pour étudier la réponse fréquentielle nous appliquons une modulation sinusoïdale sur puissance optique de la diode laser à l'aide du Mach Zehnder et nous mesurons la tensions crête du photocourant envoyé sur l'oscilloscope et convertie en tension. Nous effectuons cette mesure pour des modulations allant de 1 MHz à 50 MHz par pas de 5 MHz. Cependant le MEO ne module pas correctement au delà de 35 MHz. La figure A.11 représente les réponses fréquentielles de nos deux détecteurs.

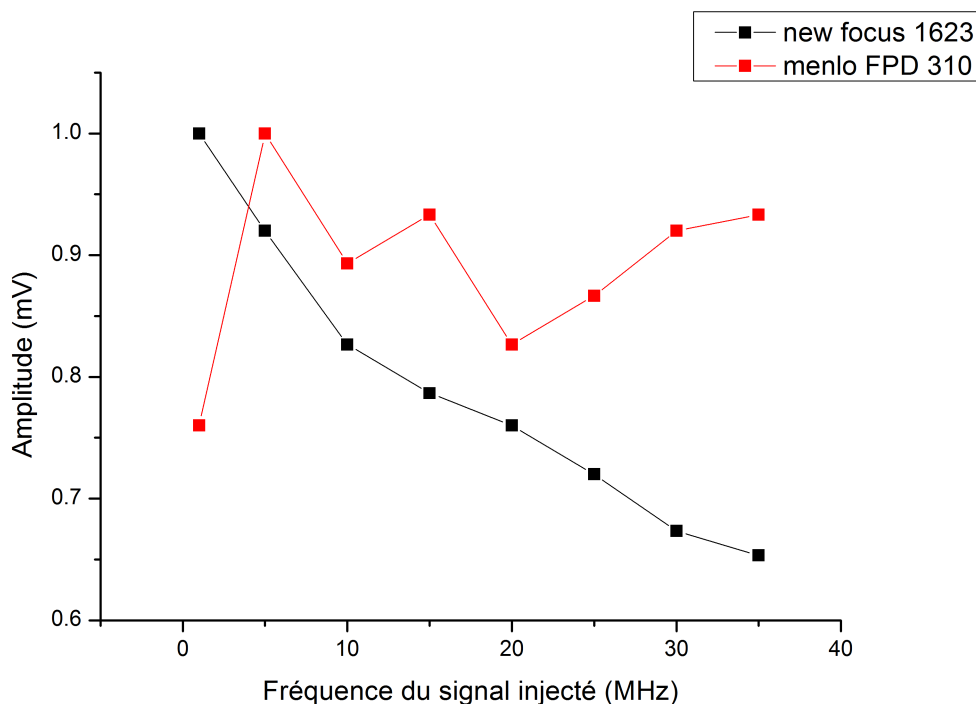


FIGURE A.11 – Réponse fréquentielle des détecteurs. En rouge le Menlo FPD310 et en noire le New Focus 1623.

A.3 Non-linéarité du détecteur

En spectroscopie de Fourier classique la quantité de signal récolté sur le détecteur peut s'écrire $I(\Delta)$ avec Δ la différence de chemin entre les deux bras de l'interféromètre. Le signal mesuré par le détecteur s'écrit

$$I = I \times R(I)$$

Avec R la sensibilité du détecteur qui dépend de la quantité de flux I incident. La sensibilité du détecteur n'est en générale pas une fonction linéaire. C'est pourquoi le signal réellement enregistré peut s'écrire [GUELACHVILI, 1986], [PALCHETTI et collab., 2002]

$$I_D(\Delta) = I(\Delta)(g_0 + g_1 I(\Delta) + g_2 I(\Delta)^2)$$

Avec g_0, g_1, g_2 les ordres zéro, premier et second de la non linéarité du détecteur. Le signal interférométrique se décompose en une partie continue notée I_c et une partie modulée notée I_m , le signal total s'écrit comme la somme de ces deux termes :

$$I(\Delta) = I_c + I_m(\Delta)$$

En injectant cette dernière formule dans l'équation précédente on obtient :

$$I_D(\Delta) = \{g_0 I_c + g_1 I_c^2 + g_2 I_c^3\} + \{g_0 + 2g_1 I_c + 3g_2 I_c^2\} I_m(\Delta) + \{g_1 + 3g_2 I_c\} I_m^2(\Delta) + g_2 I_m^3(\Delta)$$

Après un filtrage électronique la partie constante, c'est à dire le premier terme de cette équation est filtrée. Le second terme est lui proportionnel ou terme recherché I_m . Le troisième terme proportionnel à I_m^2 et le quatrième proportionnel à I_m^3 sont responsables des distorsions du spectre. Puisque $g_1 + 3g_2 I_c$ est supérieur à g_2 , le terme en I_m^2 est celui causant le plus d'effets visibles. La transformation de Fourier de I_m nous donne le spectre recherché que l'on note S en revanche celle de I_m^2 correspond au spectre recherché convolué par lui même $S \star S$. Le suréchantillonnage de l'interférogramme peut être une solution uniquement si σ_1 le début du spectre optique et σ_2 la fin du spectre optique respecte la condition suivante :

$$2\sigma_1 \geq \sigma_2$$

Cette condition est très restrictive puisque en générale le spectre RF obtenue couvre bien plus qu'une octave. Une solution existe pour annihiler le terme en I_m^2 , elle consiste à utiliser deux détecteur enregistrant le même signal interférométrique en opposition de phase et à faire la différence des signaux enregistrés par les deux voies d'acquisition. Cette méthode proposée par Guelachvili [GUELACHVILI, 1986] en 1986 est notamment utilisée dans les articles de Piqué [CHEN et collab., 2018]

A.4 Mesures dans le domaine visible

Les mesures spectroscopiques dans le proche infrarouge permettent de sonder les transitions rovibrationnelles des molécules, le domaine visible du spectre électromagnétique permet lui de sonder des transitions à plus haute énergie comme les transitions électroniques. Les lasers femtosecondes possèdent des puissances crêtes élevées et se prêtent donc parfaitement à des effets non linéaires permettant d'obtenir de nouvelles fréquences. Il est donc possible d'étendre le spectre d'un peigne de fréquences par différents effets non linéaires comme la génération de seconde harmonique (SHG).

A.4.1 Génération d'un peigne de fréquences dans le visible par génération de seconde harmonique

La génération de seconde harmonique est un effet non linéaire permettant de doubler la fréquence d'une onde électromagnétique. Dans ce processus deux photons d'énergie identiques sont absorbés par un milieu non linéaire qui ensuite émet un photon ayant la somme des deux énergies absorbés. La génération de seconde harmonique est un cas particulier de la somme de fréquences où les fréquences mises en jeu sont identiques.

$$\omega + \omega = 2\omega$$

Un peigne de fréquences centré autour de 1,55 μm permet donc d'obtenir un nouveau peigne de fréquence autour de 775 nm par SHG. Pour effectuer la SHG nous avons testé deux milieux non linéaires différents, un cristal PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate) de 300 μm d'épaisseur et un cristal PPLN guide d'onde de 25 mm de longueur. La figure A.12 montre la portion du spectre correspondant au processus de SHG centrée autour de 775 nm réalisé dans le cristal PPLN.

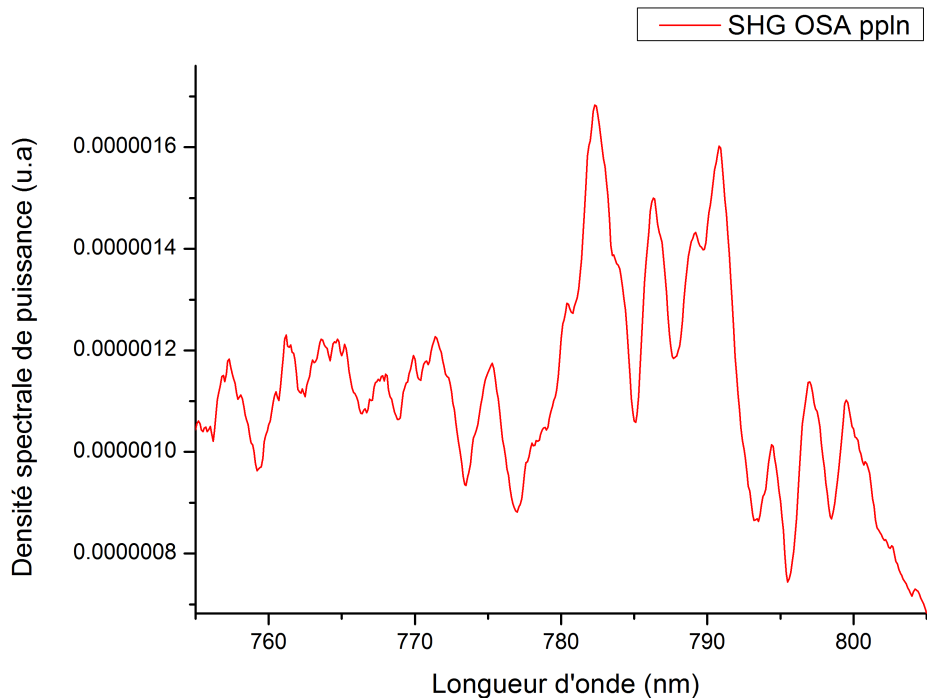


FIGURE A.12 – Spectre du peigne de fréquences dû à la SHG dans un cristal PPLN. Spectre obtenu à l'analyseur de spectre optique.

La puissance injectée dans le cristal PPLN est de 300 mW soit une puissance crête d'environ 10 kW, l'utilisation d'un filtre optique centré sur 770 nm et de largeur à mi-hauteur de 10 nm permet d'isoler la partie du spectre issue de la SHG. La puissance mesurée après filtrage est de 10 mW.

Un guide d'onde PPLN permet de confiner la lumière sur de plus grande distance qu'un cristal PPLN classique. Le spectre issu du processus de SHG dans le guide d'onde PPLN est représenté sur la figure A.13. La puissance injectée dans le guide d'onde est de 300 mW et la puissance mesurée après filtrage optique autour de 770 nm est de 1 mW. Le spectre obtenu est plus chaotique que celui obtenu avec le cristal PPLN. L'impulsion est confinée sur une plus grande distance lors de l'utilisation du guide d'onde, il y a plus d'effets

non linéaires exaltés dans cette configuration ce qui se traduit par plus de déformation spectrale.

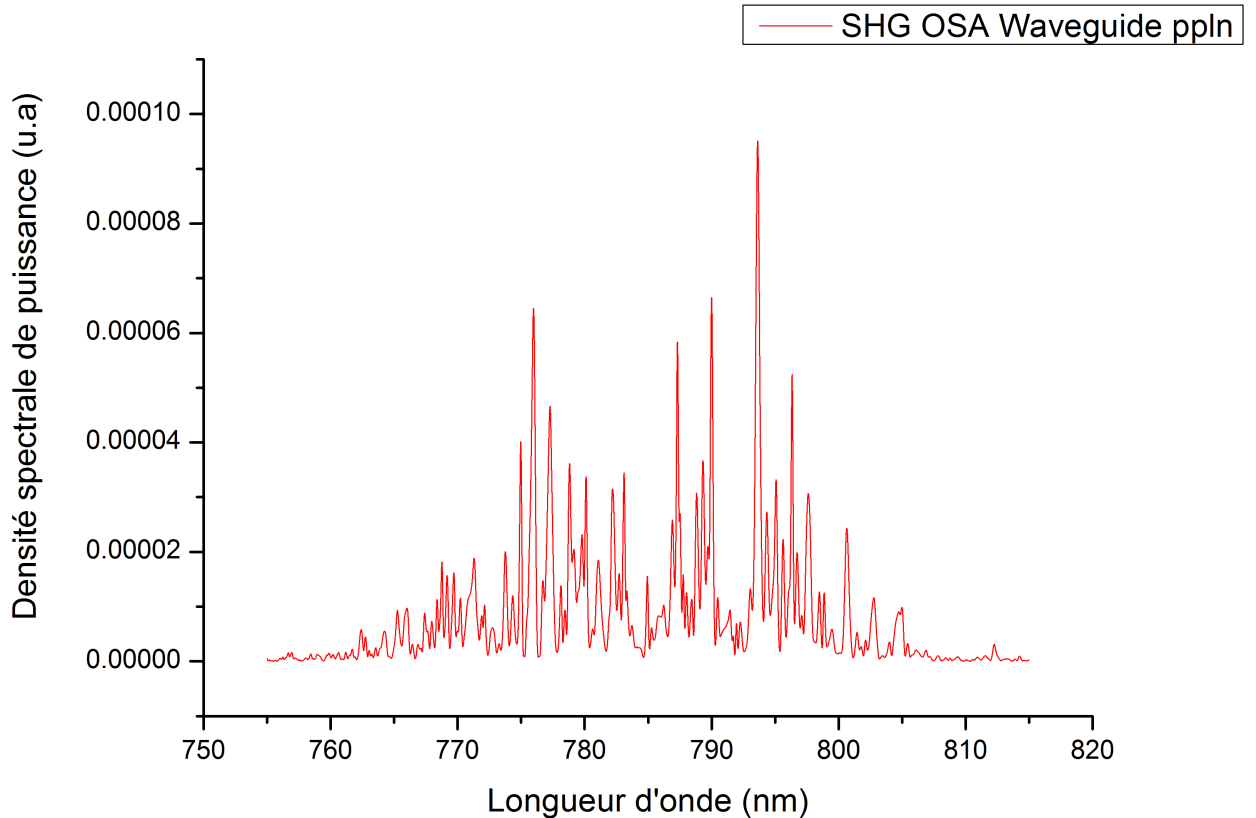


FIGURE A.13 – Spectre du peigne de fréquences dû à la SHG dans un guide d'onde PPLN. Spectre obtenu à l'analyseur de spectre optique.

A.4.2 Application à la mesure de dioxygène O_2 en espace libre

La détection du dioxygène est un objectif très recherché parmi les diagnostics optiques en combustion, développés à l'Onera. Nous utilisons un seul peigne de fréquences dont le spectre est doublé grâce au cristal PPLN. Nous réalisons un trajet d'une dizaine de mètres permettant ainsi d'après HITRAN de mettre en évidence certaines raies d'absorption entre 760 nm et 764 nm absorbant jusqu'à 20% de la puissance optique. Le schéma de l'expérience est illustré sur la figure A.14. Le faisceau du laser peigne de fréquences à 1,5 μm est focalisé dans le cristal PPLN à l'aide d'une lentille N-BK7 traitée pour la bande C (1050-1700 nm), le cristal réalise le doublage de fréquences et une seconde lentille N-BK7 cette fois traitée pour la bande B (650-1050 nm) est utilisée pour collimater le faisceau sortant à 775 nm. Après une propagation d'une dizaine de mètres dans l'air le faisceau à 775 nm est couplé dans une fibre monomode à 780 nm. La fibre est reliée à un analyseur de spectre optique commercial qui enregistre le spectre d'absorption moyenné 1000 fois pour augmenter le rapport signal sur bruit. Le temps d'acquisition est de 30 minutes. Le spectre d'absorption obtenu est représenté en noire sur la figure A.15.

Une mesure est également réalisée en limitant la propagation du faisceau doublé dans l'air à quelques dizaines de centimètres. Le spectre est représenté en bleu sur la figure

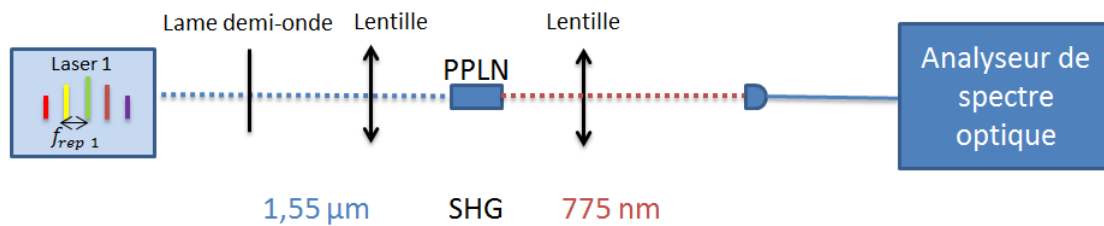


FIGURE A.14 – Schéma du montage permettant de réaliser la détection du dioxygène dans l'air grâce au doublage de fréquence du peigne de fréquences.

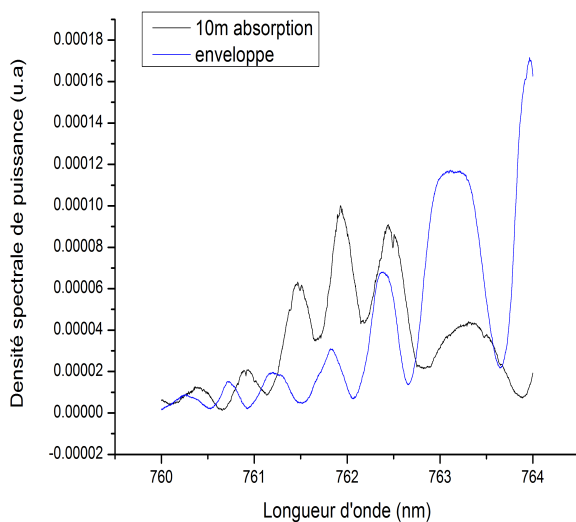


FIGURE A.15 – Spectre issu de la SHG. En noire le spectre obtenu après propagation de 10 mètres dans l'air. En bleu le spectre obtenu après quelques dizaines de centimètres de propagation dans l'air.

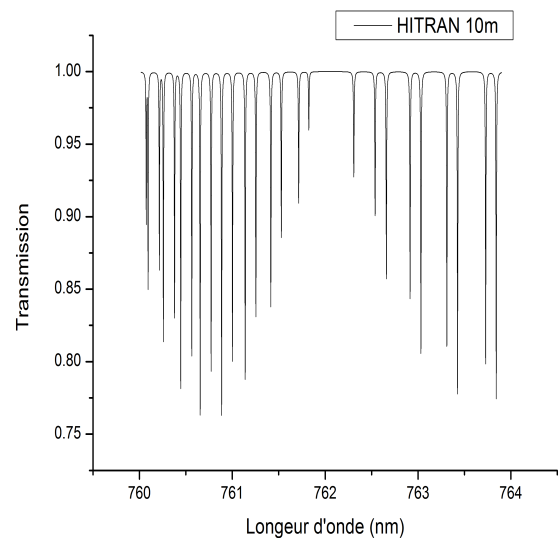


FIGURE A.16 – Raies d'absorption du dioxygène autour de 762 nm après 10 mètres de propagation.

A.15. Les deux spectres obtenus ne possèdent pas la même enveloppe spectrale. Le spectre du peigne issu de la SHG présente d'importantes fluctuations temporelles puisque deux acquisitions successives de 30 minutes ne coïncident pas. Cependant le spectre obtenu après 10 mètres de propagation présente des zones d'absorption clairement visibles autour de 761 nm, 762,5 nm notamment. Ces raies d'absorption ne correspondent pas aux raies d'absorption prévues par HITRAN (figure A.16). Le spectre issu de la SHG présentant des fluctuations temporelles, le moyennage du spectre d'absorption sur 30 minutes a entraîné des distorsions importantes des raies d'absorption qui ne sont plus exploitables. Pour améliorer la mesure il faudrait augmenter la puissance du signal récolté vers 762 nm afin d'avoir un spectre d'absorption avec un meilleur RSB pour ne plus avoir à moyenner sur 30 minutes. Il faudrait également avoir une température stable du cristal PPLN pour éviter les fluctuations temporelles causées par l'évolution de température du cristal.

A.5 Références

- ASNIS, L., Y. V. GRACHEV, I. Y. DENISYUK et O. SMOLYANSKAYA. 2010, «Transmission of femtosecond laser pulses through an optical fiber», *Journal of Optical Technology*, vol. 77, n° 5, p. 297–299. [III](#)
- CHEN, Z., M. YAN, T. W. HÄNSCH et N. PICQUÉ. 2018, «A phase-stable dual-comb interferometer», *Nature communications*, vol. 9, n° 1, p. 3035. [IX](#)
- GUELACHVILI, G. 1986, «Distortion free interferograms in fourier transform spectroscopy with nonlinear detectors», *Applied optics*, vol. 25, n° 24, p. 4644–4648. [IX](#)
- PALCHETTI, L., G. BIANCHINI, U. CORTESI, E. PASCALE et C. LEE. 2002, «Assessment of detector nonlinearity in fourier transform spectroscopy», *Applied spectroscopy*, vol. 56, n° 2, p. 271–274. [IX](#)

Titre: Utilisation de lasers femtoseconde peigne de fréquences pour des applications de détection simultanée multi-espèces de gaz à distance

Mots clés: Peigne de fréquences, Spectroscopie de Fourier, Lidar

Résumé: De nos jours la caractérisation des gaz à effet de serre (telle que CO_2 , CH_4 , les NO_x) à l'échelle planétaire est un enjeu majeur. Identifier les sources et puits de ces diverses espèces chimiques à l'aide d'instruments de grande précision est aujourd'hui l'objet d'études approfondies. Le développement d'instruments spectroscopiques de large couverture spectrale, précis et sensibles est ainsi nécessaire. Les laser femto secondes peigne de fréquences utilisés en Dual Comb Spectroscopy (DCS) permettent de réaliser des mesures multi-espèces sur une large couverture spectrale.

L'objectif principal de cette thèse est d'évaluer les performances d'un système de DCS composé de deux laser femtosecondes peigne de fréquences MenloSystems ainsi que de mettre en œuvre des mesures intégrées de concentrations de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Un deuxième objectif consiste à étudier la faisabilité de réaliser des mesures de concentration de gaz résolues spatialement grâce à la rétrodiffusion de la lumière sur des aérosols. Afin de décrire les travaux réalisés pour atteindre cet objectif le manuscrit est organisé de la manière suivante:

— Évaluation des performances du système

DCS disponible au laboratoire. Définition d'un protocole de mesure et première mise en œuvre de mesure de concentration de gaz en cellule de gaz.

- Mise en œuvre du système pour des mesures de concentrations intégrées de gaz en atmosphère. Tout d'abord avec la mesure de concentration de la vapeur d'eau à courte portée (27 m). Puis la mesure de concentration multi-espèces à moyenne portée (140 m) sur la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone.
- Évaluation de la capacité à réaliser des mesures Lidar IPDA et DiAL en utilisant la DCS. Dans une première partie nous estimons les performances en terme de portée pour notre système des mesures Lidar IPDA utilisant une cible diffuse. Dans une seconde partie on s'intéresse aux mesures en rétrodiffusion sur les aérosols. Nous décrivons l'incompatibilité des lasers hautes cadences avec la méthode classique de localisation des impulsions par leur temps de vol. Deux solutions sont proposées pour contourner cette difficulté.

Title: Utilization of femtoseconde frequency comb laser for simultaneous multi-species gaz remote detection applications

Keywords: Frequency comb, Fourier Spectroscopy, Lidar

Abstract: Nowadays, the characterization of greenhouse gases (such as CO₂, CH₄, NO_x) on a global scale is a major issue. Identifying the sources and sinks of these various chemical species using high precision instruments is today the subject of studies. The development of spectroscopic instruments with broad spectral coverage, precise and sensitive is thus necessary. The femto second frequency comb lasers used in Dual Comb Spectroscopy (DCS) makes possible to perform multi-species measurements over a wide spectral coverage.

The main goal of this thesis is to evaluate the performance of a DCS system consisting of two femtosecond frequency comb MenloSystems Lasers as well as to implement integrated measurements of greenhouse gas concentrations in the atmosphere. A second objective is to study the feasibility of spatially resolved gas concentration measurements by backscattering light onto aerosols. To achieve these objectives the following tasks have been performed in this thesis work:

- Evaluation of the performance of the DCS system available in the laboratory. De-

finition of a measurement protocol and first implementation of gas concentration measurement in a gas cell.

- Implementation of the system for measurements of integrated gas concentrations in the atmosphere. First with the measurement of water vapor concentration on short-range (27 m). Then on medium-range (140 m) with multi-species concentration measurement on water vapor and carbon dioxide.
- Assessment of the ability to perform Lidar IPDA and DiAL measurements using DCS. In the first part we estimate the performance of our system in terms of measurement range for Lidar IPDA measurement using a diffuse target. In a second part, we are interested in aerosol backscatter measurements. We describe the incompatibility of high repetition rate laser with the traditional method of locating pulses by their time of flight. Two solutions are proposed to circumvent this difficulty.

