



**HAL**  
open science

# Mesure du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) atmosphérique par LIDAR DIAL : préparation d'une future mission spatiale

Fabien Marnas

## ► To cite this version:

Fabien Marnas. Mesure du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) atmosphérique par LIDAR DIAL : préparation d'une future mission spatiale. Physique [physics]. Ecole Polytechnique X, 2009. Français. NNT : . pastel-00006030

**HAL Id: pastel-00006030**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00006030>**

Submitted on 3 May 2010

**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.

**THESE DE DOCTORAT  
DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

Spécialités :  
PHYSIQUE DE L'ATMOSPHERE  
OPTIQUE

Présentée par :

**Fabien MARNAS**

*Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL) /  
Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD)*

Sujet de la thèse :

MESURE DU DIOXYDE DE CARBONE (CO<sub>2</sub>)  
ATMOSPHERIQUE PAR LIDAR DIAL : PREPARATION D'UNE  
FUTURE MISSION SPATIALE

Thèse soutenue le 16 septembre 2009,  
Devant le jury composé de :

Razvigor OSSIKOVSKI (Maitre de conférences LPICM)	Président du Jury
Georges DURRY (Professeur GSMA)	Rapporteur
Jacques PELON (Directeur de recherches LATMOS)	Rapporteur
Alain DABAS (Ingénieur Météo-France)	Examineur
Myriam RAYBAUT (Ingénieur ONERA)	Examineur
Jean-Yves LABANDIBAR (Ingénieur Thales-Alenia Space)	Invité
Pierre H. FLAMANT (Directeur de recherches LMD)	Directeur de Thèse



*“If anything can go wrong, it will”*

*1ère Loi de Murphy*



## Remerciements

Ce travail de thèse, conduit à l'Institut Pierre Simon Laplace, au sein du Laboratoire de Météorologie Dynamique n'aurait pu voir le jour sans l'apport de nombreuses personnes que je tiens à associer à la finalisation de ce manuscrit. Dans un premier temps je tiens à remercier mon directeur de thèse, Pierre. H FLAMANT, pour m'avoir proposé ce sujet de thèse, puis accompagné et soutenu dans ce travail. Je tiens aussi à remercier le directeur du LMD, Hervé LE TREUT et son successeur Vincent CASSE, pour m'avoir accueilli au sein de cette structure afin que j'y effectue mes travaux. De plus, je remercie chaleureusement le Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) et Thalès-Alenia Space d'avoir financé mes travaux de recherche ainsi que mes tuteurs respectifs de ces organismes Didier RENAUT et Jean-Yves LABANDIBAR pour en avoir suivi l'avancement. J'adresse de sincères remerciements à tous les membres de mon jury pour avoir accepté ce rôle et avoir permis l'amélioration de ce document par leurs remarques constructives. Je tiens à remercier l'ensemble de l'équipe LIMAG pour leur soutien et leur aide. Merci à : Claude LOTH, Fabien GIBERT, Dimitri EDOUART, Juan CUESTA et Laetitia ESTEVAN à qui j'associe Didier BRUNEAU du LATMOS. Merci à mes collègues de bureau, Clément FESQUET, Nicolas ARNAULT, Tamara SALAMEH, Yohann MORILLE, Gillian BOCCARA puis Edouard MARTINS, Dimitra KONSTA et Cindy LEBEAUPIN, pour avoir fait de notre espace de travail un lieu que l'on ne veut quitter. Je remercie enfin l'ensemble du personnel du LMD. Je souhaite aussi adresser un remerciement particulier à Marie-Claire LANCEAU, documentaliste au LMD, pour son aide et pour son rôle auprès des doctorants. Sur un plan professionnel, un grand merci aux membres du DOTA de l'ONERA et plus particulièrement Michel LEFEBVRE, Myriam RAYBAUT et Ajmal K. MOHAMED de m'avoir accueilli au sein de leur unité et pour l'aide qu'ils m'ont apporté durant notre collaboration. De même je remercie les membres du GSMA et plus particulièrement Lilian JOLY ainsi que Georges DURRY et Virginie ZENINARI, pour le travail réalisé au sein de leur laboratoire. Enfin, je remercie Gerhard EHRET et Axel AMEDIEK du DLR d'avoir mis à ma disposition leurs données.

Sur un plan plus personnel, je remercie grandement mon frère. Une grande pensée aussi, pour mes parents, leur indéfectible soutien et leurs encouragements constants. J'associe enfin à ces remerciements tous mes amis, colocataires, et tous les gens avec qui j'ai énormément partagé durant ces 3 années. Vous êtes trop nombreux pour pouvoir vous citer ici, mais chacun d'entre vous se reconnaîtra. La finalisation de cette thèse, c'est aussi, et surtout grâce à vous. Enfin je souhaite avoir une pensée toute particulière pour « Indien » et « Cheval ».

## Table des matières

<b>Introduction</b> .....	10
<b>Chapitre I</b> .....	14
<b>Cycle du carbone et apport d'une mesure DIAL spatiale du CO<sub>2</sub> atmosphérique</b> .....	14
<b>1. Contexte général</b> .....	15
<b>1.1. Cycle du carbone et réchauffement climatique</b> .....	15
1.1.1 Cycle naturel du carbone .....	16
1.1.2 Perturbations anthropiques .....	17
1.1.3 Différentes échelles d'étude du CO <sub>2</sub> atmosphérique .....	20
1.1.3.1 Cycle diurne et variations synoptiques .....	20
1.1.3.2 Représentativité temporelle .....	23
1.1.4 Sources et puits : mesures actuelles du CO <sub>2</sub> atmosphérique .....	24
1.1.4.1 Méthodes de restitution des puits et des sources : approche montante ou « bottom-up » .....	25
1.1.4.2 Méthodes de restitution des puits et des sources : approche descendante ou « top-down » .....	25
1.2. Apport d'une mesure active DIAL spatiale .....	26
1.2.1 Missions spatiales passives : concept et limitations .....	26
1.2.2 Apport d'un sondage actif .....	27
1.3. A-SCOPE .....	28
<b>2. La mesure DIAL</b> .....	29
2.1. Interaction laser – atmosphère .....	29
2.1.1. Transmission .....	29
2.1.2. Diffusion .....	30
2.1.3. Absorption .....	31
2.2. L'équation LIDAR .....	32
2.3. La mesure DIAL .....	34
2.3.1. Mesures résolues .....	36
2.3.2. Mesures intégrées .....	36
2.4. Différents modes de détection .....	37
2.4.1. Détection directe .....	37
2.4.2. Détection hétérodyne .....	38
<b>3. Sélection de la raie d'absorption du CO<sub>2</sub> pour une mesure spatiale</b> .....	39
3.1. Sources laser .....	40
3.2. Transmission atmosphérique .....	40
3.3. Sélection du niveau d'énergie fondamental .....	42
3.4. Epaisseur optique optimale due à l'absorption du CO <sub>2</sub> .....	43
3.5. Fonction de poids adéquate pour obtenir des informations sur les flux de surface et conséquences pour la précision requise sur le rapport de mélange en CO <sub>2</sub> .....	47
<b>4. Conclusion</b> .....	52

<b>Chapitre II</b> .....	53
<b>Spectroscopie du CO<sub>2</sub> à 2051 nm</b> .....	53
1. <b>Spectres d'absorption Infra-Rouge : rappels de spectroscopie moléculaire</b> .....	54
1.1 <b>Fréquence de Bohr : position spectrale des raies d'absorption</b> .....	54
1.2 <b>Intensité des raies d'absorption</b> .....	54
1.3 <b>Profil spectral des raies d'absorption : différents types d'élargissement</b> .....	58
1.3.1. <b>Largeur naturelle d'une raie</b> .....	58
1.3.2. <b>Elargissement Doppler : profil gaussien</b> .....	58
1.3.3. <b>Elargissement collisionnel : profil lorentzien</b> .....	59
1.3.4. <b>Cas général : autres types de profil</b> .....	60
1.3.4.1. <b>Profil de Voigt</b> .....	60
1.3.4.2. <b>Profils de Rautian et de Galatry</b> .....	61
1.4. <b>Pressure shift</b> .....	62
2. <b>Le spectromètre d'absorption diode laser</b> .....	64
3. <b>Mesures spectroscopiques</b> .....	68
3.1. <b>Détermination des intensités de raie</b> .....	68
3.2. <b>Coefficient d'élargissement par l'air <math>\gamma_a</math> et coefficient de dépendance en température <math>\eta</math></b> .....	71
4. <b>Mesure du pressure shift des raies de CO<sub>2</sub> autour de 2051 nm par spectroscopie photoacoustique</b> .....	75
4.1. <b>Dispositif expérimental</b> .....	75
4.2. <b>Résultats</b> .....	77
5. <b>Biais potentiels sur les mesures DIAL dus aux incertitudes spectroscopiques</b> .....	81
5.1. <b>Evaluation des biais potentiels sur la restitution du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> dus aux incertitudes spectroscopiques</b> .....	81
5.2. <b>Discussion sur les biais absolus</b> .....	87
5.3. <b>Discussion sur les biais différentiels inter-régionaux</b> .....	88
6. <b>Conclusion</b> .....	90
 <b>Chapitre III</b> .....	 91
<b>Source laser de puissance à 2 microns</b> .....	91
1. <b>Les sources laser de puissance à 2 microns</b> .....	92
1.1. <b>Etat de l'art</b> .....	92
1.2. <b>Source pulsée Tm, Ho : YLF à 2051 nm</b> .....	92
2. <b>PULSNIR : Présentation générale</b> .....	94
2.1. <b>Spécifications instrumentales</b> .....	95
2.2. <b>Biais induits par les caractéristiques spectrales de la source laser sur la restitution du rapport de mélange en CO<sub>2</sub></b> .....	96
2.2.1. <b>Erreur de positionnement spectral du laser</b> .....	97
2.2.2. <b>Erreur de largeur spectrale de l'émission</b> .....	98
2.2.3. <b>Erreur induite par la pureté spectrale</b> .....	99
2.3. <b>Configuration envisageable : conversion de fréquence par effet Raman</b> ...	102
2.4. <b>Principe général de l'Oscillateur Paramétrique Optique</b> .....	103
2.4.1. <b>Accord de phase par biréfringence</b> .....	105
2.4.2. <b>Quasi-accord de phase (QAP)</b> .....	105
3. <b>Les OPO spectralement fins</b> .....	107
3.1. <b>OPO simplement résonnant : SROPO (Singly Resonant OPO)</b> .....	107
3.1.1. <b>SROPO à réseau de Bragg VBG (Volume Bragg Grating)</b> .....	107
3.1.2. <b>SROPO injecté</b> .....	108
3.2. <b>Présentation générale du DROPO (Doubly Resonant OPO)</b> .....	110

3.2.1.	<b>Considérations générales</b> .....	110
3.2.2.	<b>DROPO à cavités séparées</b> .....	111
4.	<b>MOPA : architecture envisagée</b> .....	113
4.1.	<b>DROPO</b> .....	113
4.2.	<b>OPA (Optical Parametric Amplificator)</b> .....	114
5.	<b>Démonstration préliminaire du MOPA (DROPO+OPA) : puissance, efficacité de conversion et qualité de faisceau</b> .....	116
6.	<b>Caractérisation de la stabilité spectrale de la source</b> .....	120
6.1.	<b>Stabilisation avec cellule photoacoustique</b> .....	120
6.2.	<b>Stabilisation à l'aide d'un lambdamètre et procédure utilisée</b> .....	123
7.	<b>Mesure de la pureté spectrale</b> .....	125
7.1.	<b>Principe de la mesure</b> .....	125
7.2.	<b>Caractérisation spectrale de la raie d'absorption utilisée comme filtre Notch</b> 125	
7.2.1.	<b>Etalonnage spectral de la raie d'absorption à l'aide d'un étalon Fabry-Pérot.</b> 125	
7.2.2.	<b>Etalonnage spectral de la raie d'absorption à l'aide d'une cellule photoacoustique</b> .....	129
7.3.	<b>Contrôle de la pureté spectrale de la source DROPO</b> .....	131
7.3.1.	<b>Procédure expérimentale</b> .....	131
7.3.2.	<b>Mesure de la pureté spectrale</b> .....	133
8.	<b>Conclusion</b> .....	135
<b>Chapitre IV</b> .....		136
<b>Etude de la canopée et erreurs associées sur une mesure DIAL spatiale</b> .....		136
1.	<b>Contexte et problème : variabilité des surfaces : sol, végétation et différentes cibles</b> .....	137
2.	<b>Théorie</b> .....	138
2.1.	<b>Rapport signal à bruit</b> .....	138
2.1.1	<b>Rapport signal à bruit et CNR</b> .....	138
2.1.2	<b>Etablissement du CNR</b> .....	139
2.1.2.1	<b>Différentes sources de bruit</b> .....	139
2.1.2.2	<b>Détection directe</b> .....	140
2.1.2.3	<b>Détection hétérodyne</b> .....	140
2.2.	<b>Statistique du signal rétrodiffusé</b> .....	141
2.2.1.	<b>Statistique spatiale</b> .....	141
2.2.2.	<b>Statistique temporelle</b> .....	142
2.2.3.	<b>Différents modes de détection</b> .....	143
2.2.3.1.	<b>Détection directe</b> .....	143
2.2.3.2.	<b>Détection hétérodyne</b> .....	144
2.2.4.	<b>Effets de la turbulence d'indice de réfraction</b> .....	145
2.3.	<b>Corrélation des signaux – erreur sur une mesure DIAL</b> .....	146
3.	<b>Etude expérimentale de cibles topographiques</b> .....	148
3.1.	<b>Détection directe</b> .....	148
3.1.1	<b>Analyse de la statistique des signaux des différentes cibles</b> .....	148
3.1.2	<b>Cas particulier de la canopée</b> .....	154
3.1.3.	<b>Erreurs induites lors d'une mesure spatiale</b> .....	157
3.1.3.1.	<b>Variabilité de la réflectivité de surface entre deux impulsions successives</b> .....	158
3.1.3.2.	<b>Variabilité de l'altitude dans une empreinte spatiale au sol</b> .....	163

<b>3.2. Détection hétérodyne.....</b>	<b>166</b>
<b>3.2.1. Analyse de la statistique des signaux utilisant des arbres comme cibles</b>	<b>166</b>
<b>3.2.2. Etude de la corrélation des signaux.....</b>	<b>171</b>
<b>4. Conclusion.....</b>	<b>173</b>
<b>Conclusion.....</b>	<b>174</b>
<b>Annexe A : La spectroscopie photoacoustique .....</b>	<b>180</b>
<b>A.1. Le signal acoustique en mode continu modulé .....</b>	<b>181</b>
<b>A.1.1. Equations de base .....</b>	<b>181</b>
<b>A.1.2. Génération du signal photoacoustique .....</b>	<b>182</b>
<b>A.2. Les cuves résonnantes .....</b>	<b>184</b>
<b>Annexe B : Erreurs associées lors d'une mesure DIAL spatiale.....</b>	<b>186</b>
<b>Liste des illustrations .....</b>	<b>187</b>
<b>Liste des tableaux .....</b>	<b>191</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>193</b>

## **Introduction**

Le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) est le deuxième gaz à contribuer à l'effet de serre après la vapeur d'eau et le premier d'origine anthropique. La concentration de ce gaz dans l'atmosphère a augmenté de 280 ppm en 1850 jusqu'à une valeur proche des 380 ppm de nos jours en moyenne, et jusqu'à 500 ppm dans les grandes agglomérations, comme par exemple, Paris. L'augmentation de cette concentration est grandement corrélée avec le début de l'ère préindustrielle et à la combustion massive d'énergie fossile. L'amplitude de 100 ppm est à comparer aux augmentations naturelles entre les périodes glaciaires et interglaciaires et sur plusieurs milliers d'années. Des forages de carottes de glace effectués à Vostok en antarctique attestent désormais que la concentration actuelle n'a jamais été atteinte depuis 400000 ans. Ces observations montrent qu'il existe une forte corrélation entre la température de l'air de surface et la concentration en CO<sub>2</sub> atmosphérique. Bien qu'il subsiste des débats, il se dégage aujourd'hui un fort consensus sur l'impact de la concentration de CO<sub>2</sub> sur le climat, laissant présager que la part anthropique de ces émissions et donc l'élévation de la concentration de CO<sub>2</sub> induit une perturbation du système climatique bien supérieure à sa variabilité naturelle.

Les experts du GIEC (Groupe Intercontinental sur l'Evolution du Climat) ont notifié une augmentation de la température de surface du globe moyenne comprise entre 0.3 et 0.6°C depuis la moitié du 20ème siècle. Or cette augmentation est corrélée avec l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre atmosphériques et par la même du CO<sub>2</sub> [IPCC 2007].

Afin de pouvoir prédire l'évolution future du climat terrestre, de nombreux modèles climatiques sont développés. Cependant il subsiste de nombreuses incertitudes dans ces modèles notamment les interactions et rétroactions entre les processus climatiques et les puits (destruction) et les sources (production) de CO<sub>2</sub>. Afin de quantifier ces processus et ainsi affiner les prédictions, il est nécessaire de pouvoir quantifier avec précision les flux, principalement de surface, du CO<sub>2</sub> atmosphérique afin de pouvoir localiser avec précision les puits et sources du CO<sub>2</sub>. En effet, de nos jours, bien que les processus naturels du cycle du carbone soient connus, il subsiste un « puits manquant », lors de

l'établissement du bilan du CO<sub>2</sub>. Il est aussi nécessaire de pouvoir étudier l'évolution de ces sources et puits afin d'évaluer l'impact des rétroactions climatiques sur leur amplitude.

La nécessité de localisation de ces sources et puits induit un besoin en mesures de concentration de CO<sub>2</sub>. Pour ça, un réseau de mesures in-situ au sol a été développé progressivement depuis les années 1950 et il est aujourd'hui constitué d'une centaine de stations de mesure qui réalisent des observations régulières. Cependant, pour contraindre les modèles climatiques, ce réseau est trop éparpillé à l'échelle du globe. Les couvertures temporelles et spatiales de ce réseau sont insuffisantes pour pouvoir évaluer de manière adéquate les flux de surface interrégionaux (bien qu'étant complété par quelques mesures aéroportées épisodiques).

Ainsi, un besoin en mesures globales de la concentration de CO<sub>2</sub> est apparu indispensable. La télédétection spatiale, passive, dans un premier temps, a été envisagée pour répondre à ce besoin. C'est ainsi, qu'un certain nombre de missions ont été planifiées par les diverses agences spatiales et dont certaines sont à l'heure actuelle en fonctionnement pour des mesures dans l'infrarouge thermique (TOVS, IASI) ou dans le proche infrarouge (GOSAT). Cependant ces missions ne pourront répondre à la précision de mesure absolue demandée (1 ppm) pour contraindre les modèles climatiques, et elles souffrent aussi d'une faible couverture aux hautes latitudes due à l'illumination solaire.

Dans ce contexte, la méthode de mesure par LIDAR (Light Detection and Ranging) DIAL (Differential Absorption Lidar), s'inscrit comme candidat pour une future mission spatiale.

En effet, cette technique a permis depuis de nombreuses années la détection de composés atmosphériques comme la vapeur d'eau [Cahen 1982] ou l'ozone [Mégie 1977]...

Dans le cadre particulier de la détection DIAL de CO<sub>2</sub>, et bien que des précurseurs aient développé des systèmes il y a quelques dizaines d'années [Bufton 1983, Sugimoto 1993], les premiers résultats significatifs ont été publiés au début de la décennie avec les premières mesures relatives avec une précision de 1.5% [Koch 2004], puis les premières mesures absolues [Gibert 2006] avec une précision de 1%.

Depuis des systèmes basés sur différentes technologies laser et techniques de mesure ont été développés.

Plusieurs agences spatiales ont proposé des missions de mesure active de concentration du CO<sub>2</sub> atmosphérique : A-SCOPE (Advanced Space Carbon and Observation of Planet Earth) par l'ESA (European Space Agency) et ASCENDS (Active Sensing of CO<sub>2</sub> Emissions over Night Day and Seasons) par la NASA (National Aeronautic and Space Administration).

En 2005, l'étude FACTS (Future Atmospheric Carbon Testing from Space) conduite par l'IPSL (Institut Pierre Simon Laplace) et Alcatel Space pour l'ESA a permis de mieux cerner les potentialités et les conditions requises pour une future mission spatiale de télédétection active du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

Cette thèse s'inscrit dans ce contexte de préparation d'une telle mission spatiale. Des mesures de concentration très précises requièrent de nombreuses avancées dans différents domaines comme : la

source laser, la connaissance des paramètres spectroscopiques de la raie de sondage du CO<sub>2</sub> choisie, la réponse, en terme de signal diffusé, des surfaces utilisées pour une mesure intégrée sur la colonne.

Les différentes études menées pour cette thèse s'organisent comme suit :

- Le premier chapitre décrit le contexte scientifique général : cycle naturel du carbone, perturbations anthropiques, changement climatique, réseau de mesures actuel et principales missions de télédétection passive du CO<sub>2</sub>, ce qui permet de poser le cadre de l'étude. Suit un rappel théorique sur le LIDAR DIAL et les diverses méthodes de mesure pouvant être utilisées. Enfin, partant de ces considérations et de l'étude FACTS, nous montrons quelles raies d'absorption du CO<sub>2</sub> sont d'intérêt pour la télédétection spatiale. Enfin, nous donnons les raisons pour lesquelles nous choisissons le domaine spectral à 2 μm et la raie d'absorption R 30 du CO<sub>2</sub> dans la bande d'absorption  $(20^01)_{III} \leftarrow (000)_I$ .
- Le second chapitre présente les mesures spectroscopiques réalisées sur cette raie. Afin de réduire les biais de mesure, les paramètres spectroscopiques doivent être connus avec une grande précision. Ainsi, un partenariat a été mis en place avec le GSMA (Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique) de l'université de Reims. Après un rappel de spectroscopie moléculaire théorique, les mesures réalisées au GSMA sont présentées. La technique utilisée est la spectroscopie d'absorption par diode laser. Après avoir comparé les résultats obtenus aux études précédentes, nous analysons l'impact de la précision de ces mesures en termes de biais pour une mesure active spatiale. Enfin, des mesures du coefficient du décalage du centre de raie d'absorption par pression (« pressure shift coefficient ») par spectroscopie photoacoustique seront présentées.
- Dans le troisième chapitre, nous nous intéressons à la source laser. Dans un premier temps, nous présentons les modifications apportées à la source laser du système HDIAL (Hétérodyne DIAL) existant au LMD afin d'obtenir une émission sur la raie R 30 autour de 2051 nm. Ensuite nous présenterons le développement piloté par l'ONERA (Office National d'Etude et de Recherche en Aérospatiale) au sein du département DMPH (Département Mesures Physiques) d'une source de puissance à cette même longueur d'onde de 2051 nm. Ce développement s'effectue dans le cadre du contrat PULSNIR (Pulsed Laser Source in NIR for LIDAR applications) commandé par l'ESA dans le cadre de la préparation d'A-SCOPE. Le concept retenu est celui d'une source paramétrique OPO (Oscillateur Paramétrique Optique) doublement résonante (DROPO). A partir de FACTS, les caractéristiques retenues pour la source, notamment en termes de propriétés spectrales, sont traduites en termes de biais potentiels sur une mesure DIAL. Après la présentation de l'architecture et le développement de la source, sont présentées les caractérisations spectrales de celle-ci en termes de stabilité et de pureté spectrale.

- Enfin le quatrième chapitre présente les études préliminaires effectuées pour caractériser la canopée comme cible pour la mesure de la colonne de CO<sub>2</sub> atmosphérique. En effet, en vue d'une mesure spatiale, tous les types de cibles doivent être envisagés. Après un rappel théorique des propriétés spectrales et de la statistique des ondes optiques diffusées par ces cibles, nous présentons des résultats expérimentaux. Les propriétés statistiques de ce type de cible sont étudiées à partir, d'une part, de mesures effectuées avec le système HDIAL du LMD émettant à 2µm et d'autre part à partir du système aéroporté OPO à 1.6 µm et détection directe du DLR. Nous mettons alors en avant les conséquences en termes d'erreur sur une mesure DIAL spatiale de CO<sub>2</sub> atmosphérique.
- Enfin la conclusion, rappelle la démarche, les outils développés et mis en place ainsi que les principaux résultats obtenus durant ce travail de thèse. Nous pouvons alors conclure sur la potentialité d'une telle mesure globale DIAL du CO<sub>2</sub>.

## **Chapitre I**

### **Cycle du carbone et apport d'une mesure DIAL spatiale du CO<sub>2</sub> atmosphérique**

Ce chapitre présente le contexte général de l'étude développée dans cette thèse. Nous allons donc présenter d'un point de vue général l'importance du dioxyde de carbone dans le climat global et sa contribution au réchauffement climatique. Nous rappellerons notamment le lien entre l'accroissement de la concentration du CO<sub>2</sub> atmosphérique depuis la révolution industrielle et le changement climatique global actuel. Nous mettrons alors en avant l'importance des puits et des sources de CO<sub>2</sub> dans le cycle global du carbone, ainsi que l'importance de leur localisation, pour la prévision du climat futur.

Ensuite, nous montrerons l'apport d'une mesure satellite du dioxyde de carbone atmosphérique pour remédier à la faible couverture actuelle du réseau de mesures au sol. Nous établirons alors le degré de précision requis sur la restitution des concentrations pour déterminer avec précision la localisation et l'amplitude des sources et des puits.

Enfin, après avoir montré l'apport d'une télédétection satellite active en comparaison des mesures passives, nous rappellerons le principe physique de la mesure DIAL (Differential Absorption Lidar). Ceci nous conduira à établir les critères de sélection de la raie d'absorption la plus appropriée pour un sondage spatial du CO<sub>2</sub> par LIDAR DIAL pour atteindre la précision (1 ppm) et le biais interrégional (0.1 ppm) visés.

## **1. Contexte général**

Le dioxyde de carbone est le plus important gaz à effet de serre d'origine anthropique. A l'heure actuelle il contribue à plus de la moitié du changement anthropogénique global dans le bilan radiatif de la Terre. Une élévation de plus de 30% de la concentration globale de CO<sub>2</sub> depuis l'ère préindustrielle a été identifiée [IPCC 2007] comme étant le moteur principal pour l'élévation globale de la température moyenne durant la même période.

Nous savons désormais que les causes principales de l'élévation des concentrations de CO<sub>2</sub> sont les émissions fossiles ainsi que l'exploitation forestière (augmentation de l'intensité des sources de carbone mais aussi diminution de l'intensité des puits de carbone océanique).

Cependant, les observations actuelles du dioxyde de carbone atmosphérique révèlent aussi que moins de la moitié des émissions anthropogéniques reste dans l'atmosphère, l'autre partie ayant été absorbée soit par les océans soit par la biosphère. Ceci nous montre l'équilibre entre les émissions anthropogéniques et la dynamique des processus terrestres et océaniques. Ainsi, c'est l'évolution à long-terme de cet équilibre qui est la clé pour comprendre et prédire la vitesse et la force du changement climatique induit par l'activité humaine.

### **1.1. Cycle du carbone et réchauffement climatique**

Le dioxyde de carbone atmosphérique est un gaz à effet de serre, c'est-à-dire qu'il interagit avec les rayonnements terrestres de telle manière qu'il n'affecte pas les radiations de courte longueur d'onde provenant du soleil mais tend à absorber le rayonnement de grande longueur d'onde émis par l'atmosphère et la surface de la terre. Ainsi le CO<sub>2</sub> tend à garder la chaleur dans les basses couches de l'atmosphère et c'est pour cette raison, qu'il est un acteur majeur du réchauffement climatique.

D'un autre côté, il ne faut pas oublier le rôle primordial de l'effet de serre : sans celui-ci, la température moyenne de la Terre serait environ 30°C plus froide et notre planète serait inhabitable. Cependant, l'augmentation exacte de la température pour une quantité donnée d'accroissement de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère n'est pas bien quantifiée car elle dépend de nombreuses interactions entre les différents sous-ensembles du système climatique terrestre (cycle du carbone, cycle hydrologique, circulation océanique).

Le rôle du dioxyde de carbone dans le climat est donc complexe. En particulier, le réchauffement climatique induit par le CO<sub>2</sub> n'est pas linéaire avec la quantité de dioxyde de carbone présent dans l'atmosphère. En effet, il existe des rétroactions sur les puits et sources de CO<sub>2</sub> (terrestres et océaniques) qui modifient les échanges et donc les concentrations (**Fig.1 .1**).

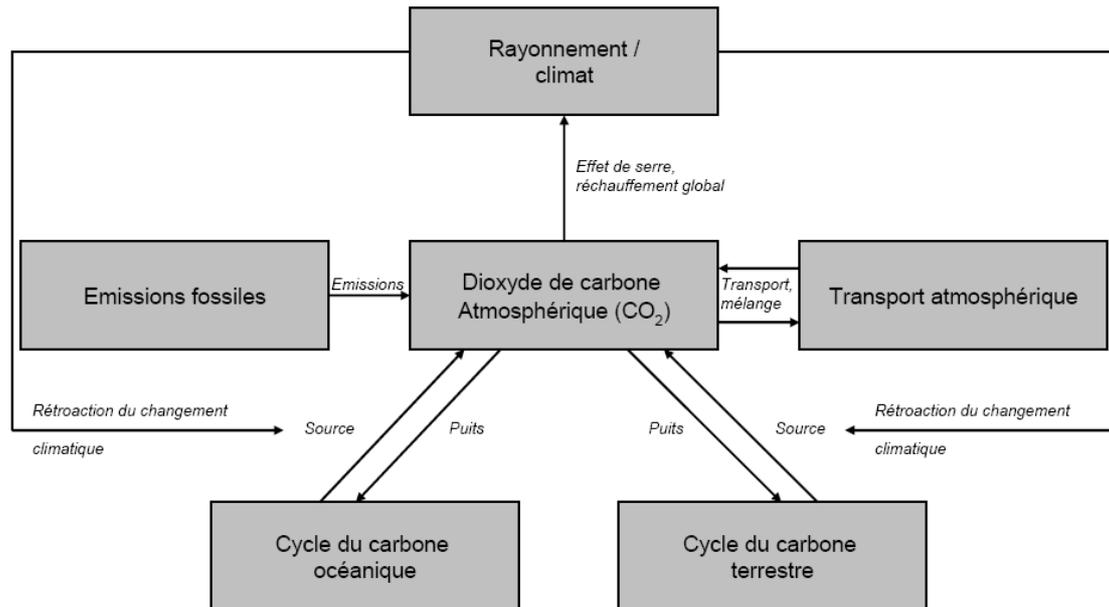


Fig.1. 1 : *Implication et importance du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) dans le changement climatique global*

### 1.1.1 Cycle naturel du carbone

Le cycle naturel du carbone peut, être séparé en deux processus majeurs distincts :

- cycle du carbone organique et échanges atmosphère/biosphère :

Les échanges entre l'atmosphère et la biosphère sont la résultante du cycle dit « court » du carbone organique (temps inférieur au siècle) par les processus de photosynthèse, respiration et fermentation. La contribution de la photosynthèse, qui utilise l'énergie solaire pour synthétiser la matière organique en fixant le carbone dans les hydrates de carbone (CH<sub>2</sub>O), est de 120 GtC.an<sup>-1</sup>. La respiration des végétaux chlorophylliens transforme, à partir de l'oxygène de l'air, toute matière organique en CO<sub>2</sub> : c'est la respiration autotrophique. La matière végétale morte se décompose dans les sols sous l'action de micro-organismes, bactéries et champignons. C'est la respiration hétérotrophique dont une part est constituée par le processus de fermentation : production de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> dans l'atmosphère. Ces deux types de respiration donnent lieu à un flux de CO<sub>2</sub> quasi-identique et égal à 120 GtC.an<sup>-1</sup>. La combustion de la végétation (d'origine naturelle ou humaine) relâche vers l'atmosphère quelques Giga-tonnes de carbone chaque année. La dernière partie de la matière organique est stockée dans les sols. Les flux de carbone liés aux processus d'échelle de temps beaucoup plus longs sont faibles. Ce sont des processus d'origine géologique : enfouissement des matières organiques dans les sédiments et les roches sédimentaires. Cependant les réservoirs de carbone liés à ces processus sont immenses et les temps impliqués sont très longs (milliers voir millions d'années).

- cycle du carbone inorganique et échanges atmosphère/océan

D'autres processus de recyclage du carbone impliquent cette fois le carbone inorganique. Il existe sous plusieurs formes dans l'océan : CO<sub>2</sub> dissous en surface en faible quantité (1%), ions bicarbonate (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> : 91%) et ions carbonates CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> (8%). L'équilibre chimique de solubilité du CO<sub>2</sub> atmosphérique dans l'océan (équilibre chimique entre CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O) et HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, dépend de la température de l'océan et du carbone déjà stocké et de l'activité biologique du phytoplancton. Les eaux froides favorisent l'absorption du CO<sub>2</sub> par les océans. Le carbone inorganique de l'océan provient aussi de l'érosion des continents, eaux de pluie ou ruissellement.

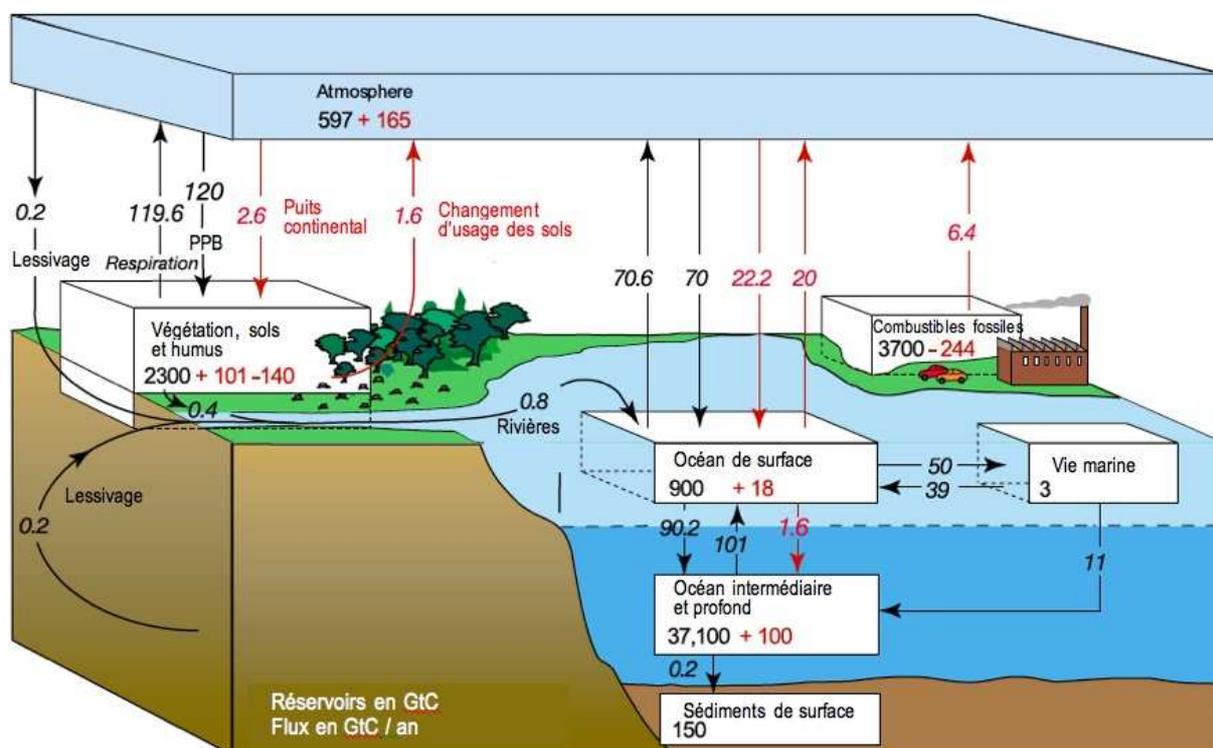


Fig.1. 2 : Cycle global du carbone : en noir sont représentés les processus naturels et en rouge les processus anthropiques [Sarmiento 2002]

### 1.1.2 Perturbations anthropiques

Le forçage moyen depuis l'ère préindustrielle a été dominé par le CO<sub>2</sub> et, depuis 2000, la contribution du CO<sub>2</sub> atmosphérique au forçage radiatif est autour de 90%.

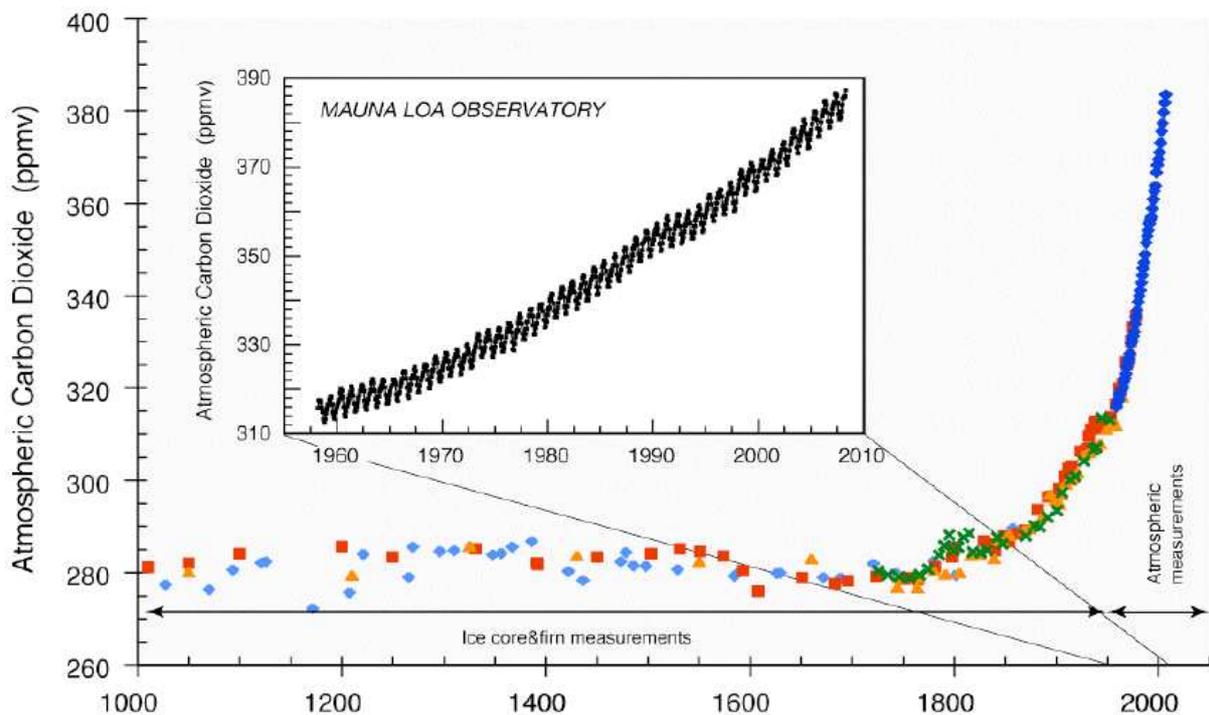
En adoptant un point de vue global, nous pouvons remarquer que la proportion de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère est minuscule comparée à la proportion de carbone stockée dans l'océan ou dans la biosphère. L'océan, à lui seul, contient 60 fois plus de carbone que l'atmosphère et la proportion de carbone contenue dans la biosphère est au moins 4 fois celle contenue dans l'atmosphère.

Avant l'ère industrielle, la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique était déterminée quasi-exclusivement par les processus d'échanges naturels de carbone entre l'atmosphère et l'océan et l'atmosphère et la

biosphère, respectivement. Malgré la grande ampleur de ces variations ( $100 \text{ GtC an}^{-1}$ ), les concentrations de CO<sub>2</sub> sont restées remarquablement stables jusqu'à la révolution industrielle, variant seulement entre 260 ppm et 280 ppm (Fig.1. 3).

La révolution industrielle a conduit à une perturbation dramatique du cycle naturel du carbone. Ceci a conduit à une augmentation proche de 40% de la concentration sur les 250 dernières années.

Sans ces processus, la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique actuelle serait deux fois celle de l'ère préindustrielle, soit supérieure à 500ppm et donc à la concentration actuelle moyenne qui se situe autour de 370 – 380 ppm.



**Fig.1. 3 : Evolution de la concentration de CO<sub>2</sub> lors du dernier millénaire [Sarmiento 2002]**

On estime qu'entre 1800 et 1994, l'océan a absorbé 120 GtC, tandis que la biosphère terrestre était une source de 40 GtC. Concernant le changement d'utilisation des sols, cela se traduit par deux effets : une perte de 140 GtC due à la transformation des forêts en surfaces agricoles et un puits terrestre (majoritairement dû aux forêts) qui a absorbé à peu près 100 GtC. Ainsi, nous voyons bien que le cycle du carbone océanique et continental a ralenti l'augmentation de concentration du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

Cependant, il reste encore de nos jours, un puits de carbone non-identifié et mal quantifié capable d'absorber environ  $2.9 \text{ GtC.an}^{-1}$ .

L'amplitude d'absorption des puits du CO<sub>2</sub> a varié substantiellement d'année en année et même de décennie en décennie mais ces variations ne sont pas directement liées aux variations des émissions

anthropiques qui ont, elles, augmenté de manière relativement constante au cours des 50 dernières années, mais principalement aux changements et variations des puits de carbone terrestres. Par exemple, dans l'année suivant un événement El Nino dans l'océan pacifique, la biosphère terrestre devient généralement une source nette de CO<sub>2</sub>, tandis que les années suivant la Nina, la biosphère terrestre devient un puits anormalement fort.

Il existe désormais un fort consensus sur le lien entre l'accroissement rapide du CO<sub>2</sub> atmosphérique durant les 250 dernières années et le réchauffement de 0.8°C durant cette période, et sur le fait que cet accroissement de concentration est le principal moteur du réchauffement. De fait, l'évolution future du climat terrestre sera fortement liée à l'évolution des gaz à effet de serre et plus particulièrement du dioxyde de carbone atmosphérique.

La prévision de l'évolution du CO<sub>2</sub> atmosphérique est donc liée à deux facteurs qui sont, l'amplitude des émissions anthropiques, et l'évolution des puits (et sources) de carbone terrestre. Bien que ces puits aient absorbé une fraction substantielle du CO<sub>2</sub> émis par le passé, l'évolution de ceux-ci dans le futur n'est pas claire. Si la force de ces puits devient plus faible avec un climat plus chaud comme beaucoup d'études le suggèrent, alors le CO<sub>2</sub> atmosphérique augmentera plus vite, causant une élévation de la température, qui réduira elle aussi à son tour l'influence de ces puits...

Cependant, l'interaction entre le système climatique physique et le cycle global du carbone est encore mal compris, et est une grande source d'incertitudes pour les projections climatiques futures.

Quantifier et comprendre les sources et puits actuels de CO<sub>2</sub>, est un élément clé pour améliorer notre capacité à prédire l'évolution climatique terrestre. Une connaissance précise de la variation du cycle du carbone et de ses rétroactions sur le climat est indispensable pour établir des scénarios prédictifs fiables.

Un des objectifs majeurs afin de pouvoir localiser précisément ces puits et sources est de mesurer avec précision les flux de carbone à proximité de la surface terrestre.

### 1.1.3 Différentes échelles d'étude du CO<sub>2</sub> atmosphérique

Dans le cadre de l'étude du CO<sub>2</sub> atmosphérique et de son évolution, nous pouvons distinguer différentes échelles d'étude temporelles ou spatiales. L'analyse de l'atmosphère couvre des échelles très diverses comme nous le présentons dans le suivant (Tab.1. 1) :

**Tab.1. 1 : Analyse d'échelle [Stull 1988]**

<i>L</i>	<i>T</i>	<i>Echelle</i>	<i>phénomène météorologique</i>
> 100 km	< 1 semaine	macro, échelle synoptique	circulation générale
1 - 100 km	1h - 1 semaine	mésos, moyenne échelle	fronts, couverture nuageuse, épisodes de pollution
< 1 km	< 1 h	micro, petite échelle	turbulence

#### 1.1.3.1 Cycle diurne et variations synoptiques

Afin d'avoir en tête les processus gouvernant les variations naturelles du CO<sub>2</sub>, nous allons faire le lien entre le cycle diurne du carbone et les variations synoptiques de celui-ci.

Les variations de dioxyde de carbone atmosphérique sont majoritairement gouvernées par le comportement de la Couche Limite Atmosphérique (CLA) qui est la couche composant les premiers hectomètres de l'atmosphère. En effet, celle-ci constitue l'interface entre la surface terrestre et l'atmosphère et est l'aire de la plupart des sources et puits des polluants et notamment du CO<sub>2</sub>. La couche limite est variable spatialement et temporellement et elle est directement reliée aux paramètres météorologiques et à la topographie.

La CLA suit un cycle diurne (Fig.1. 4) qui agit directement sur la concentration de CO<sub>2</sub> et l'évolution concerne les différentes parties de la couche limite atmosphérique :

- La couche de surface : présente tout au long du cycle et en contact direct avec le sol et d'une épaisseur faible (10 % de la hauteur moyenne de la CLA).
- La couche mélangée : sous l'action du chauffage de la surface, des mouvements convectifs se développent ce qui provoque une dilution des composés gazeux.
- La zone d'entraînement : relativement peu épaisse (entre quelques dizaines et quelques centaines de mètres), elle constitue une zone d'échanges entre la couche convective et la couche résiduelle, la CLA et la troposphère libre.
- La couche résiduelle : en fin de journée et après disparition des thermiques.
- La couche nocturne : qui concentre les composés gazeux émis pendant la nuit .

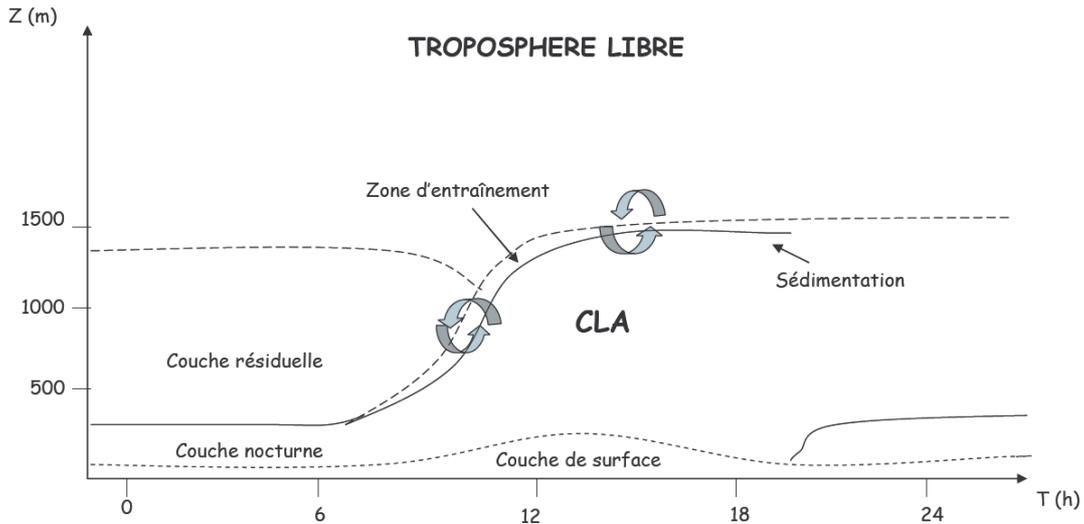


Fig.1. 4 : Evolution temporelle de la couche limite atmosphérique

Nous avons ici, détaillé les variations temporelles de la CLA à l'échelle d'une journée afin de décrire son cycle diurne.

De même, si nous raisonnons à une échelle synoptique, la hauteur de cette couche limite présente des hétérogénéités spatiales selon les conditions météorologiques. Ainsi, il existe une hétérogénéité de la structure horizontale de la couche limite (Fig.1. 5) :

- En conditions anticycloniques (haute pression), l'épaisseur de la CLA ne varie pas beaucoup spatialement sous l'effet du forçage thermique de la surface et il en résulte alors un cycle diurne bien défini, la CLA ayant alors des propriétés propres notamment en termes de concentration de composés.
- Dans les zones de basse-pression (conditions dépressionnaires), les courants ascendants des systèmes orageux entraînent l'air de la CLA vers les hautes altitudes. Les concentrations de CO<sub>2</sub> dans la CLA et dans la troposphère libre sont alors pratiquement identiques.

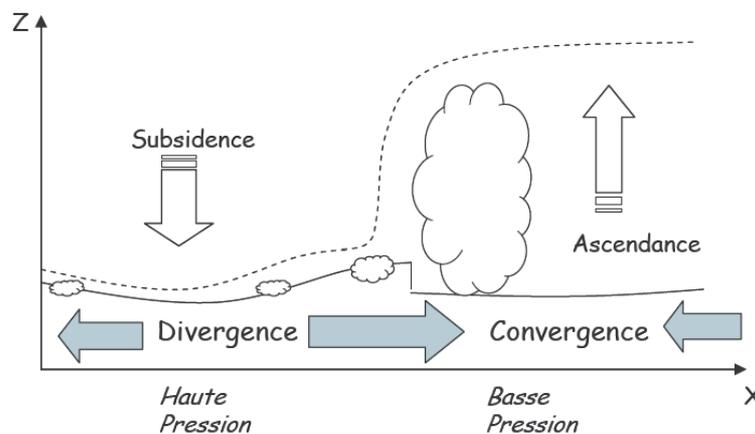


Fig.1. 5 : Variation spatiale de la hauteur de CLA en fonction des conditions synoptiques. (-) : hauteur de la CLA, (- -) : hauteur maximale d'air influencée par la surface

Les concentrations locales de CO<sub>2</sub> sont fortement influencées par les conditions météorologiques. Un front dépressionnaire peut engendrer des variations locales de concentration de CO<sub>2</sub> de l'ordre de plusieurs dizaines de ppm.

Une notion importante pour la compréhension de la variabilité des constituants de la basse atmosphère est la notion de stabilité ou d'instabilité verticale. La stratification verticale de l'atmosphère est liée à la thermodynamique et pour l'étudier, nous introduisons la notion de température potentielle  $\theta$ , d'unité le Kelvin et notée comme suit :

$$\theta(z) = T(z) \left( \frac{P_0}{P(z)} \right)^{R/C_p} \quad (1.1)$$

Avec  $P_0$  la pression de référence,  $C_p$  la capacité calorifique de l'air.

La température potentielle correspond à la température qu'aurait une parcelle d'air si on l'amenait adiabatiquement de sa pression  $P(z)$  à la pression  $P_0$ .

Nous définissons de plus la température potentielle virtuelle  $\theta_v$  comme la température potentielle prenant en compte les effets d'humidité :

$$\theta_v(z) = \theta(z)(1 + 0.61q) \quad (1.2)$$

Avec  $q$  l'humidité spécifique en g.kg<sup>-1</sup>

Pendant la nuit,  $\theta_v$  augmente dans les basses couches : il y a inversion de température (la température augmente avec l'altitude). La couche est stable. Dans la couche résiduelle,  $\theta_v$  est constant, la couche est neutre. Enfin, dans la troposphère libre, nous observons un gradient vertical positif et quasiment constant.

En matinée, le soleil commence à chauffer le sol et nous observons un gradient négatif de  $\theta_v$  en surface : la couche est alors instable et l'air s'élève en altitude par flottabilité. Au cours du temps, l'augmentation de l'ensoleillement entraîne une élévation progressive de la couche mélangée. Par des thermiques de plus en plus fortes la couche mélangée perce alors la couche résiduelle. Il y a alors érosion de la couche résiduelle par la couche convective.

En période convective, la concentration des divers constituants de la CLA, gaz et particules est alors homogène.

### **1.1.3.2 Représentativité temporelle**

Le cycle naturel du CO<sub>2</sub> est la somme des contributions biologiques et thermodynamiques.

Le cycle diurne biologique est divisé en trois phases :

- la nuit : la respiration est le seul processus biologique actif durant cette période. Ceci résulte en un apport quasi-constant de CO<sub>2</sub> dans la couche nocturne avec une faible variabilité due à la température. Le CO<sub>2</sub> émis en surface ne se disperse que très lentement à cause de la stratification verticale de la CLA.
- Le matin : deux processus biologiques sont en action, la photosynthèse et la respiration. A la fin de cette période, nous observons le taux de décroissance maximal de la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique.
- La journée : la diminution progressive du taux de décroissance du CO<sub>2</sub> atmosphérique marque le début du développement de la couche mélangée ; les basses couches de l'atmosphère se mélangent peu à peu avec les couches supérieures et en fin d'après midi, la concentration de CO<sub>2</sub> est homogène dans la CLA

Les perturbations de ce cycle sont alors de deux types :

- Les perturbations naturelles : elles sont le plus souvent liées à l'advection de masses d'air différentes. Le passage d'une masse d'air au-dessus d'un puits de CO<sub>2</sub>, comme une forêt, peut faire varier brusquement la concentration si le vent est amené à changer de direction au cours de la journée. Les conditions météorologiques peuvent provoquer une variation brutale de la concentration de CO<sub>2</sub> dans la CLA. Le passage d'un front dépressionnaire entraîne souvent une augmentation ou diminution de la concentration de la CLA par intrusion d'air provenant de la troposphère libre. La présence de lac, mer ou relief entraîne des processus de brises de terre-brise de mer ou plaine-montagne qui modifient la concentration en CO<sub>2</sub>.
- Les perturbations anthropiques : suivant la provenance de la masse d'air étudiée, la concentration du CO<sub>2</sub> atmosphérique peut varier de plusieurs dizaines de ppm. Les émissions anthropiques, industries et chauffage entraînent des variations majeures de la concentration de CO<sub>2</sub> pendant l'hiver. Des phénomènes de brises dus au gradient thermique ville/campagne sont aussi responsables du transport de CO<sub>2</sub>. Une autre variabilité temporelle importante est celle du trafic routier. Ainsi, durant les périodes de trafic maximal (8-10 h le matin et 18-20 h le soir) les émissions de CO<sub>2</sub> sont importantes et perturbent le cycle naturel. Cependant, l'influence de ces deux périodes n'est pas équivalente en termes de concentration de CO<sub>2</sub>. En effet, le matin les émissions anthropiques sont émises dans la couche nocturne de faible épaisseur alors que les émissions ayant lieu en soirée ont lieu dans la couche mélangée, lorsque la CLA a une hauteur maximale. Ainsi par effet de dispersion homogène dans la CLA, la concentration matinale est beaucoup plus prononcée qu'en soirée.

### 1.1.4 Sources et puits : mesures actuelles du CO<sub>2</sub> atmosphérique

A l'heure actuelle, il existe une centaine de stations de mesures in-situ (prélèvement d'air par flacon, spectromètre infrarouge ou chromatographie) du CO<sub>2</sub> atmosphérique réparties sur le globe terrestre, dont le site référence de Mauna Loa à Hawaï et un site d'observation localisé au pôle sud.

En parallèle à ce réseau, différentes campagnes de mesures ont lieu à bord de bateaux ou d'avions. La plupart de ces stations de mesure sont regroupées dans le réseau de mesure GLOBALVIEW-CO<sub>2</sub> de la NOAA/CMDL (Fig.1. 6).

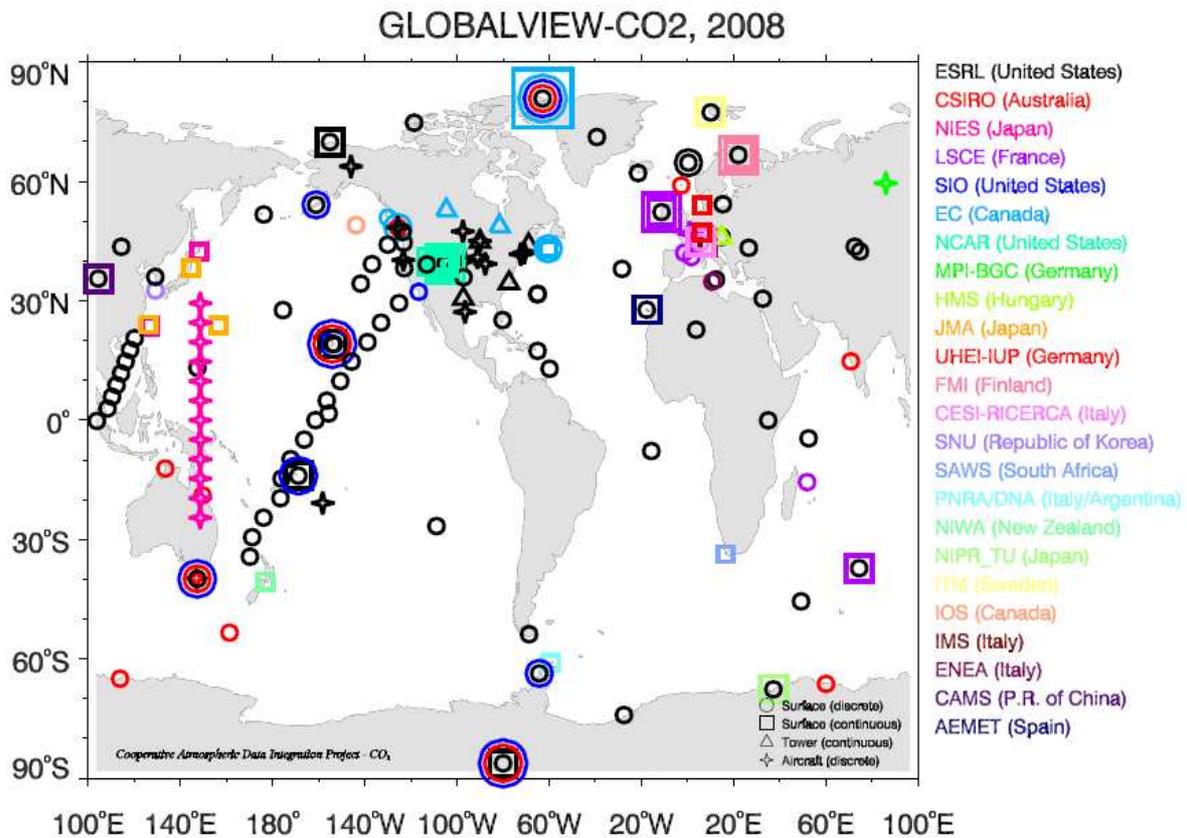


Fig.1. 6 : Cartographie du réseau de mesure GLOBALVIEW-CO<sub>2</sub>

Cependant, le réseau actuel de mesures comporte des limites pour la compréhension de la physique du CO<sub>2</sub> atmosphérique :

- La représentation verticale est quasi inexistante : en effet les mesures in-situ sont des mesures ponctuelles ne donnant pas accès à des profils verticaux. Seuls de rares profils verticaux sont effectués au cours de campagne de mesures
- La représentativité spatiale n'est pas homogène : en effet, la plupart des stations est situées dans l'hémisphère nord

Deux approches différentes peuvent être envisagées pour déterminer les sources et les puits de CO<sub>2</sub> à la surface terrestre : l'approche montante ou « up-scaling » ou « bottom-up » et d'autre part, l'approche descendante ou « top-down ».

#### **1.1.4.1 Méthodes de restitution des puits et des sources : approche montante ou « bottom-up »**

L'approche montante ou « bottom-up » consiste à effectuer des mesures de flux à petite échelle et à extrapoler les résultats aux échelles temporelles et spatiales supérieures.

Ces mesures de flux sont généralement estimées à partir de tours micro-météorologiques. Ces mesures de flux s'accompagnent d'études météorologiques, hydrologiques, de végétation et des sols.

Ainsi, peuvent alors être caractérisés les flux de CO<sub>2</sub>, de vapeur d'eau et d'énergie entre l'atmosphère et l'écosystème. Ce réseau de mesures est le réseau FLUXNET. En parallèle, les couvertures végétales d'une région peuvent être fournies par exemple par des observations spatiales.

Malheureusement, l'extrapolation à de plus grandes échelles conduit à des erreurs importantes sur la restitution des puits et des sources du fait notamment de la grande hétérogénéité spatiale et temporelle des flux de surface en fonction, du type d'écosystème considéré.

#### **1.1.4.2 Méthodes de restitution des puits et des sources : approche descendante ou « top-down »**

De manière générale, l'approche descendante ou « top-down » consiste à estimer les flux de surface du CO<sub>2</sub> par les mesures des variations spatiales et temporelles du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère.

Pour déterminer les flux aux différentes échelles spatiales et temporelles à partir des gradients de concentration (variables spatialement et temporellement), la restitution précise des flux de CO<sub>2</sub> par l'approche descendante sera donc liée à la précision des mesures mais aussi à la précision du modèle de transport atmosphérique utilisé pour analyser et restituer les flux.

En partant des effets (variabilité du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère), on remonte aux causes qui sont la distribution spatiale des sources et puits de CO<sub>2</sub>.

La faible couverture spatiale du réseau de mesure rend ce problème inverse sous contraint ce qui entraîne une prise en compte des phénomènes de transport sur de longues distances et donc de grandes incertitudes. De plus certains phénomènes comme le gradient vertical dans la couche limite atmosphérique sont encore mal pris en compte dans les modèles de transport.

Ces deux méthodes mettent en avant la nécessité de mesures précises (1 ppm) et plus denses (échelle spatiale de 50 km × 50 km) de concentrations de CO<sub>2</sub> atmosphérique pour une mesure de colonne intégrée pour contraindre les modèles climatiques [Miller 2007].

## 1.2. Apport d'une mesure active DIAL spatiale

### 1.2.1 Missions spatiales passives : concept et limitations

Au vu de ce qui a été énoncé précédemment, la mesure du CO<sub>2</sub> atmosphérique depuis l'espace est d'un grand intérêt. En effet, une couverture globale par satellite permettra de s'affranchir de l'hétérogénéité du réseau de mesures actuel. Nous pouvons espérer avoir accès à des contenus intégrés le long d'une colonne atmosphérique en lieu et place des mesures ponctuelles du réseau terrestre.

Bien qu'une mission spatiale ne puisse probablement pas atteindre le degré de précision d'une mesure effectuée par des capteurs in-situ, ceci peut être compensé par le grand nombre d'observations, spatialement distribuées de manière adéquate autour du globe.

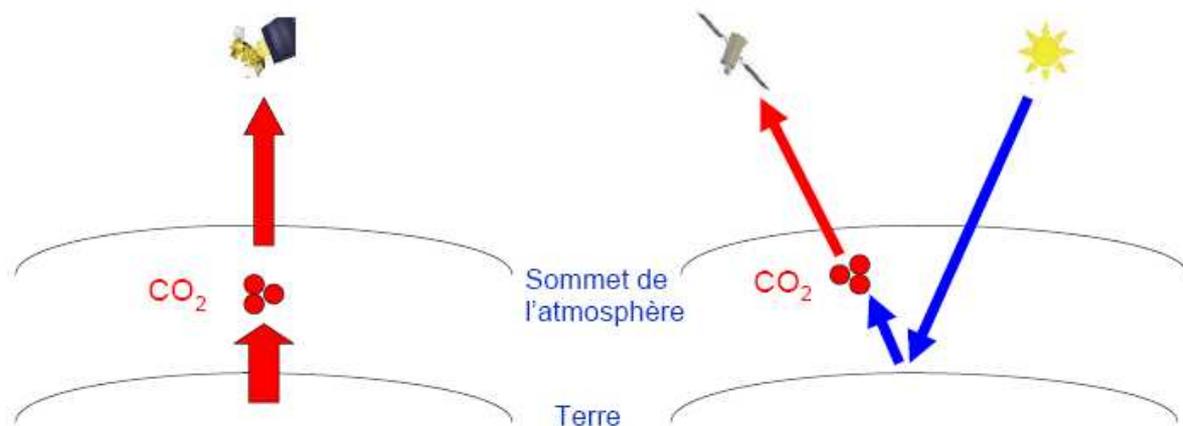
Plusieurs missions spatiales passives dédiées à l'observation du dioxyde de carbone sont actuellement opérationnelles. Ces missions fonctionnent dans l'infrarouge : AIRS, IASI ou dans le visible/proche-infrarouge : SCIAMACHY, GOSAT.

Pour chaque domaine spectral, une technique différente est utilisée : dans l'infrarouge thermique on étudie le rayonnement émis (spectroscopie d'émission) et dans le proche infrarouge on étudie le rayonnement solaire diffusé (spectroscopie d'absorption).

Malheureusement, les profils de concentration déduits de ces observations sont représentatifs de la moyenne et haute troposphère avec une très faible contribution de la couche limite. Il est alors très difficile de lier ces mesures de concentration à des flux de surface.

La spectroscopie d'absorption à 1.6µm et 2µm utilise des mesures à haute résolution spectrale de la lumière solaire réfléchiée. L'absorption est alors liée à la quantité d'espèces absorbantes dans l'atmosphère ce qui permet d'estimer sa concentration. Les mesures effectuées par le satellite SCIAMACHY ont été utilisées pour estimer des colonnes de concentration de CO<sub>2</sub>.

Cependant des comparaisons avec des mesures spectroscopiques FTIR (Fourier Transform InfraRed spectroscopy) montrent des biais de l'ordre de quelques ppm.



**Fig.1. 7 : Schéma de principe des mesures spatiales passives : sondage dans l'infrarouge thermique (gauche) et absorption différentielle dans l'IR (droite)**

La mission GOSAT (Greenhouse gases Observation SATellite) de la JAXA (Japan Aerospace Exploration Agency) dédiée à la mesure du CO<sub>2</sub> a été lancée début 2009. Ce satellite doit graviter sur une orbite polaire. GOSAT est aussi équipé d'un spectromètre thermique infrarouge pour des mesures jour/nuit.

La plus grosse contrainte pour les mesures passives est la nécessité de corriger la diffusion atmosphérique, en particulier par les aérosols et les nuages fins. Cette diffusion change le trajet atmosphérique qui doit pourtant être connu pour retrouver la concentration exacte de CO<sub>2</sub> atmosphérique. Ce phénomène peut induire des biais de quelques ppm. Le concept de mesure de GOSAT utilise un canal O<sub>2</sub> comme référence pour la mesure du trajet atmosphérique. Cependant les bandes d'absorption d'O<sub>2</sub> et du CO<sub>2</sub> étant très espacées spectralement, il subsiste une grande incertitude dans l'extrapolation (la diffusion étant sensible à la longueur d'onde). De plus, ces mesures passives ne peuvent mesurer de manière précise la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique que si l'angle zénithal solaire est inférieur à 70°, ce qui est une sérieuse limitation pour les zones de hautes latitudes de l'hémisphère nord où les flux peuvent être très importants durant la période hivernale.

### **1.2.2 Apport d'un sondage actif**

Une mesure de la concentration de CO<sub>2</sub> par LIDAR (LIght Detection And Ranging) repose sur une mesure DIAL (Differential Absorption Lidar). Nous définissons cette technique comme active car une source laser (et non plus naturelle comme c'est le cas pour une méthode passive) est utilisée pour sonder l'atmosphère. Les sources laser peuvent être de plusieurs types (continue, pulsée, modulée...). Le principe de cette mesure sera détaillé dans les sections suivantes.

En pratique, nous allons nous attacher ici à décrire les avantages d'une mission DIAL par rapport à une mission passive :

- mesures résolues par couche : l'écho de surface permet d'effectuer des contenus intégrés de rapport de mélange en CO<sub>2</sub> sur toute la colonne. De plus les nuages denses peuvent être utilisés pour effectuer des mesures partiellement résolues.
- Mesures jour / nuit : Un des très grands avantages d'un système actif sur un système passif proche IR est la possibilité d'effectuer des mesures de jour et de nuit (bien que pour un système spatial, ceci ne permette sûrement pas d'atteindre une précision suffisante pour étudier les processus nocturnes et le cycle diurne du CO<sub>2</sub>).
- Hautes et moyennes latitudes : de même que pour les mesures de nuit, un autre avantage d'une mesure active, dû à sa source de rayonnement propre, est de ne pas être limité par l'angle d'incidence du rayonnement solaire à la surface de la Terre. Ainsi, des mesures peuvent être effectuées aux hautes et moyennes latitudes.

- Sensibilité à la diffusion atmosphérique : une mesure LIDAR permet de différencier le signal rétrodiffusé par l'atmosphère de celui de l'écho de sol. Nous pouvons alors nous affranchir d'une des sources d'incertitudes majeures des mesures passives (diffusion du rayonnement solaire par les particules).

### **1.3. A-SCOPE**

La mission A-SCOPE (Advanced Space Carbon and Observation of Planet Earth) fait partie des six missions retenues par l'ESA (European Space Agency) dans le cadre des missions d'observation de la terre. Elle utilise le sondage actif DIAL de la colonne de CO<sub>2</sub> atmosphérique. Les caractéristiques d'orbite proposées sont les suivantes : orbite héliosynchrone à une altitude entre 325 et 400 km, lidar pointant avec un angle de 2° par rapport au nadir et mesures moyennées sur 50 km [ASCOPE].

Nous pouvons mettre en avant les différentes singularités de cette mission :

- A-SCOPE va augmenter de façon significative le nombre de mesures réalisées par rapport au réseau de mesures au sol d'au moins un ordre de grandeur en réalisant 100 000 observations en un mois. L'augmentation par rapport aux missions passives serait elle aussi d'un facteur de 2 ou 3 car, comme dit précédemment, une mission active ne serait ni limitée par la nuit, ni par l'angle zénithal solaire.
- De plus en échantillonnant l'atmosphère avec un seul et même instrument, A-SCOPE permettra de s'affranchir des problèmes de calibration entre les différents instruments du réseau sol.
- Cette mission spatiale serait très complémentaire du réseau sol dont les de mesures atteignent de très grandes précisions.
- La précision (1ppm) et le biais (0.1 ppm) des mesures ASCOPE les situent à un degré intermédiaire entre les mesures in-situ et celles de GOSAT (précision 4 ppm). De plus, à même degré de précision, les mesures de A-SCOPE seront peu ou pas biaisées contrairement à celles de GOSAT.

A-SCOPE est la seule mission étudiée à l'heure actuelle permettant de faire des mesures, toute-saisons, bi-journalières, toute latitude, haute précision de concentrations de CO<sub>2</sub> depuis l'espace. L'évolution des modèles d'inversion tendant vers une amélioration de la résolution spatiale, le besoin en observation à bonne résolution horizontale devient primordial. Pour améliorer notre compréhension du bilan carbone global, des estimations précises de flux annuels nets sont nécessaires. Afin de définir les sources et les puits, il est nécessaire de définir les flux annuels avec une incertitude inférieure à 0.02 GtC.an<sup>-1</sup> et une résolution spatiale de 1000 × 1000 km. Il faut noter que l'incertitude actuelle est plutôt de l'ordre de 0.05 GtC.an<sup>-1</sup>.

## **2. La mesure DIAL**

Le principe de la mesure LIDAR consiste à envoyer dans l'atmosphère une impulsion électromagnétique lumineuse de longueur d'onde  $\lambda$  et de durée  $\tau$  fournie par un laser. Les composants présents le long du trajet optique diffusent et absorbent celui-ci. Une partie de cette diffusion s'effectue en direction du LIDAR (dans le sens opposé à la propagation de l'impulsion laser). La rétrodiffusion peut avoir une longueur d'onde différente car un décalage de la fréquence laser initiale dû à l'effet Doppler qui est proportionnel à la vitesse radiale de la cible diffusante a lieu.

C'est l'analyse du signal rétrodiffusé qui permet de déterminer les paramètres atmosphériques (natures des composés atmosphériques présents, concentration d'un composé....) selon la technique LIDAR choisie. Un LIDAR est donc composé d'un émetteur (laser), de diverses optiques selon la technique LIDAR utilisée, d'un récepteur (téléscope), d'une détection et d'un traitement du signal.

Pour la mesure DIAL, le principe est d'émettre alternativement dans l'atmosphère deux longueurs d'onde différentes, l'une,  $\lambda_{ON}$ , correspondant à un positionnement spectral sur une raie d'absorption du composé à sonder, l'autre,  $\lambda_{OFF}$ , sur un domaine libre de toute absorption.

De manière intuitive, nous voyons donc que le rapport des puissances rétrodiffusées aux deux longueurs d'onde à chaque distance de propagation, nous donne accès la différence d'absorption entre les deux longueurs d'onde et ainsi au nombre de molécules absorbantes.

### **2.1. Interaction laser – atmosphère**

#### **2.1.1. Transmission**

Lors de la propagation d'un faisceau laser dans l'atmosphère, plusieurs processus physiques ont lieu entre l'impulsion lumineuse et les cibles atmosphériques. Les cibles désignent d'une manière générale les différents composés présents sur le trajet du faisceau lumineux. Nous distinguerons d'une part les particules que sont les aérosols naturels ou anthropiques en suspension dans l'air, les hydrométéores (gouttes d'eau, cristaux de glace), et les molécules de l'air.

L'interaction du faisceau laser avec l'atmosphère est régie par la nature et la géométrie de la cible et par la longueur d'onde de l'impulsion laser.

Lors de son parcours dans l'atmosphère, la radiation lumineuse est atténuée par deux processus, la diffusion et l'absorption. Ainsi, nous définissons un coefficient d'atténuation à la longueur d'onde  $i$ ,  $\alpha_i$ , somme du coefficient d'absorption  $\alpha_{a,i}$  et du coefficient de diffusion  $\alpha_{\beta,i}$  à la distance  $R$

$$\alpha_i(R) = \alpha_{\beta,i}(R) + \alpha_{a,i}(R) \quad (1.3)$$

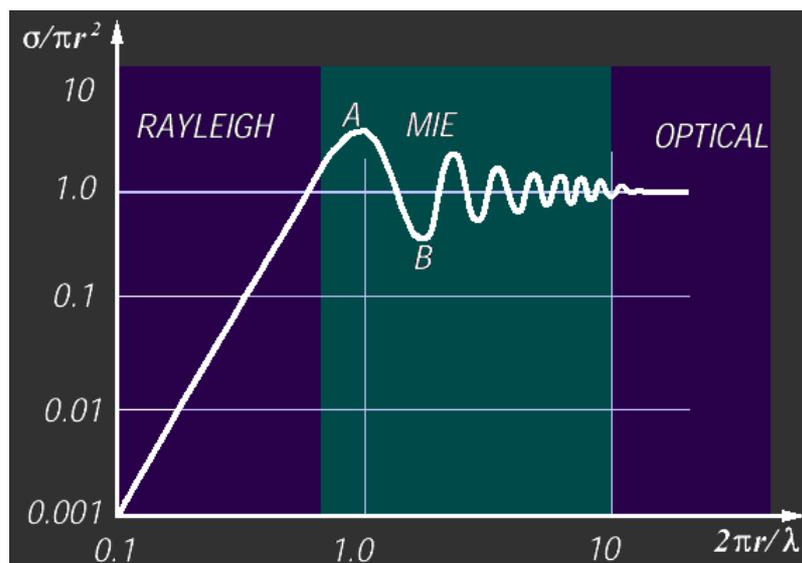
La transmission atmosphérique le long du trajet optique est alors l'intégrale du coefficient d'atténuation sur toute cette distance et est donnée par :

$$T_i(R) = \exp\left(-\int_0^R \alpha_i(r) dr\right) \quad (1.4)$$

### 2.1.2. Diffusion

Pour qu'un processus de diffusion soit efficace, il faut que la taille (caractéristique) du diffuseur soit de l'ordre de grandeur ou supérieure à la longueur d'onde de la radiation lumineuse incidente. La répartition de la diffusion dans toutes les directions de l'espace est alors donnée par une « indicatrice de diffusion » dépendant du régime de diffusion. Nous ne nous intéressons qu'aux régimes de diffusion élastique (la longueur d'onde diffusée est la même que l'incidente) : diffusion dite Rayleigh et Mie. Les processus inélastiques comme la diffusion Raman ne seront pas abordés.

Les molécules gazeuses contenues dans l'atmosphère ont des tailles caractéristiques de quelques Angström, très petites devant les longueurs d'onde laser utilisées en LIDAR (quelques microns). Dans ce cas, nous nous trouvons dans un processus de diffusion dit, de Rayleigh régié par une loi en  $\lambda^{-4}$  (le signal moléculaire diffusé à 2 microns est par exemple 256 fois inférieur à celui diffusé à 0.5 microns). Dans le cas des particules, celles-ci ont une taille caractéristique de l'ordre de plusieurs microns, comparable aux longueurs d'onde laser. Si nous considérons des particules sphériques, c'est la théorie de Mie qui décrit le processus de diffusion. Le rayonnement diffus exhibe alors une dépendance spectrale en  $\lambda^{-\alpha}$ , avec  $\alpha$  coefficient d'Angström qui varie ( $1.2 < \alpha < 2.5$ ) selon la taille des particules. Nous nous trouvons dans un cas typique de la diffraction de Fraunhofer. Pour les très grosses particules on utilise l'optique géométrique (Fig.1. 8).



**Fig.1. 8 : Différents régimes de diffusion optique en fonction du rapport : taille caractéristique de la particule / longueur d'onde**

Quelque soit le type de diffuseurs microscopiques, le coefficient d'extinction total  $\alpha_i$  peut s'exprimer par la théorie de Rayleigh-Mie pour des composés sphériques :

$$\beta_i(\theta) = \int_{\text{diffuseurs}} \pi r^2 Q_\theta(r, \theta) N(r) dr \quad (1.5)$$

$$\alpha_i = \int_{\text{diffuseurs}} \pi r^2 Q_{ext}(r) N(r) dr \quad (1.6)$$

avec  $Q(r, \theta) = \frac{1}{\pi r^2} \frac{d\tilde{\sigma}_\beta(r, \theta)}{d\Omega}$  l'efficacité de Mie dans la direction  $\theta$ ,  $\frac{d\tilde{\sigma}_\beta(r, \theta)}{d\Omega}$  la section efficace différentielle de diffusion et  $N(r)dr$  la densité de particules ayant un rayon compris entre  $r$  et  $r+dr$

$Q_{ext}(r) = \frac{\tilde{\sigma}_{ext}}{\pi r^2}$  est l'efficacité totale d'extinction de Mie (diffusion)

La partie de ce signal qui correspond à la rétrodiffusion est donc pour  $\theta=\pi$ .

Le coefficient de rétrodiffusion atmosphérique (noté par la suite  $\beta$ ) est la somme d'une contribution particulaire  $\beta_{p,i}$  et d'une contribution moléculaire  $\beta_{m,i}$  :

$$\beta_i(R) = \beta_{m,i}(R) + \beta_{p,i}(R) \quad (1.7)$$

### 2.1.3. Absorption

Une molécule peut absorber un photon de fréquence particulière pour transiter d'un état d'énergie quantifiée à un autre. Le coefficient d'absorption  $\alpha_{a,i}(\text{m}^{-1})$  est lié à la section efficace d'absorption de la transition  $\sigma_{a,j}(\text{m}^2)$  :

$$\alpha_{a,i} = \int \tilde{\sigma}_{a,i}(r) N(r) dr \quad (1.8)$$

Le spectre d'absorption d'un composé représente donc le spectre de transitions électroniques (visible et UV), de vibration-rotation (proche et moyen infrarouge) et rotation (infrarouge lointain et micro-ondes). De même, ces raies sont élargies par différents processus comme l'effet Doppler et les collisions entre molécules. Ces considérations spectroscopiques seront plus précisément développées dans le Chapitre II.

Afin d'effectuer un sondage du CO<sub>2</sub> atmosphérique, nous devons localiser les différentes bandes d'absorption (Tab.1. 2).

**Tab.1. 2 : Bandes d'absorption du CO<sub>2</sub> atmosphérique et sections efficaces des raies correspondantes**

$\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	1.5-1.6	2.0-2.1	2.6-2.8	4.6	10	14-15
$\sigma$ ( $\text{cm}^2$ )	$10^{-23}$ - $10^{-22}$	$10^{-22}$ - $10^{-21}$	$10^{-21}$ - $10^{-20}$	$10^{-19}$	$10^{-23}$ - $10^{-22}$	$10^{-19}$

## 2.2. L'équation LIDAR

La mesure du signal rétrodiffusé se fait en collectant les ondes lumineuses par un télescope. Le signal est ensuite envoyé sur une chaîne de détection.

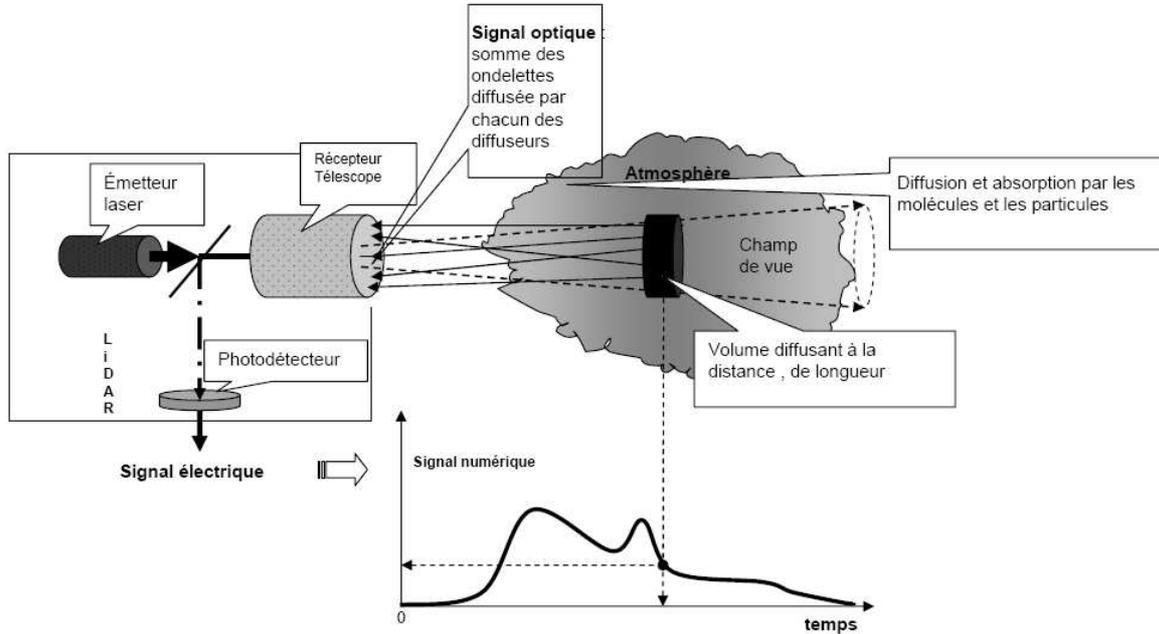


Fig.1. 9 : Schéma de principe de base d'un LIDAR

Le nombre de photons moyen incidents sur le photodétecteur  $N_{\delta R, i}$  à la longueur d'onde  $i$  pendant le temps  $\delta t = 2\delta R/c$  est donné par le produit de convolution entre le coefficient de rétrodiffusion  $\beta$  et une fonction  $G$ , elle-même produit de convolution entre la durée d'impulsion et le temps de réponse du détecteur. Nous pouvons voir de même que dans le cas d'un LIDAR impulsionnel, la durée de l'impulsion entraîne une ambiguïté en distance, le signal reçu à l'instant  $t_0$  étant dû à la contribution du signal à deux distances  $R$  distinctes. Ceci est schématisé sur la figure suivante (Fig.1. 10)

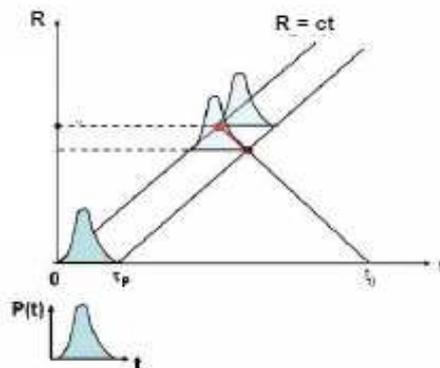


Fig.1. 10 : Diagramme temporel d'un LIDAR impulsionnel

Dans le cas d'une émission monochromatique de longueur d'onde  $i$  :

$$N_{\delta R, i} = \frac{\eta_0 E_i A}{h\nu} \left( G \otimes \frac{T_i^2(R) \beta(R)}{R^2} \right) \quad (1.9)$$

Où  $\otimes$  est le produit de convolution sur  $R$

$E_i$  est l'énergie émise à la longueur d'onde  $i$

$h\nu$  est l'énergie d'un photon

$\eta_0$  est la transmission optique de l'instrument y compris le rendement quantique

$A$  est la surface collectrice du télescope

$T_i$  est la transmission atmosphérique pour un simple trajet pour chaque longueur d'onde

La largeur temporelle à mi-hauteur de la fonction  $G$  peut s'écrire :

$$\delta R_G = \frac{c}{2} \sqrt{\delta t_p^2 + \delta t_R^2} \quad (1.10)$$

où  $\delta t_p$  est la largeur temporelle de l'impulsion et  $\delta t_R$  est le temps d'intégration à la réception. En supposant une impulsion courte telle que  $\delta R_G \ll R$ , nous pouvons alors simplifier l'équation.

En dehors de toute absorption, le produit de convolution peut alors s'écrire :

$$G \otimes \frac{T^2(R) \beta(R)}{R^2} \approx \frac{T^2(R)}{R^2} \int_{R-\delta R_G/2}^{R+\delta R_G/2} \beta(R') \exp(-2\alpha(R')) dR' \quad (1.11)$$

où  $R$  est la distance moyenne de la porte de mesure considérée ( $R \gg \delta R_G$ )

Nous pouvons effectuer l'analyse par petites couches atmosphériques et considérer un coefficient de rétrodiffusion homogène sur cette même porte  $\delta R_G$  et en considérant un rapport  $\beta/\alpha$  constant :

$$G \otimes \frac{T^2(R) \beta(R)}{R^2} \approx \frac{T^2(R)}{R^2} \frac{\beta(R)}{2\alpha(R)} (1 - \exp(-2\alpha(R) \delta R_G)) \quad (1.12)$$

Dans ces conditions d'air clair, nous avons habituellement  $\alpha \delta R_G \ll 1$ , d'où :

$$G \otimes \frac{T^2(R) \beta(R)}{R^2} \approx \frac{T^2(R)}{R^2} \beta(R) \delta R_G \quad (1.13)$$

Et le nombre moyen de photons incidents sur le détecteur devient :

$$N_{\delta R, i} = \frac{\eta_0 E_i A}{h\nu} \frac{T^2(R)}{R^2} \beta(R) \delta R_G \quad (1.14)$$

A partir de l'équation (1.14), la puissance optique moyenne dans une porte de mesure  $\delta R_G$ , du signal rétrodiffusé par une tranche d'atmosphère de profondeur  $\delta R$ , peut être exprimée de la manière suivante :

$$P_i(R) = \eta_0 \beta_i(R) \frac{Ac}{2R^2} E_i \exp[-2(\tau_i(0, R) + \tau_i^0(0, R))] \quad (1.15)$$

Où  $\tau_i(R)$  est l'épaisseur optique intégrée due à l'absorption du constituant de l'atmosphère  $i$ .

$$\tau_i^0(0, R) = \int_0^R n(r) \tilde{\sigma}_i(r) dr \quad (1.16)$$

Où  $\sigma_i(R)$  est la section efficace de la raie d'absorption à la longueur d'onde  $i$ ,  $n(R)$  est la densité du gaz mesuré et  $\tau_i^0(R)$  est l'épaisseur optique correspondante à l'extinction et à l'absorption à la longueur d'onde  $i$  mais en excluant l'absorption du gaz mesuré.

$$\tau_i^0(0, R) = \int_0^R \alpha_{\beta,i}(r) + \alpha_{a,i}(r) dr \quad (1.17)$$

Nous pouvons mettre l'équation (1.15) sous forme réduite :

$$P_i(R) = K_i(R) E_i \exp[-2\tau_i(0, R)] \quad (1.18)$$

avec  $K_i(R) = \eta_0 \beta_i(R) \frac{Ac}{2R^2} \exp[-2\tau_i^0(0, R)]$

### 2.3. La mesure DIAL

Comme expliqué précédemment, un schéma d'opération DIAL requiert l'émission de deux longueurs d'onde :  $\lambda_{ON}$  située sur une raie d'absorption du composé et  $\lambda_{OFF}$  (libre de toute absorption). Les deux longueurs d'onde sont alternativement émises vers l'atmosphère.

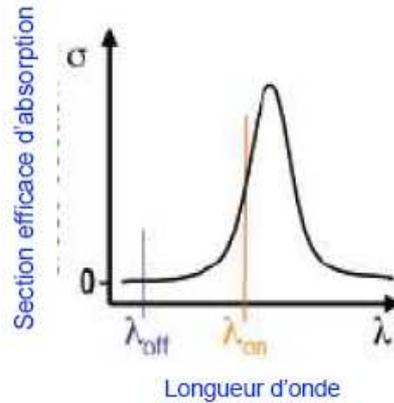


Fig.1. 11 : Principe de la mesure DIAL

En utilisant l'équation précédente (1.18),

$$\frac{P_{ON}(R)}{P_{OFF}(R)} = \frac{K_{ON}(R)}{K_{OFF}(R)} \frac{E_{ON}}{E_{OFF}} \exp[-2(\tau_{ON}(0, R) - \tau_{OFF}(0, R))] \quad (1.19)$$

Si les deux longueurs d'onde ON et OFF sont assez proches, alors nous pouvons considérer les termes de rétrodiffusion et d'extinction à ces deux longueurs d'onde comme étant égaux. Si les gains à ces deux longueurs d'onde sont eux aussi égaux, alors  $K_{OFF} = K_{ON} = K$ , et :

$$\tau(0, R) = \frac{1}{2} \ln \left( \frac{P_{OFF}(R)E_{ON}}{P_{ON}(R)E_{OFF}} \right) \quad (1.20)$$

Et  $\tau = \tau_{ON} - \tau_{OFF}$  est l'épaisseur optique différentielle intégrée entre l'instrument et une couche atmosphérique d'épaisseur  $\delta R$  située à la distance  $R$  du lidar, et due uniquement à l'absorption du composé atmosphérique sondé.

Nous pouvons réécrire cette équation à l'aide de l'équation (1.16), en fonction des paramètres spectroscopiques.

$$\tau(0, R) = \int_0^R \rho_{CO_2}(r) n_a(r) (\tilde{\sigma}_{ON}(r) - \tilde{\sigma}_{OFF}(r)) dr \quad (1.21)$$

Où  $\rho_{CO_2}(R)$  est le rapport de mélange en CO<sub>2</sub> à la distance  $R$  et où  $\tilde{\sigma}_{ON}$  et  $\tilde{\sigma}_{OFF}$  sont les sections efficaces d'absorption aux longueurs d'onde ON et OFF et  $n_a$  est la concentration moléculaire en air sec :

$$n_a(R) = \frac{p(R)}{kT(R)} \frac{1}{1 + \rho_w(R)}$$

Avec  $p$  et  $T$  la pression et la température,  $\rho_w$  le rapport de mélange en vapeur d'eau et  $k$  la constante de Boltzmann.

En combinant les rapports des puissances rétrodiffusées données par l'équation (1.19), aux extrémités de la tranche d'atmosphère sondée ( $R - \delta R$  et  $R$ ), nous obtenons l'épaisseur optique différentielle locale :  $\delta\tau(R - \delta R, R) = \delta\tau_{ON}(R - \delta R, R) - \delta\tau_{OFF}(R - \delta R, R)$

$$\delta\tau(R - \delta R, R) = \frac{1}{2} \ln \left[ \frac{P_{ON}(R - \delta R) P_{OFF}(R)}{P_{ON}(R) P_{OFF}(R - \delta R)} \right] \quad (1.22)$$

Cette épaisseur optique est liée à la concentration en CO<sub>2</sub> par :

$$\delta\tau(R - \delta R, R) = \int_{R - \delta R}^R \rho_{CO_2}(r) \cdot n_a(r) \cdot (\tilde{\sigma}_{ON}(r) - \tilde{\sigma}_{OFF}(r)) dr \quad (1.23)$$

Nous obtenons alors dans une tranche d'atmosphère comprise entre  $R - \delta R$  et  $R$  :

$$\bar{\rho}_{CO_2}(R - \delta R, R) = \frac{\delta\tau(R - \delta R, R)}{\int_{R - \delta R}^R WF(r) dr} \quad (1.24)$$

En utilisant la fonction de poids calculée entre  $R - \delta R$  et  $R$

$$WF(r) = n_a(r) (\tilde{\sigma}_{ON}(r) - \tilde{\sigma}_{OFF}(r)) dr \quad (1.25)$$

### **2.3.1. Mesures résolues**

A l'aide d'un LIDAR DIAL, nous pouvons réaliser des mesures de concentration d'un composé, résolues en distance.

Ceci est effectué en utilisant le signal rétrodiffusé par les particules et les aérosols dans une couche d'atmosphère. La taille de cette couche est définie par la durée de la porte d'analyse temporelle,  $\delta t_r$ , de la manière suivante :  $\delta R = c/2 \delta t_r$ .

La distance  $R$  de la couche diffusante est donnée par le délai entre l'émission et la réception de l'impulsion ( $t-t_0$ ) :  $R=c/2(t-t_0)$ .

La couche atmosphérique peut être considérée suffisamment fine pour que la fonction de poids  $y$  soit considérée constante.

A partir de cette épaisseur optique locale, nous pouvons déduire le rapport de mélange dans cette couche atmosphérique :

$$\bar{\rho}_{CO_2}(R - \delta R/2, R + \delta R/2) \approx \frac{\delta \tau(R - \delta R/2, R + \delta R/2)}{WF(R)\delta R} \quad (1.26)$$

Théoriquement, c'est ce type de mesure que nous visons avec une résolution verticale, la plus grande qu'il soit. Cependant, d'un point de vue pratique, et selon le système utilisé, afin d'avoir une réduction de l'erreur statistique, il est nécessaire d'intégrer le signal et ainsi réduire la résolution verticale.

De plus dans le cas d'une mesure spatiale, ce type de mesures résolues apparaît encore impossible à mettre en place. En effet la portion de signal diffusé par les particules atmosphériques paraît bien trop faible pour pouvoir envisager une propagation sur de nombreux kilomètres. Ce type de mesures peut actuellement plutôt être envisagé sur une petite distance de mesures pour un LIDAR au sol.

### **2.3.2. Mesures intégrées**

Le LIDAR DIAL nous permet d'une autre manière d'effectuer des mesures intégrées. Ceci signifie que nous allons évaluer le contenu intégré dans une colonne d'air entre l'émetteur et une cible (atmosphérique ou non). Cette méthode conduit à une mesure du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> moyenné sur toute la colonne atmosphérique entre l'instrument et la cible diffusante.

Dans le cas d'une mesure spatiale ou aéroportée, nous utiliserons l'écho provenant de la surface pour réaliser une mesure intégrée depuis le satellite ou l'avion.

Nous pouvons de même utiliser des nuages opaques. Ceci peut notamment permettre de discriminer les rapports de mélange moyens au-dessus et en-dessous du nuage en la couplant à une mesure totale de la colonne.

En utilisant la fonction de poids exprimé par l'équation (1.23)

$$\bar{\rho}_{CO_2}(0, R) = \frac{\tau(0, R)}{\int_0^R WF(r) dr} \quad (1.27)$$

Cette mesure est plus évidente à réaliser qu'une mesure résolue. En effet, la cible utilisée (surface, nuage ou quelconque autre cible topographique) permet d'obtenir un fort rapport signal à bruit en comparaison des particules atmosphériques.

Dans le cas d'une telle mesure, la puissance aux longueurs d'onde ON et OFF,  $P_{ON/OFF}$  est aussi directement liée à la réflectivité de la cible  $\rho$  comme suit :

$$P_{ON/OFF} = \frac{PAq}{R^2} \frac{\rho_{ON/OFF} \cos \theta}{\pi} T_{ON/OFF}^2 \quad (1.28)$$

Avec  $q$  le rendement quantique du détecteur,  $\theta$  l'angle de divergence de l'émission laser et  $\rho_{ON/OFF}$ , la réflectivité à la longueur d'onde ON ou OFF.

## 2.4. Différents modes de détection

Deux modes de détection peuvent être employés dans le cas d'une mesure DIAL : la détection directe et la détection hétérodyne. Nous allons ici décrire ces deux modes qui impliquent de nombreuses différences notamment dans le traitement du signal.

### 2.4.1. Détection directe

Dans un schéma de détection directe, la puissance optique mesurée par le détecteur est directement la puissance du signal rétrodiffusé. :

$$P_{opt}(t) \propto |E(t)|^2 \quad (1.29)$$

Ou  $E(t)$  est le champ magnétique du signal rétrodiffusé. Le courant en détection directe prend alors la forme :

$$i_D(t) = \frac{\eta e}{h\nu} P_{opt}(t) \quad (1.30)$$

Ou  $\eta$  est l'efficacité quantique du détecteur,  $e$  la charge élémentaire de l'électron et  $h$  la constante de Planck ainsi que  $\nu$  la fréquence centrale de l'impulsion.

### 2.4.2. Détection hétérodyne

Ce mode de détection repose sur le mélange optique de l'onde rétrodiffusée avec celle issue d'un oscillateur local continu sur un détecteur quadratique.

La fréquence de l'oscillateur local est décalée de quelques dizaines de MHz par rapport à la fréquence de l'émission émise dans l'atmosphère.

Si deux ondes (signal et OL) de même état de polarisation et définis par leurs champs électromagnétiques respectifs  $E$  et  $E_{OL}$  se superposent au niveau du détecteur, alors la puissance optique totale incidente est définie par :

$$P_{opt} \propto \langle E(t) + E_{OL}(t) \rangle \langle E^*(t) + E_{OL}^*(t) \rangle \quad (1.31)$$

Ainsi, le courant hétérodyne délivré s'écrit :

$$i_H(t) = \frac{\eta e}{h\nu} P_{opt}(t) \quad (1.32)$$

Où  $\eta$  est l'efficacité quantique du détecteur :

$$i_H(t) = \frac{\eta e}{h\nu} \left[ P(t) + P_{OL} + 2\sqrt{\gamma_H P(t)P_{OL}} \cos(2\pi\nu_H t + \phi) \right] \quad (1.33)$$

Où  $P(t) = E(t) \cdot E^*(t)$  et  $P_{OL} = E_{OL} \cdot E_{OL}^*$  sont respectivement les puissances des rayonnements rétrodiffusée et OL,  $\gamma_H$  est le rendement hétérodyne qui peut être vu comme une grandeur rendant compte de la qualité du mélange entre les ondes rétrodiffusé et OL.

$\nu_H = \nu - \nu_{OL} + \Delta\nu_D$  est la fréquence de battement du signal hétérodyne c'est-à-dire la différence de fréquence entre le signal rétrodiffusé et l'oscillateur local additionné au déplacement en fréquence dû à l'effet doppler  $\Delta\nu_D$ , et  $\phi = \phi_R - \phi_{OL}$  est la différence de phase entre ces deux même ondes.

Après filtrage de la composante continue, le courant hétérodyne s'écrit alors

$$i_H(t) = 2 \frac{\eta e}{h\nu} \sqrt{\gamma_H P(t)P_{OL}} \cos(2\pi\nu_H t + \phi)$$

La puissance optique moyenne est lors donné (dans une porte de mesure) par la moyenne du carré du signal. Le rendement hétérodyne  $\gamma_H$  doit pouvoir être supposé constant dans cette porte.

$$i_H^2(t) = 2 \frac{\eta e}{h\nu} \gamma_H P(t)P_{OL} \quad (1.34)$$

### 3. Sélection de la raie d'absorption du CO<sub>2</sub> pour une mesure spatiale

Un des problèmes majeurs pour la mise en place d'une future mesure DIAL du CO<sub>2</sub> depuis l'espace est la sélection d'une raie d'absorption adéquate pour effectuer la mesure et réduire l'erreur statistique.

La sélection d'une raie appropriée est liée à cinq critères majeurs :

- la disponibilité de sources laser atteignant les spécifications requises en terme de puissance (ou énergie), de propriétés spectrales et de qualité de faisceau à cette longueur d'onde particulière.
- le fait que cette raie ne subisse pas d'interférences avec des raies d'absorption d'autres composés.
- que cette raie minimise la sensibilité à la température de la mesure.
- une épaisseur optique optimale de la raie le long du trajet de mesure pour minimiser l'erreur statistique.
- une grande sensibilité aux plus basses couches atmosphériques pour observer les gradients de concentration liés aux flux de surface du CO<sub>2</sub> : optimisation de la fonction de poids (nécessité qu'elle soit maximale dans les basses couches de l'atmosphère).

En excluant le domaine à 14 μm, quatre régions spectrales peuvent être envisagées pour sonder le dioxyde de carbone dans l'infrarouge (cf. **Tab.1. 2**) : 1.6 μm, 2 μm, 4.6 μm and 10 μm. Le processus de sélection de la raie est représenté dans le tableau suivant (**Tab.1. 3**). Le processus est un processus verticalement décroissant dans le tableau.

A partir d'études précédentes [FACTS 2005, Ehret 2008], nous pouvons alors sélectionner la raie la plus appropriée en vue d'un sondage spatial actif du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

**Tab.1. 3 : Schéma du processus de sélection de la raie pour une mesure DIAL CO<sub>2</sub> spatiale**

	<i>Bande à 10 μm</i>	<i>Bande à 4.6 μm</i>	<i>Bande à 2 μm</i>	<i>Bande à 1.6 μm</i>
<i>Source laser</i>	<i>OUI</i>	<i>OUI</i>	<i>OUI</i>	<i>OUI</i>
<i>Raies sans interférences</i>	<i>NON</i>	<i>NON</i>	<i>OUI</i>	<i>OUI</i>
<i>Minimisation de la sensibilité en température</i>			<i>raie R 30 de la bande (20<sup>0</sup>1)<sub>III</sub> ← (000)</i>	<i>raies R 18 et R 28 de la bande (30<sup>0</sup>1)<sub>II</sub> ← (000)</i>
<i>Epaisseur optique adéquate</i>			<i>aile de la raie R 30</i>	<i>pied de la raie R 18 et centre de raie R 28</i>
<i>Fonction de poids adéquate</i>			<i><b>aile de la raie R 30</b></i>	<i>NON</i>

### **3.1. Sources laser**

Selon le mode de détection choisi (direct ou hétérodyne, deux schémas différents d'émission pulsée peuvent être considérées : un mode à faible taux de répétition (10-100 Hz) et haute énergie (quelques dizaines de mJ), approprié pour la détection directe, et un mode à haute fréquence (10 kHz) et faible énergie (0.1-1 mJ) pour la détection hétérodyne [Bruneau 2006, Ehret 2008]. En détection directe, le rapport signal à bruit (SNR : Signal to Noise Ratio) est dominé par le bruit radiométrique et de signal de telle manière que l'énergie de l'émission doit être grande pour améliorer le SNR. En détection hétérodyne, le SNR est limité par les tavelures temporelles (Chapitre IV) et une énergie modérée est suffisante tant que nous multiplions le nombre de tirs moyennés (grande fréquence de répétition).

Au regard des développements technologiques laser, la région spectrale à 10 microns est accessible à l'aide de lasers CO<sub>2</sub> ou de lasers à cascade quantique. Ainsi, des radiations à 4.6 µm peuvent être obtenues par doublage de fréquence des sources 10 microns [Bufton 1983]. Malgré tout, l'efficacité et l'accordabilité de telles sources, sont, de nos jours, assez faibles en vue par exemple d'une mesure depuis une plateforme satellite, même si de nouveaux développements (sources paramétriques) sont à l'étude. De plus ces domaines spectraux restent relativement pollués par les raies de vapeur d'eau. Ces domaines spectraux sont donc rejetés pour de futures applications spatiales.

L'étude suivante se focalisera donc sur les domaines spectraux à 1.6 et 2 µm où des technologies permettent d'accéder aux spécifications requises [Koch 2008, Yu 2006, Raybaut 2009, Amediek 2008, Sakaizawa 2009].

### **3.2. Transmission atmosphérique**

Un autre critère important pour la sélection d'une raie d'absorption de mesure DIAL est l'absence d'interférences entre espèces atmosphériques. La vapeur d'eau est le composé principal présentant des raies d'absorption dans les régions spectrales d'intérêt. En utilisant les bases de données spectroscopiques atmosphériques (HITRAN 04 [Rothman 2005]), nous pouvons calculer la transmission atmosphérique simple-passage incluant un rapport de mélange en CO<sub>2</sub> de 370 ppm. D'autres espèces telles que CH<sub>4</sub> (1.7 ppm sur toute l'atmosphère) et CO (200 ppb dans la CLA, 150 ppb dans la troposphère libre et 50 ppb dans la stratosphère) sont aussi incluses dans le calcul.

$$T_i = 1 - (\exp(-\tau_i)) \quad (1.35)$$

Où l'indice  $i$  représente les différents constituants de l'atmosphère considérés,  $z$  étant l'altitude et  $\tau_i$  est l'épaisseur optique différentielle due à l'absorption de ce même constituant  $i$  :

$$\tau_i = \int_L \rho_i(z) WF_i(z) dz \quad (1.36)$$

Où  $L$  est une distance donnée fixe entre le satellite et le sol et la fonction de poids étant donnée par :

$$WF_i(z) = n_a(z) \tilde{\sigma}_i(z) \quad (1.37)$$

Les transmissions  $T_i$  pour CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O sont représentées (**Fig.1. 12**).

Dans le domaine à 1.6  $\mu\text{m}$ , les raies sont relativement libres de toute interférence et de ce fait beaucoup sont des candidates potentielles pour un sondage DIAL. Une faible absorption due au CH<sub>4</sub> a lieu entre 6170 et 6180  $\text{cm}^{-1}$  à l'extrémité de la bande d'absorption. Une très faible absorption ( $<10^{-3}$ ) due au CO est aussi présente sur quelques raies dans le domaine 6290-6390  $\text{cm}^{-1}$ . Elles peuvent être facilement évitées.

Le domaine à 2  $\mu\text{m}$ , et plus particulièrement la bande 4900-5000  $\text{cm}^{-1}$  est très contaminée par l'absorption due à la vapeur d'eau. Seules quelques raies peuvent être sélectionnées pour une mesure DIAL du CO<sub>2</sub>. Le domaine à 2.7  $\mu\text{m}$  ne peut pas être utilisé car il est complètement obscurci par l'absorption de la vapeur d'eau.

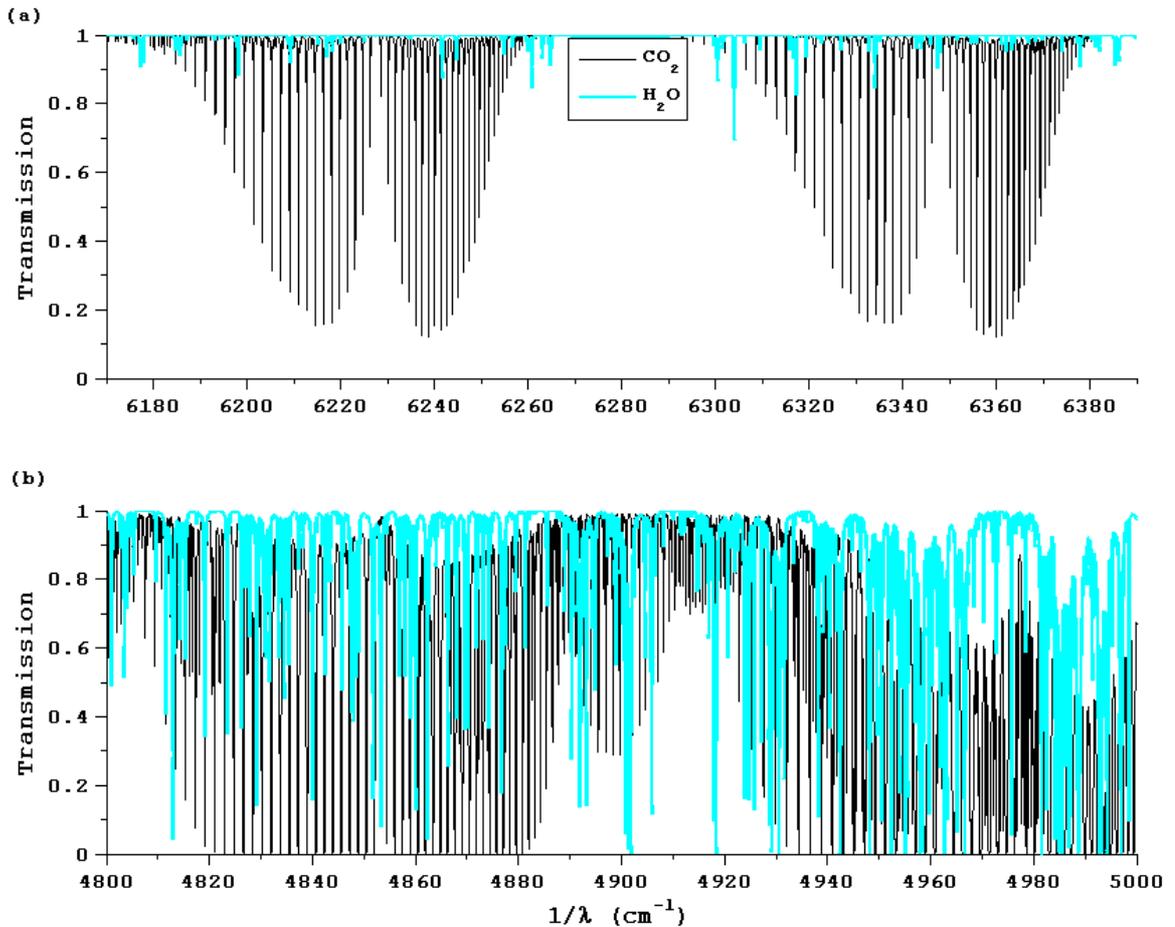


Fig.1. 12 : Transmissions atmosphériques dans les domaines à 1.6  $\mu\text{m}$  (a) et 2  $\mu\text{m}$  (b)

### 3.3. Sélection du niveau d'énergie fondamental

L'énergie du niveau fondamental de la transition affecte la dépendance en température de la force de raie et ainsi de la mesure DIAL. Une connaissance imparfaite du profil de température le long du trajet de mesure du faisceau laser devient une source de biais régionaux sur une mesure DIAL. Pour cette raison, nous devons trouver l'énergie du niveau fondamental qui minimise la dépendance en température.

Pour dériver la sensibilité à la température de la mesure du rapport de mélange, nous pouvons utiliser une expression simplifiée de la fonction de poids qui suppose qu'il n'y pas de vapeur d'eau dans l'atmosphère et pas d'absorption off-line à partir des équations (1.25) et (1.27) :

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dT} = \frac{\int_L \frac{d(n_a \tilde{\sigma})}{dT} dz}{\int_L n_a \tilde{\sigma} dz} \quad (1.38)$$

Si nous supposons que la forme de raie est une pure lorentzienne, ce qui est une approximation acceptable jusqu'à 10 km, alors la section efficace d'absorption peut être écrite :

$$\tilde{\sigma} = \frac{S}{\pi\gamma} \frac{1}{1 + (\Delta\nu/\gamma)^2} \quad (1.39)$$

où  $S$  est la force de raie,  $\gamma$  est la demi-largeur à mi-hauteur de la raie et  $\Delta\nu$  est le décalage spectral par rapport au centre de raie.

De plus :

$$S = S_0 \left( \frac{T_0}{T} \right) \exp \left( - \frac{E'' hc}{k} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right) \quad (1.40)$$

$$\gamma = \gamma_0 \frac{P}{P_0} \left( \frac{T_0}{T} \right)^\eta \quad (1.41)$$

Où l'indice  $_0$  décrit les conditions normales de température et de pression et  $E''$  est l'énergie de l'état fondamental de la transition. En utilisant aussi la loi des gaz parfaits, il vient :

$$\frac{n_T}{n_{T,0}} = \frac{p T_0}{p_0 T} \quad (1.42)$$

, nous pouvons montrer que :

$$\frac{d(n_T \sigma)}{dT} \propto \frac{E'' hc}{kT} - 2 - \eta \frac{(\Delta\nu/\gamma)^2 - 1}{(\Delta\nu/\gamma)^2 + 1} \quad (1.43)$$

Pour une température et une largeur de raie donnée, nous pouvons alors trouver un niveau d'énergie fondamental qui annule presque la dépendance en température. En utilisant un profil standard de

température et de pression fourni par l'ESA, nous pouvons alors calculer  $E''$  pour différentes altitudes et décalage en fréquence. Nous pouvons voir alors que lorsque la position spectrale est décalée du centre au flanc de la raie d'absorption, l'énergie de l'état fondamental qui minimise la dépendance en température s'élève d'approximativement 200 cm<sup>-1</sup> à 400 cm<sup>-1</sup>. Ces résultats donnent une troisième ligne à suivre pour la sélection de la raie et sont présentés ci-dessous (Fig.1. 13).

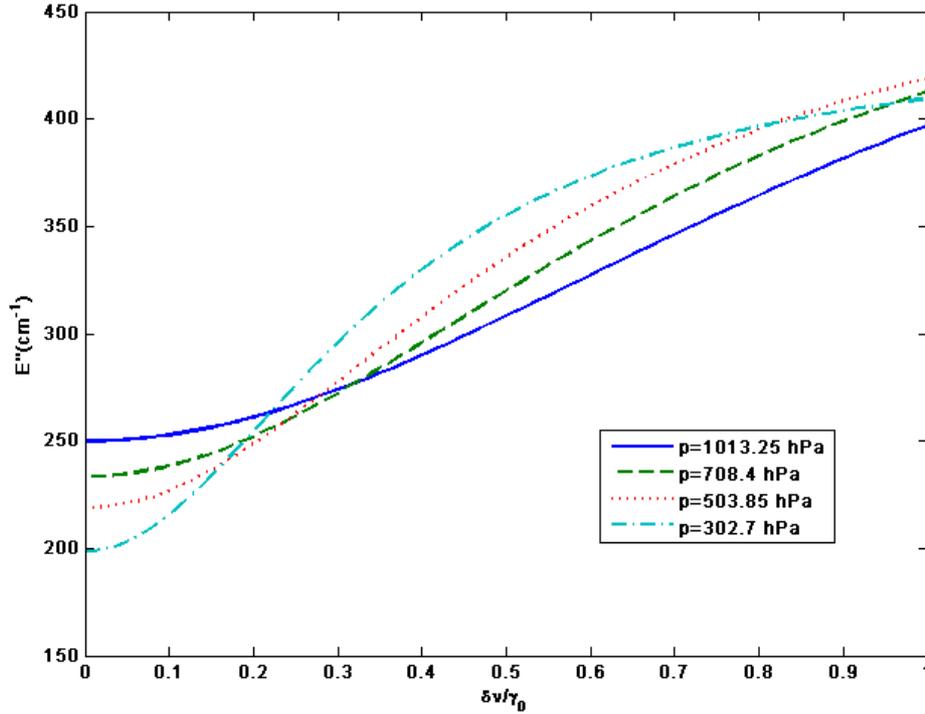


Fig.1. 13 : Optimisation du niveau d'énergie fondamental pour minimiser la dépendance à la température en fonction de différents déplacements en fréquence par rapport au centre de raie pour différentes pressions atmosphériques caractéristiques.

### 3.4. Epaisseur optique optimale due à l'absorption du CO<sub>2</sub>

Lors d'une mesure DIAL, l'épaisseur optique intégrée sur une colonne totale est donnée par l'équation (1.18).

En supposant que l'erreur sur la mesure de l'énergie émise soit négligeable comparée à celle affectant la puissance reçue, l'écart type relatif sur l'épaisseur optique est donnée par :

$$\frac{\sigma(\tau)}{\tau} = \frac{1}{2\tau} \sqrt{\left(\frac{\sigma(P_{OFF})}{P_{OFF}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(P_{ON})}{P_{ON}}\right)^2} \quad (1.44)$$

Si nous considérons que les énergies émises sont dans le rapport  $\alpha = \frac{E_{on}}{E_{off}}$ , le nombre de photoélectrons détectés est donné par :

$$N_{OFF} = \frac{N_T}{1 + \alpha} \quad (1.45)$$

$$\text{Et } N_{ON} = \frac{\alpha N_T}{1 + \alpha} e^{-2\tau}$$

où  $N_T$  représente le nombre total de photoélectrons (on-line plus off-line) en l'absence d'absorption ( $N_T$  est proportionnel, dans l'équation LIDAR à l'énergie totale émise). [Bruneau 2006]

En détection directe, l'erreur relative sur la puissance reçue est donnée par l'équation suivante:

$$\frac{\sigma(P)}{P} = SNR^{-1} = \sqrt{\frac{1 + \eta N / M + N_B / N}{\eta N}} \quad (1.46)$$

$N_B$  est un nombre généralisé de photons de fond de ciel qui inclut les contributions du fond optique et du bruit de détection, le nombre de degrés de liberté pour sa mesure est considéré infini (grande largeur de bande optique).

Alors, l'épaisseur optique et le rapport d'énergies émises est numériquement optimisé en utilisant l'équation (1.35)

Cet optimum dépend du ratio des photoélectrons fond de ciel / signal :

$$rb_{OFF} = \frac{Nb_{OFF}}{N_{OFF}} \text{ et } rb_{ON} = \frac{Nb_{ON}}{N_{ON}}$$

En supposant un grand nombre de degrés de liberté (i.e.  $\frac{\eta N_{ON/OFF}}{M} \ll 1$ ), nous obtenons les résultats

suivants :

Sans aucun fond de ciel, les épaisseurs et ratio d'énergie optimales sont respectivement 1.28 et 3.6 alors que pour un fond de ciel  $rb_{off} = rb_{on} = 1$ , les conditions optimales sont  $\tau = 0.75$  et  $\alpha = 2.7$ .

Les conditions optimales pour la détection étant la limite de bruit de bruit de grenaille, nous devons essayer d'approcher cette limite et choisir une épaisseur optique proche de 1 et un rapport d'énergie de 3 [Bruneau 2006].

En détection hétérodyne, à cause du mélange optique entre l'oscillateur local et le signal, le signal n'est défini que sur une seule cellule de cohérence spatiale (Chapitre IV). Alors un moyennage ne peut être effectué que sur les seules cellules de cohérence temporelle. Ainsi, pour un seul tir, le bruit de speckle ne peut être négligé et est en général prédominant. Nous définissons alors le CNR (Carrier to Noise Ratio) comme le ratio de la puissance moyenne signal sur la puissance moyenne de bruit en ne prenant pas en compte le bruit de speckle. En supposant que le bruit de grenaille de l'oscillateur local est supérieur aux autres sources de bruit, le CNR peut être écrit :  $CNR = \gamma_H \eta N_C$

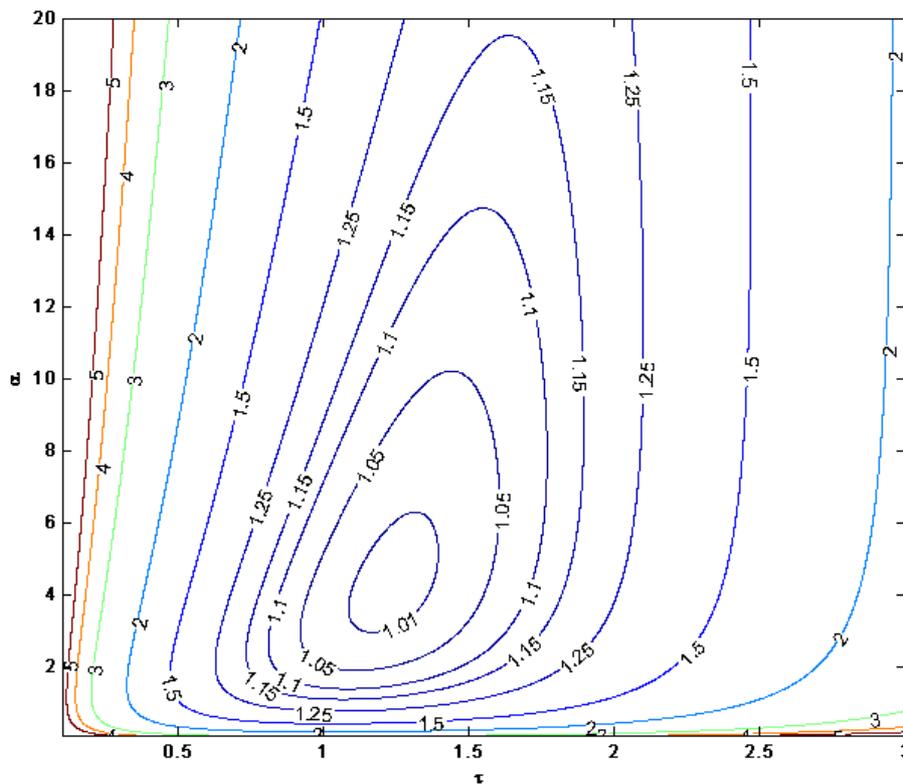
où  $\gamma_H$  est l'efficacité de mélange hétérodyne, et  $N_C$  est le nombre de photons reçus durant un temps de cohérence  $\delta t_C$ .

L'estimateur de puissance squarer dans une porte  $\delta R$  pour un seul tir est alors :

$$\frac{\sigma(P)}{P} = SNR^{-1} = \frac{1}{\sqrt{M}} (1 + CNR^{-1}) = \frac{1}{\sqrt{M}} \left( 1 + \frac{M}{\gamma_H \eta N} \right) \quad (1.47)$$

Nous pouvons de même optimiser numériquement l'équation (1.35). L'épaisseur optimale est alors de 1.23 et un rapport d'énergie de 4.3. Ce résultat est très similaire à celui obtenu en détection directe en limite de bruit de grenaille.

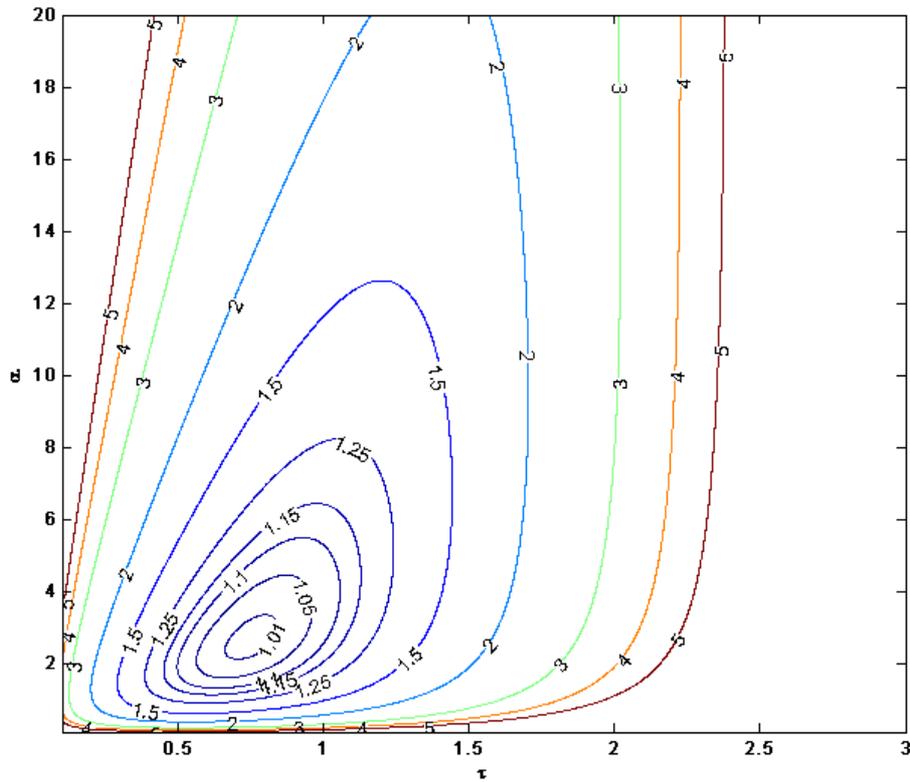
Ces résultats tirés de [Bruneau 2006] sont présentés sur les figures suivantes (**Fig.1. 14** et **Fig.1. 15**).



**Fig.1. 14 : Erreur DIAL hétérodyne en fonction de l'épaisseur optique et du rapport d'énergie  $E_{on}/E_{off}$**

Après avoir exposé ces critères de sélection, nous pouvons alors sélectionner les raies qui y correspondent. Elles sont au nombre de trois : deux raies dans le domaine à 1.6  $\mu\text{m}$  et deux à 2  $\mu\text{m}$ . Ces raies sont référencées dans le tableau ci-après (**Tab.1. 4**).

Les positions adéquates de la raie laser sur la raie d'absorption du CO<sub>2</sub> sont elles aussi indiquées dans ce tableau



**Fig.1. 15 :** Erreur DIAL directe (limite de bruit de grenaille) en fonction de l'épaisseur optique et du rapport d'énergie  $E_{on}/E_{off}$

En effet, nous pouvons pour exemple tracer l'épaisseur optique le long de la colonne atmosphérique en fonction de trois positionnements spectraux différents (centre de raie, 0.3 GHz du centre et 3 GHz du centre) sur la raie R30 (2  $\mu\text{m}$ ).

Ces résultats sont présentés sur la figure ci-après (**Fig.1. 16**).

Nous remarquons aisément que la position qui optimise l'épaisseur optique est située à 3 GHz du centre de raie.

**Tab.1. 4 :** Raies d'absorption présélectionnées pour une mesure DIAL spatiale

Domaine	fréquence (cm <sup>-1</sup> )	longueur d'onde (nm)	Force de raie (cm <sup>2</sup> .cm <sup>-1</sup> .mol <sup>-1</sup> )	E'' (cm <sup>-1</sup> )	raie	Position sur la raie
1.6 $\mu\text{m}$	6367.223459	1570.54	$1.205 \cdot 10^{23}$	316.77	R28	centre
1.6 $\mu\text{m}$	6361.250904	1572.0	$1.823 \cdot 10^{23}$	133.4	R18	ped
2 $\mu\text{m}$	4875.748957	2050.967	$1.741 \cdot 10^{22}$	362.79	R30	aile

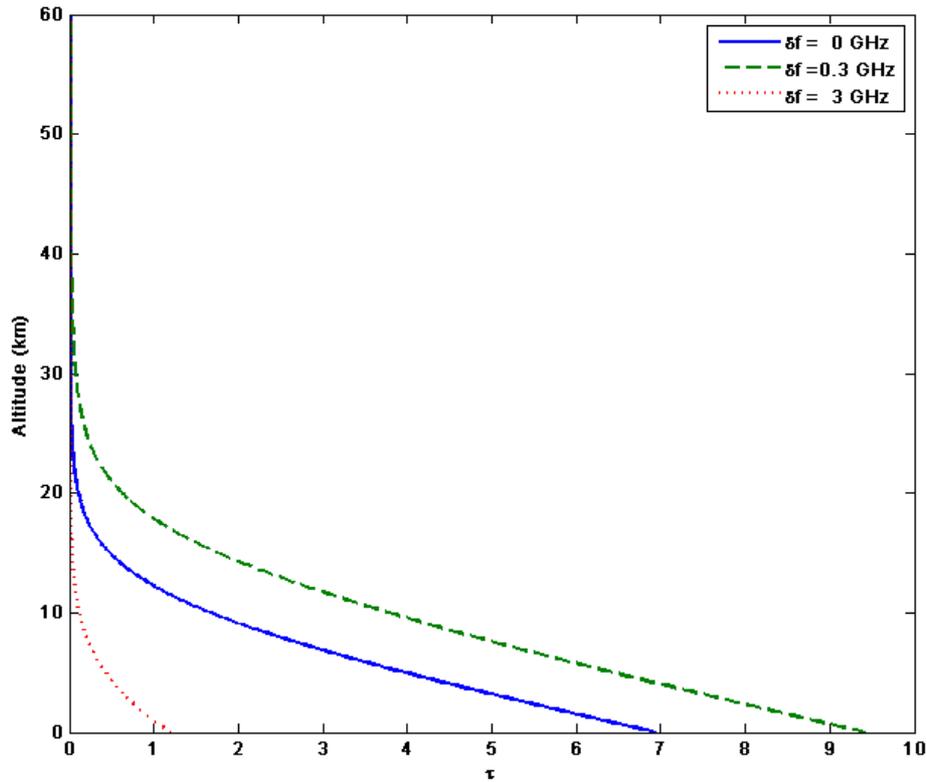


Fig.1. 16 : Epaisseur optique  $\tau$  pour 3 positions spectrales différentes sur la raie R 30

### 3.5. Fonction de poids adéquate pour obtenir des informations sur les flux de surface et conséquences pour la précision requise sur le rapport de mélange en CO<sub>2</sub>

Le dernier critère concernant le choix de la raie d'absorption réside dans la forme de la fonction de poids.

L'intérêt principal d'une mesure DIAL étant de faire une mesure du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> dans la basse troposphère, incluant la couche limite atmosphérique, où les effets des sources et puits de CO<sub>2</sub> sur la distribution du rapport de mélange sont les moins perturbés par le transport horizontal et vertical. Il en découle donc qu'une fonction de poids qui maximise la répartition dans la CLA sera avantageuse pour estimer des flux de surface de CO<sub>2</sub> précis.

En utilisant l'équation (1.33) et l'équilibre hydrostatique, il vient :

$$WF_p(p) = \frac{1}{m_a g} \frac{1}{1 + m_w / m_a \rho_w(p)} \Delta \tilde{\sigma}(p) \quad (1.48)$$

qui est la fonction de poids constante en pression et où  $m_a$  et  $m_w$  sont respectivement les masses moléculaires de l'air sec et de l'eau.

Nous pouvons de même écrire cette fonction de poids comme une fonction de l'altitude.

L'épaisseur optique totale de la colonne mesurée depuis le satellite jusqu'à l'altitude  $z_s$  de la surface réfléchissante mène à un rapport de mélange :

$$\bar{\rho} = \frac{\tau}{\int_{z_{sat}}^{z_s} WF_z(z) dz} = \frac{\int_{z_{sat}}^{z_s} \rho(z) WF(z) dz}{\int_{z_{sat}}^{z_s} WF_z(z) dz} \quad (1.49)$$

moyenné le long de l'altitude avec une fonction de poids :

$$WF(z) = n_a(z) \Delta \tilde{\sigma}(z) = \frac{p(z)}{kT(z)} \frac{1}{1 + \rho_w(z)} \Delta \tilde{\sigma}(z) \quad (1.50)$$

La fonction de poids (qu'elle soit exprimée à altitude ou pression constante) doit être comprise comme l'impact relatif d'une seule molécule de CO<sub>2</sub> sur le contenu intégré retrouvé, en fonction de l'altitude (ou de la pression).

Par exemple dans le cas d'une fonction de poids constante, ceci signifierait que l'impact d'une molécule de CO<sub>2</sub> en surface ou à 500 hPa serait le même. Dans le cas d'une fonction de poids maximale dans les hautes pressions, ceci signifie que la contribution relative des molécules dans la CLA est plus importante que celle à haute altitude.

Les **Fig.1. 17** et **Fig.1. 18** représentent la fonction de poids et la fonction de poids cumulée pour les trois raies présélectionnées.

Les **Fig.1. 19** et **Fig.1. 20** représentent, elles, les fonctions de poids, et fonction de poids cumulée à pression constante pour ces trois mêmes raies.

Comme présenté sur les figures suivantes, la raie à 2 microns présente alors une fonction de poids plus avantageuse car totalement répartie à proximité du sol alors que les raies à 1.6 microns ont des fonctions de poids plus appropriées pour la moyenne et haute troposphère. Ainsi la raie R 30 sera la raie sélectionnée pour une future mesure spatiale en vue de restitution de flux de surface.

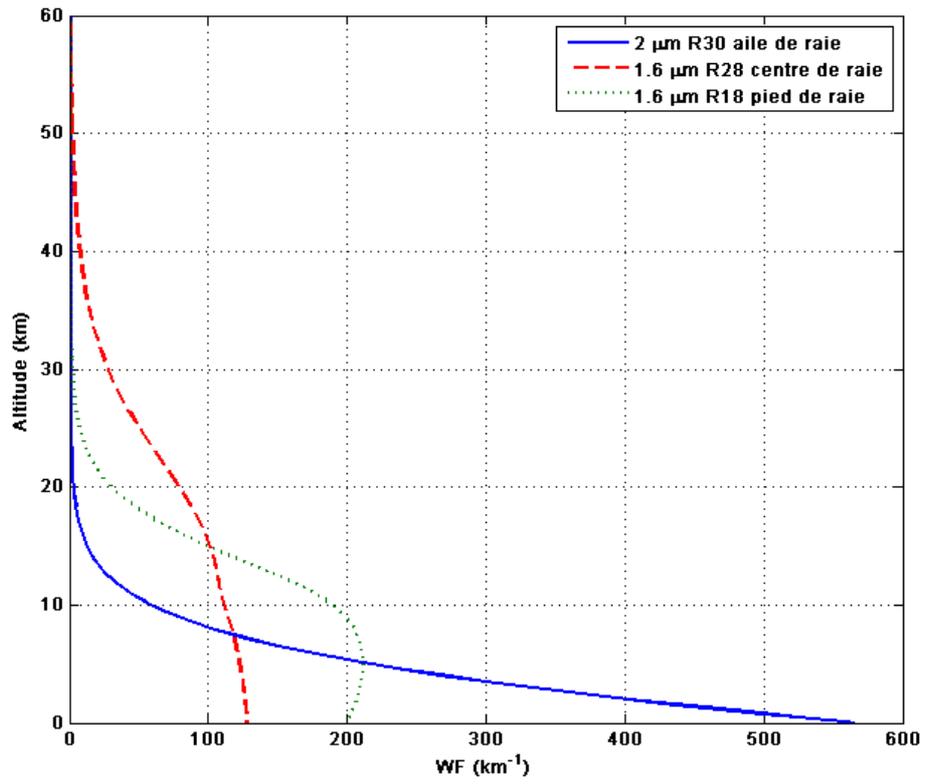


Fig.1. 17 : Fonction de poids pour les trois raies présélectionnées

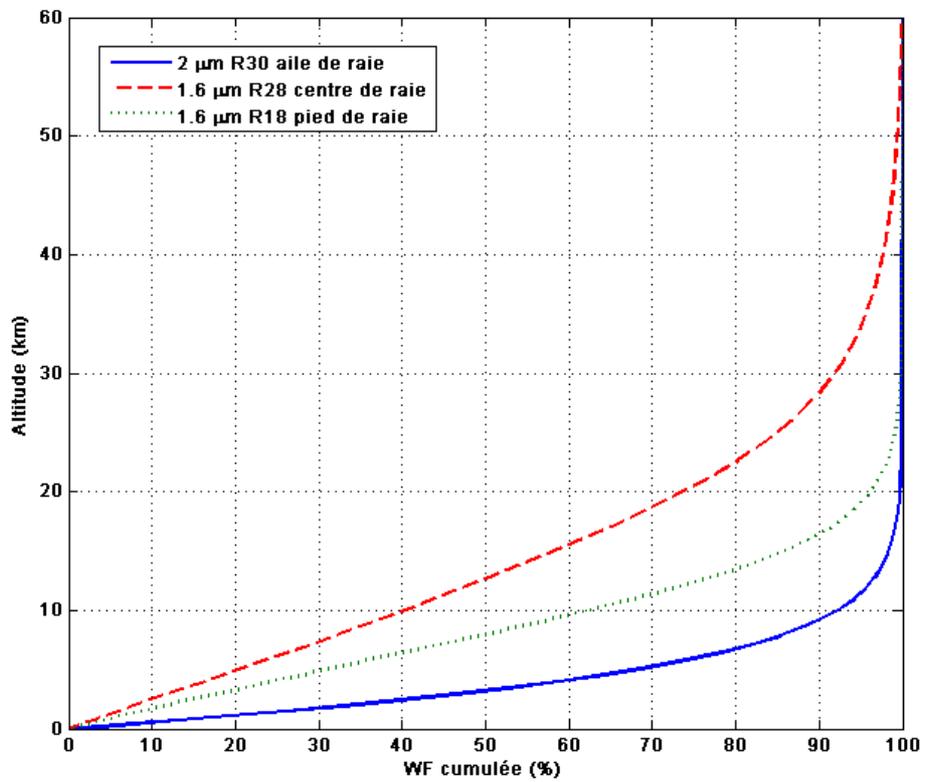


Fig.1. 18 : Fonction de poids cumulée pour les trois raies présélectionnées

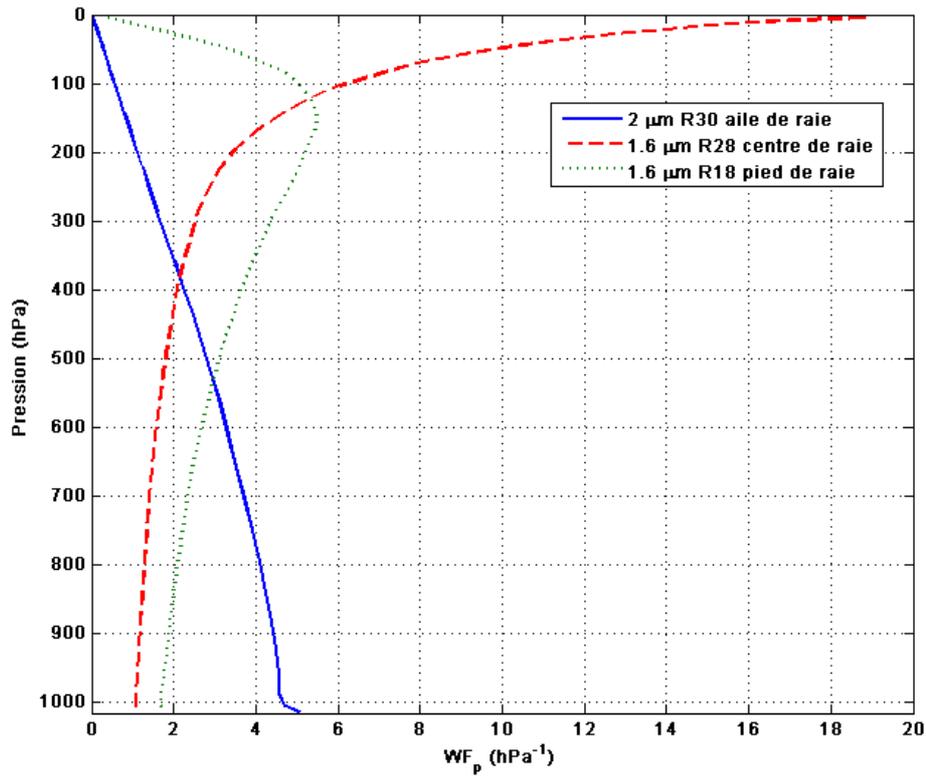


Fig.1. 19 : Fonction de poids à pression constante pour les trois raies présélectionnées

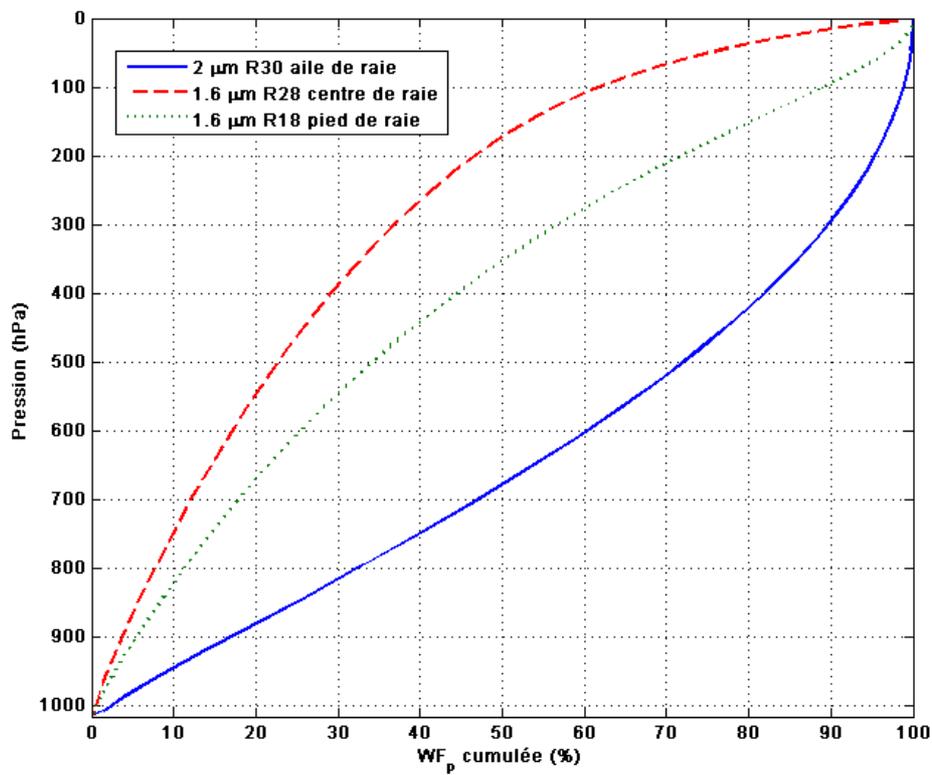


Fig.1. 20 : Fonction de poids à pression constante cumulée pour les trois raies présélectionnées

Nous pouvons représenter l'erreur sur le rapport de mélange de la CLA pour une erreur de 1 ppm sur la mesure de la colonne totale pour une fonction de poids constante en pression.

Nous pouvons diviser l'atmosphère en deux domaines distincts : dans et hors la CLA et avons alors :

$$SWF \cdot \bar{\rho} = SWF_1 \cdot \bar{\rho}_1 + SWF_2 \cdot \bar{\rho}_2 \quad (1.51)$$

Où  $\rho_1$  et  $\rho_2$  sont les rapports de mélange moyens respectivement dans et hors de la CLA et SWF est l'intégrale de la fonction de poids en pression sur les différents domaines de pression :

$$SWF = \int_p WF dp$$

L'objectif scientifique est de mesurer les sources et puits de CO<sub>2</sub> qui sont directement responsables du rapport de mélange dans la CLA. Nous devons alors soustraire le rapport de mélange hors de la CLA du rapport de mélange mesuré dans toute la colonne. L'erreur dans la CLA est alors estimée par :

$$\sigma(\bar{\rho}_1) \geq \sigma(\bar{\rho}) \frac{SWF}{SWF_1} \quad (1.52)$$

Nous pouvons alors calculer l'incertitude minimale dans la CLA, en considérant 1 ppm de précision pour la mesure de la colonne totale. Ces résultats sont répertoriés ci-après (**Tab.1. 5**).

**Tab.1. 5 : Pourcentage de la fonction de poids cumulée dans la couche limite pour les configurations DIAL présélectionnées**

	1.6 $\mu\text{m}$ centre de raie (R28)	1.6 $\mu\text{m}$ pied de raie (R18)	2 $\mu\text{m}$ aile de raie (R30)	WF <sub>p</sub> constante
Fonction de poids constante en pression cumulée dans la CLA (%)	4	6	18	11
Erreur dans la CLA (ppm)	25	17	5.5	9
Erreur statistique équivalente visée pour une mesure de contenu intégré dans toute la colonne (ppm)	0.36	0.55	1.64	1.00
Biais équivalent visé pour une mesure de contenu intégré dans toute la colonne (ppm)	0.036	0.055	0.164	0.100

La raie d'absorption R30 de la bande (20<sup>0</sup>1)<sub>III</sub>←(00<sup>0</sup>0)<sub>I</sub> (2050.967 nm).est donc la raie qui apparaît la plus avantageuse pour une future mesure spatiale DIAL du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

Nous voyons donc clairement apparaitre ici l'avantage de la raie à 2 microns pour une mesure précise des flux et sources de CO<sub>2</sub>. En effet, la fonction de poids maximale dans la CLA, permet de relâcher les contraintes sur la précision de mesure ainsi que sur les biais par rapport aux raies à 1.6 microns.

L'émission préférentielle pour la raie laser est située à environ 3GHz du centre de raie (2051.017 nm) afin d'atteindre une épaisseur optique optimale.

#### **4. Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons présenté le contexte de cette étude et posé les éléments de base du sujet de la thèse à savoir la mesure du CO<sub>2</sub> atmosphérique spatiale par LIDAR DIAL.

Nous avons dans un premier temps mis en avant la corrélation entre l'élévation de la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique et le changement climatique et la nécessité de localiser et quantifier les puits et sources de CO<sub>2</sub> à l'échelle globale.

Après avoir décrit le cycle du carbone, nous avons pu étudier la variabilité de celui-ci et ainsi définir les précisions exigées pour une mesure globale de concentration à savoir 1 ppm sur une échelle spatiale de 50 km × 50 km en contenu intégré sur la colonne de mesure.

Puis, après une brève présentation des mesures spatiales par télédétection passive, nous avons mis en avant les avantages d'une télédétection active par LIDAR DIAL. Nous avons ensuite rappelé les bases théoriques de la mesure DIAL.

En se basant sur des études précédentes, nous avons alors pu choisir la raie d'absorption la plus appropriée pour une future mission spatiale. L'avantage conféré par la raie R30 de la bande  $(20^01)_{III} \leftarrow (00^00)_I$ , réside pour la plus grande part dans sa fonction de poids favorisant la contribution des basses couches de l'atmosphère. Cette condition est favorable pour l'estimation des flux de surface car elle favorise la contribution des molécules présentes dans la couche limite atmosphérique et relaxe alors les conditions de précision et de biais sur une mesure en colonne intégrée.

Cependant, le domaine à 1.6 μm est lui aussi envisageable, même si nous choisissons dans la suite de cette thèse de se focaliser sur l'étude d'une mesure à 2 μm.

## Chapitre II

### Spectroscopie du CO<sub>2</sub> à 2051 nm

Ce chapitre décrit les mesures des paramètres spectroscopiques des raies d'absorption du dioxyde de carbone à 2051 nm et plus particulièrement de la raie d'intérêt pour une mesure spatiale dans ce domaine, la raie R30 de la bande  $(20^01)_{III} \leftarrow (000)_I$ . Une raie est définie par les paramètres suivants :

- $S_0$  : intensité ou force de raie
- $\gamma_a$  : coefficient d'élargissement par l'air et  $\gamma_s$  le coefficient d'auto-élargissement
- $\eta$  : coefficient de dépendance en température de l'élargissement
- $p_{shift}$  : coefficient de décalage spectral du centre de raie induit par la pression : «pressure shift »
- $E''$  : énergie du niveau fondamental de la transition

Des incertitudes sur ces paramètres induisent des biais potentiels sur une mesure DIAL. Ils doivent donc être connus avec une grande précision pour minimiser les biais en vue d'une mesure satellitaire. Les bases de données spectroscopiques (HITRAN [Rothman 2005], GEISA [Jacquinet-Husson 1999]) référencent ces valeurs avec des degrés de précision divers. Des publications récentes [Toth 2006-2007, Regalia-Jarlot 2006], ont fourni de nouvelles valeurs de  $S_0$ ,  $\gamma_a$ ,  $\gamma_s$ , et  $p_{shift}$ .

Les mesures spectroscopiques réalisées au GSMA (Groupe de Spectroscopie Moléculaire et Atmosphérique) de l'université de Reims seront présentées.  $S_0$ ,  $\gamma_a$  et  $\eta$  seront déterminées pour 6 raies du CO<sub>2</sub> dans la bande  $(20^01)_{II} \leftarrow (000)$  (raies R26 à R34) par spectrométrie d'absorption à diode laser. Des mesures de pressure shift conduites par spectroscopie photoacoustique dans cette même bande d'absorption sont présentées. Enfin, es biais et biais interrégionaux potentiels sur une mesure DIAL seront investigués.

## 1. Spectres d'absorption Infra-Rouge : rappels de spectroscopie moléculaire

Le spectre d'absorption de composés tels que le dioxyde de carbone ou la vapeur d'eau est constitué d'une multitude de raies correspondant aux différentes transitions atomiques du composé. Dans le cas d'une mesure DIAL, ce spectre nécessite d'être connu avec la plus grande précision afin de pouvoir connaître l'absorption effective subie par le faisceau laser au cours de son trajet atmosphérique.

Afin de recenser les caractéristiques des raies d'absorption des composés atmosphériques, des bases de données telles que HITRAN [Rothman 2004] et GEISA [Jacquinet-Husson 1999] référencent les paramètres spectroscopiques des composés atmosphériques. Cependant ces bases sont parfois incomplètes ou imprécises et de nombreuses études numériques et expérimentales sont menées sur ces divers composés afin de les compléter.

Dans le domaine infrarouge, les transitions correspondent aux états ro-vibrationnels, alors que, par exemple, les transitions électroniques correspondent au domaine visible et ultraviolet.

Une radiation électromagnétique peut interagir avec une molécule par l'intermédiaire de son moment dipolaire. S'en suit alors un changement d'état de la molécule qui passe du niveau  $\eta''$  d'énergie  $E''$  au niveau  $\eta'$  d'énergie  $E'$ .

### 1.1 Fréquence de Bohr : position spectrale des raies d'absorption

D'un point de vue corpusculaire, l'énergie d'un photon est  $E$  :

$$E = h\nu = hc\tilde{\sigma} \quad (2.1)$$

Les molécules interagissant avec les photons peuvent être considérées comme un milieu très dilué et possédant donc des niveaux d'énergie discrets. Donc si un rayonnement lumineux irradie une molécule se trouvant dans un certain état quantique, il est alors possible que la molécule absorbe ces photons. En particulier si l'énergie du photon est exactement la même que l'énergie entre l'état initial et un état d'énergie supérieur alors la molécule peut absorber un photon et effectuer une transition de l'état d'énergie  $E''$  à  $E'$ . C'est la condition de fréquence de Bohr :

$$E_{\text{photon}} = E'' - E' \quad (2.2)$$

Les fréquences d'absorption  $\nu$  (Hz) ou nombre d'onde  $\sigma$  (cm<sup>-1</sup>) nous donne donc les positions spectrales des raies.

### 1.2 Intensité des raies d'absorption

L'intensité (force) de la transition (raie d'absorption) est liée à la probabilité de la molécule à effectuer cette transition lorsqu'elle interagit avec une onde électromagnétique (*i.e.* rayonnement lumineux) de fréquence adéquate. Le nombre de molécules présentes dans l'état initial influence l'intensité de

l'absorption. En traitant ce problème d'un point de vue thermodynamique statistique, la population (le nombre de molécules) se trouvant dans un niveau énergétique quantifié, noté  $i$ , peut être écrit comme :

$$N_i = K \cdot g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B \cdot T}\right) \quad (2.3)$$

Où  $K$  est une constante de proportionnalité,  $g_i$  la dégénérescence du niveau  $i$ ,  $E_i$  son énergie,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température. En sommant cette équation sur l'ensemble des niveaux énergétiques nous pouvons déterminer la constante de proportionnalité :

$$N = \sum N_i \quad (2.4)$$

et

$$K = \frac{N}{\sum g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B \cdot T}\right)} \quad (2.5)$$

Puis :

$$\frac{N_i}{N} = \frac{g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B T}\right)}{\sum g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B T}\right)} \quad (2.6)$$

Avec la fonction de partition  $Q(T)$  :

$$Q(T) = \sum g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B \cdot T}\right) \quad (2.7)$$

Pour une molécule donnée et pour une température fixe, la fonction de partition est une constante.

La luminance d'un rayonnement  $L(\sigma)$  lors d'un trajet optique au sein d'un milieu est fixée par la loi de Beer-Lambert.

En effet, la transmission  $T$  de ce même milieu est donnée par le rapport entre la luminance à l'entrée de ce milieu et celle de sortie et s'écrit :

$$T(\sigma) = \frac{L(\sigma)}{L_0(\sigma)} = \exp[-\alpha(\sigma, T, p) \cdot N(T, p) \cdot l] \quad (2.8)$$

Le coefficient d'absorption  $\alpha$  dépend du nombre d'onde  $\sigma$ , de la température  $T$  et de la pression  $P$  de la molécule considérée.

Si l'échantillon est constitué de plusieurs espèces on note  $p_i$  la pression partielle pour la molécule  $i$  et la pression totale  $P$  est alors la somme de toutes les pressions partielles et la concentration  $C_i$  de la molécule  $i$  est le rapport de sa pression partielle sur la pression totale.

$$P = \sum p_i \quad (2.9)$$

$$C_i = \frac{P_i}{P} \quad (2.10)$$

$N(p,T)$  le nombre de molécules absorbantes, dépend de la pression et de la température et est calculé à partir de la loi de Mariotte :

$$N(P,T) = L_0 \cdot \frac{P}{P_0} \cdot \frac{T_0}{T} \quad (2.11)$$

Avec  $L_0$  le nombre de Loschmidt (nombre de molécules par cm<sup>3</sup> dans les conditions standards de température et de pression) =  $2.6867773 \cdot 10^{19}$  mol.cm<sup>-3</sup>.

$P_0$  est la pression atmosphérique = 1013.25 mbar et  $T_0 = 273.15$  K.

Cette relation est valable pour un milieu non-diffusant à température homogène.

Comme vu précédemment, les fréquences d'absorption  $\sigma_{fi}$  donnent la position des raies lors d'une transition d'un niveau initial  $E_i$  à un niveau final  $E_f$ .

$$E_f - E_i = h.c.\sigma_{fi} \quad (2.12)$$

L'absorption provoquée par cette transition possède une certaine largeur spectrale (non-monochromaticité) et est soumise à différents types d'élargissement que nous détaillerons par la suite.

Le coefficient d'absorption peut s'écrire :

$$\alpha(\sigma, T, p) = S(T) \cdot f(\sigma - \sigma_{fi}, T, p) \quad (2.13)$$

Où  $S(T)$  est l'intensité intégrée de la raie qui caractérise la force de la transition et  $f(\sigma - \sigma_{fi}, T, P)$  le profil spectral de la raie qui caractérise la répartition de celle-ci autour de la fréquence centrale  $\sigma_{fi}$ .

Ce profil est normalisé :

$$\int_{raie} f(\sigma - \sigma_{fi}, T, p) \cdot d\sigma = 1 \quad (2.14)$$

L'intensité intégrée de la transition entre les niveaux  $i$  et  $f$  est donnée par la formule :

$$S_{ij}(T) = \frac{8\pi^3}{3hc} \cdot \sigma_{fi} \cdot \left( 1 - \exp\left(\frac{-h.c.\sigma_{fi}}{k_B \cdot T}\right) \right) \cdot \frac{I_a \cdot g_i \cdot \exp\left(\frac{-E_i}{k_B \cdot T}\right)}{Q(T)} \cdot R_{fi} \cdot 10^{-36} \quad (2.15)$$

Avec :

- $T$  : température des molécules
- $G_i$  : dégénérescence du niveau  $i$
- $I_a$  : abondance isotopique terrestre
- $E_i$  : niveau d'énergie initial de la transition : détermine la dépendance en température de l'intensité
- $Q(T)$  : fonction de partition

- $R_{if}$ : moment de transition de vibration-rotation de la molécule [Debye<sup>2</sup>] : est indépendant de la pression et de la température. Ceci implique que si nous connaissons l'intensité de la transition à une température de référence  $T_0$ , nous pouvons en déduire la dépendance de l'intensité en fonction de la température :

$$S_{ij}(T) = S_{ij}(T_0) \frac{Q(T_0)}{Q(T)} \frac{\exp\left(\frac{-E_i}{k_B T}\right) \left[1 - \exp\left(\frac{-h.c.\sigma_{fi}}{k_B T}\right)\right]}{\exp\left(\frac{-E_i}{k_B T_0}\right) \left[1 - \exp\left(\frac{-h.c.\sigma_{fi}}{k_B T_0}\right)\right]} \quad (2.16)$$

Dans l'approximation harmonique du rotateur rigide, la fonction de partition peut se scinder en deux contributions. D'une part, la partie rotationnelle et d'autre part la partie vibrationnelle, on a :

$$Q(T) = Q_R(T) \cdot Q_V(T) \quad (2.17)$$

La fonction de partition vibrationnelle peut s'écrire sous la forme générale :

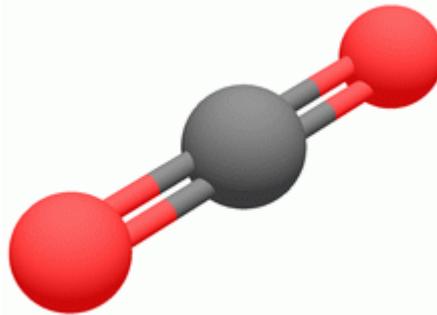
$$Q_V(T) = \prod_M \left[ 1 - \exp\left(\frac{-h.c.\sigma_M}{k_B T}\right) \right]^{-1} \quad (2.18)$$

Où  $M$  est le nombre de modes.

Pour la fonction de partition rotationnelle, il n'existe pas de forme générale car elle dépend de la symétrie de la molécule considérée.

Dans l'équation (2.16), le terme  $\frac{Q_R(T_0)}{Q_R(T)}$ , peut être mis sous la forme  $\left(\frac{T_0}{T}\right)^m$  avec  $m$  valant 1 si la molécule est linéaire et 1.5 pour les autres molécules.

La molécule de CO<sub>2</sub> est une molécule linéaire (**Fig.2. 1**).



**Fig.2. 1 : Représentation de la molécule de CO<sub>2</sub>**

En négligeant l'influence de plusieurs termes, nous pouvons écrire :

$$S_{ij}(T) = S_{ij}(T_0) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^m \cdot \exp\left[\frac{-E_i}{k_B} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right] \quad (2.19)$$

### **1.3 Profil spectral des raies d'absorption : différents types d'élargissement**

Une raie d'absorption occupe un domaine spectral autour de sa fréquence centrale  $\sigma_{if}$ .

Ce profil spectral est dépendant de l'environnement physique du gaz et notamment de la pression de celui-ci. Ceci conduit à différents comportements du point de vue de l'élargissement de la raie et de sa forme.

Ainsi, ces différents comportements peuvent être modélisés par diverses distributions mathématiques que nous allons détailler ci-après, et qui sont dépendantes, principalement, du régime de pression auquel est soumis le gaz.

#### **1.3.1. Largeur naturelle d'une raie**

Chaque raie possède d'un premier abord une largeur naturelle. Celle-ci est liée à la durée de vie limitée  $\tau$  de l'atome dans son état excité. L'élargissement intrinsèque de la raie est lié au principe d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta t \cdot \Delta E \geq \hbar \quad (2.20)$$

Si  $\Delta t = \tau$  et  $\Delta E = h \cdot \Delta \nu$ , alors :

$$\Delta \nu \geq \frac{1}{2\pi \cdot c \cdot \tau} \quad (2.21)$$

Le temps de vie est inversement proportionnel au coefficient d'Einstein de l'émission spontanée. La largeur naturelle d'une raie varie d'ailleurs en fonction de sa fréquence. Dans l'infrarouge elle est de l'ordre de  $10^{-7} \text{ cm}^{-1}$ . Cependant, la largeur naturelle d'une raie n'est jamais observée en pratique. En effet d'autres processus physiques dépendant de l'environnement (notamment de la pression) impliquent différents processus d'élargissement de cette raie.

Deux processus majeurs sont responsables des phénomènes d'élargissement : les processus collisionnels moléculaires ainsi que l'effet Doppler lié à l'agitation thermique des molécules. Ces paramètres sont eux-mêmes régis par les conditions de température et de pression. Au final, la forme de la raie d'absorption est liée aux différents processus d'élargissement engagés.

#### **1.3.2. Elargissement Doppler : profil gaussien**

A faible pression, l'effet Doppler résultant de l'agitation thermique des molécules est le processus dominant. En effet, la fréquence de transition d'une molécule ou d'un atome ayant absorbé une radiation dépend de la vitesse de celui-ci par rapport à l'observateur. La non uniformité de ces vitesses, exprimée par une distribution statistique de Maxwell-Boltzmann entraîne une dispersion en fréquence par rapport à la fréquence centrale. Le profil de raie qui s'en suit est alors caractérisé par un profil gaussien.

$$f_D(\sigma - \sigma_{fi}) = \frac{1}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \cdot \exp\left[-\ln(2) \cdot \left(\frac{\tilde{\sigma} - \tilde{\sigma}_{fi}}{\gamma_D}\right)^2\right] \quad (2.22)$$

L'expression de la section efficace d'absorption  $\sigma_D$  peut s'écrire de la forme suivante :

$$\tilde{\sigma}_D = \frac{S}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp\left(-\ln 2 \frac{\Delta\nu}{\gamma_D}\right) \quad (2.23)$$

Avec :

$$\gamma_D(T) = \sigma_{ij} \sqrt{2 \cdot \ln(2) \frac{k_B \cdot T}{m \cdot c^2}} = 3.681 \cdot 10^{-7} \cdot \sigma_{ij} \cdot \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (2.24)$$

Avec  $\gamma_D(T)$ , la demi-largeur de raie à 1/e. Où  $m$  est la masse de la molécule absorbante et  $M$  sa masse molaire (en gramme). Le profil Doppler n'est valide que dans le cas où le libre parcours moyen des molécules est grand devant la longueur d'onde correspondant à la transition : c'est le cas pour des valeurs de pression faibles. D'un point de vue atmosphérique, ceci correspond aux hautes couches de l'atmosphère telles que la haute stratosphère et la mésosphère.

Avec  $k_B = 0.0695 \text{ cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température

$S$  étant donné par l'équation (2.19) :

$S = S_0 \left(\frac{T_0}{T}\right)^j \exp\left(-\frac{E'' hc}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right)$ , l'indice  $j$  caractérisant la fonction de partition en fonction de la température et valant 1 pour le CO<sub>2</sub>.

### 1.3.3. Elargissement collisionnel : profil lorentzien

A haute pression, le processus dominant est lié aux processus collisionnels entre les molécules et résulte en un profil lorentzien. Ceci est dû au fait que, lors de ces collisions, un échange d'énergie a lieu entre les molécules, modifiant et élargissant ainsi leurs niveaux d'énergie. Le profil lorentzien s'écrit alors :

$$f_C(\sigma - \sigma_{fi}) = \frac{1}{\pi} \cdot \frac{\gamma_C}{(\tilde{\sigma} - \tilde{\sigma}_{fi} - \delta_C)^2 + \gamma_C^2} \quad (2.25)$$

L'expression de la section efficace d'absorption  $\tilde{\sigma}_C$  peut s'écrire de la forme suivante :

$$\tilde{\sigma}_C = \frac{S}{\pi \gamma_c} \frac{1}{1 + (\Delta\nu/\gamma_c)^2} \quad (2.26)$$

Avec :  $S$  la force de raie,  $\Delta\nu$  l'écart spectral au centre de raie,  $\gamma_c$  la demi largeur de raie à mi-hauteur (HWHM : Half Width at Half Maximum) de la raie lorentzienne ou collisionnelle).

Cependant, on considère généralement deux types de collisions pour lesquelles le coefficient d'élargissement diffère. D'une part, nous considérerons les collisions entre molécules du même type caractérisées par un coefficient d'auto-élargissement noté  $\gamma_{self}(T)$ . D'autre part nous considérons les collisions d'une molécule avec les molécules d'air (*i.e.* des autres constituants de l'air) environnantes que nous caractériserons par un coefficient d'élargissement  $\gamma_{air}(T)$ . Ces paramètres étant dépendants de la température, ils s'expriment généralement par rapport à une température de référence qui est la température standard  $T_0 = 296$  K et sont exprimés comme  $\gamma_{air0}$  et  $\gamma_{self0}$ .

Le coefficient d'élargissement collisionnel s'écrit donc :

$$\gamma_C(T, p) = \gamma_{self0} \cdot \frac{p}{p_0} \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{self}} + \gamma_{air0} \cdot \frac{p_{air}}{P_0} \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{air}} \quad (2.27)$$

En le réécrivant en fonction de la pression totale et de la concentration  $C$  du composé étudié, nous obtenons :

$$\gamma_C(T) = \frac{p}{p_0} \cdot \left[ \gamma_{self0} \cdot C \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{self}} + \gamma_{air0} \cdot (1-C) \cdot \left(\frac{T_0}{T}\right)^{n_{air}} \right] \quad (2.28)$$

Et dans sa forme générale :

$$\gamma_C = \gamma_{C0} \frac{p}{p_0} \left(\frac{T_0}{T}\right)^\eta \quad (2.29)$$

### 1.3.4. Cas général : autres types de profil

#### 1.3.4.1. Profil de Voigt

De manière générale, les deux processus d'élargissement (collisionnel et thermique) ont lieu simultanément. Ainsi, ces deux effets peuvent être pris en compte en utilisant un profil de Voigt qui est une convolution d'un profil gaussien et d'un profil lorentzien :

$$f_V(\sigma) = f_D(\sigma) \otimes f_C(\sigma) = \int_{-\infty}^{+\infty} f_D(\sigma') f_C(\sigma - \sigma') d\sigma' \quad (2.30)$$

Nous pouvons exprimer cette intégrale sous la forme suivante :

$$f_V(\sigma) = \frac{y}{\gamma_D \cdot \pi} \cdot \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-t^2)}{y^2 + (x-t)^2} dt \quad (2.31)$$

Avec :

$$x = \frac{\sigma - \sigma_{fi} - \delta_C}{\gamma} \cdot \sqrt{\ln(2)}, \quad y = \frac{\gamma_C}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\ln(2)}$$

Le centre de raie du profil Doppler  $K_0$  est défini comme :

$$K_0 = \frac{1}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \quad (2.32)$$

Et finalement, nous pouvons écrire :

$$f_v(\sigma) = \frac{K_0 \cdot y}{\pi} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-t^2)}{y^2 + (x-t)^2} \cdot dt \quad (2.33)$$

$$\tilde{\sigma} = \frac{S}{\gamma_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} K(x, y) \quad (2.34)$$

avec la fonction d'erreur complexe :

$$K(x, y) = \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-u^2)}{y^2 + (x-u)^2} du \quad (2.35)$$

Le profil de Voigt ne peut pas être exprimé de façon analytique mais peut notamment être évalué en utilisant la partie réelle de la fonction d'erreur complexe. Ceci peut être fait en utilisant l'algorithme d'Humlicek [Humlicek 1978]. C'est cette fonction qui a notamment été utilisée lors des simulations DIAL au Chapitre I.

### **1.3.4.2. Profils de Rautian et de Galatry**

Cependant, le profil de Voigt qui reste une bonne approximation du comportement à des pressions intermédiaires laisse apparaître des différences systématiques entre les formes de profils et les spectres expérimentaux.

Cette différence pourrait s'expliquer par l'effet Dicke qui met en évidence la modification de distribution de vitesses lorsque les molécules sont confinées dans une zone de faible dimension.

La distribution de vitesses est modifiée lorsque le libre parcours moyen des molécules, qui diminue sous l'effet des collisions, devient du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de la radiation. Ceci conduit à un rétrécissement du profil.

Deux types de profil existent pour prendre en compte ce phénomène. Ceux-ci prennent en compte deux types de collisions différentes :

- lorsque l'intensité des collisions moléculaires est si forte que la vitesse des molécules post-collision est indépendante de la vitesse initiale (avant la collision) : elles seront appelées collisions fortes
- lorsque ces collisions doivent intervenir en grand nombre pour modifier significativement la vitesse : ce sont les collisions douces

Dans l'hypothèse des collisions fortes, le profil a été modélisé par Rautian et Sobelman [Rautian 1967] et est appelé profil de Rautian :

$$f_R = K_0 \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi}} \cdot \text{Re} \left[ \frac{W(x-s, y+z)}{1-z\sqrt{\pi} \cdot W(x-s, y+z)} \right] \quad (2.36)$$

Avec

$$s = \frac{\delta_C}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\ln(2)}, \quad z = \frac{v_C}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\ln(2)}$$

Avec  $v_C$  la fréquence des collisions induisant un changement de vitesse.

Dans le cas des collisions douces, chaque collision ne modifie que partiellement la vitesse de la molécule. Ce profil, dit de Galatry s'écrit comme :

$$f_G = K_0 \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi}} \cdot \text{Re} \left[ \frac{1}{\frac{1}{2z} + y - ix} \cdot M \left( 1; 1 + \frac{1}{2z^2} + \frac{y-ix}{z}; \frac{1}{2z^2} \right) \right] \quad (2.37)$$

Où  $M(...; ...; ...)$  est la fonction confluyente hypergéométrique. Elle est calculée en utilisant une approximation suivant l'algorithme donné par Herbert [Herbert 1974].

#### 1.4. Pressure shift

Lorsqu'un gaz est constitué de plusieurs molécules différentes, des interactions électriques prennent place entre ces différentes molécules. C'est le cas, par exemple du dioxyde de carbone atmosphérique, qui dans son état naturel va entrer en interaction avec les autres constituants majeurs de l'atmosphère (O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>). Ces forces intermoléculaires sont les forces de Van Der Waals. Les liaisons de Van Der Waals sont des interactions électriques de faible intensité qui ont lieu entre atomes, molécules ou molécules et cristal. Elles sont majoritairement composées de trois types d'interaction différentes : les forces de Keesom qui sont dues à l'interaction entre molécules polaires, les forces de Debye dues à l'interaction entre une molécule polaire et un dipôle induit et les forces de London dues aux liaisons entre dipôles instantanés.

Les forces de London existent du fait que la densité électronique des molécules est probabiliste. Lorsque celle-ci n'est pas répartie uniformément à travers la molécule, ceci crée un léger moment dipolaire. Ceux-ci varient au cours du temps et chaque moment dipolaire créé est alors susceptible d'interagir avec les moments dipolaires induits des molécules voisines, et il en résulte alors une force d'attraction.

Dans le cas de molécules polaires, les forces de London sont très faibles comparativement aux autres forces intermoléculaires, notamment les forces de Keesom. Mais dans le cas de molécules neutres, les forces de London sont les seules forces attractives intermoléculaires à grande distance.

L'énergie des forces de London entre deux molécules 1 et 2, de polarisabilités différentes peuvent s'écrire :

$$E_{london} = -\frac{3}{4} \frac{h \cdot \nu \cdot \alpha_1 \cdot \alpha_2}{(4 \cdot \pi \cdot \epsilon_0)^2 \cdot r^6} \quad (2.38)$$

Avec  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide,  $h$  la constante de Planck,  $\nu$  la fréquence d'absorption,  $\alpha_i$  la polarisabilité électrique et  $r$  la distance entre les molécules.

La force de London s'exprime alors en dérivant l'énergie par rapport à la distance et nous obtenons alors sous une forme simplifiée :

$$F_{london} = \Lambda \cdot \frac{\alpha_1 \cdot \alpha_2}{r^7} \quad (2.39)$$

avec  $\Lambda$  une constante.

Lorsque nous nous trouvons en présence d'un mélange de gaz (typiquement l'atmosphère), ces forces vont conduire à déplacer spectralement le spectre d'absorption des composés.

L'expression de ce déplacement spectral a été formulée à l'origine par London [London 1930]. Si un perturbateur stationnaire (atome ou molécule) est situé à une distance  $r$  de la molécule optiquement active, la fréquence à laquelle celui-ci émet (ou absorbe) diffère de la fréquence d'émission (ou d'absorption) du gaz pur, d'une quantité :

$$\Delta \nu = -\frac{\kappa}{r^6} + R \quad (2.40)$$

Avec  $\kappa$ , une constante et  $R$  une série de puissance inverse de  $r$  commençant avec  $r^{-8}$ .

Lorsque les distances entre les atomes sont supérieures à  $10^{-7}$  cm (à une pression de 1 atm, cette distance est typiquement de  $3.3 \cdot 10^{-7}$  cm), le terme  $R$  est négligeable par rapport à la contribution principale. Dans les domaines de pression intéressants dans le cadre d'étude atmosphérique ( $\leq 1$  atm), ce terme peut alors être négligé.

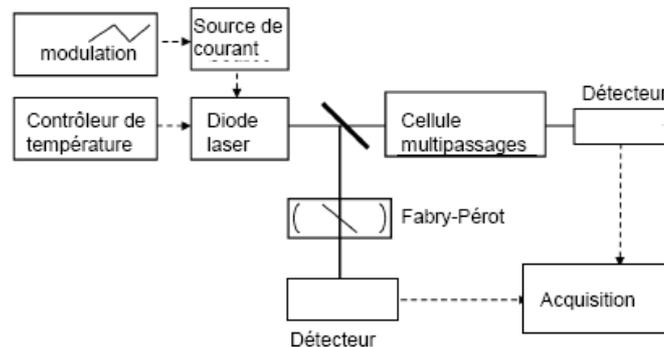
De plus, la constante  $\kappa$  est proportionnelle à la densité d'atomes perturbateurs et donc à la pression partielle de ce gaz (à volume constant). Ainsi, le décalage en fréquence d'une raie d'absorption particulière est proportionnel à la pression partielle du gaz perturbateur et s'exprime comme :

$$\Delta \nu = pshift \left( \frac{p}{P_0} \right) \quad (2.41)$$

Avec  $pshift$  généralement exprimé en  $\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1}$

## 2. Le spectromètre d'absorption diode laser

Afin d'atteindre de grands niveaux de précision pour la mesure des différents paramètres spectroscopiques, une collaboration a été mise en place avec le GSMA (Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique) de l'université de Reims. Les spectres de CO<sub>2</sub> dans la région 2.05µm sont enregistrés à l'aide du spectromètre à diode laser accordable du GSMA. Le dispositif expérimental est présenté ci-dessous (**Fig.2. 2**). La source laser est une diode laser DFB (Distributed FeedBack) continue, commerciale (Nanoplus GmbH). Le rapport de suppression des modes latéraux est supérieur à 30 dB. La puissance moyenne de sortie délivrée est de ~10 mW et la largeur de raie laser est inférieure à 10 MHz (FWHM). Le domaine spectral continu d'accordabilité (à T constante) est approximativement 1 cm<sup>-1</sup>, intervalle sur lequel il n'y a pas de saut de mode. Ce point est très important afin de reconstruire correctement la ligne de base afin que le laser balaye la transition moléculaire sur une plage spectrale assez large pour atteindre une absorption nulle en début et fin d'intervalle parcouru. La longueur d'onde du laser est stabilisée au moyen d'un thermo-élément Peltier et est pilotée par une source de courant à bas-bruit. Une rampe en fréquence à 100 Hz est utilisée pour accorder la diode laser DFB sur les raies d'absorption sélectionnées en modulant le courant d'entrée.



**Fig.2. 2 : Schéma bloc expérimental du spectromètre**

La source laser est donc une diode laser DFB (Distributed FeedBack) fournie par Nanoplus GmbH. Dans cette expérience, l'accord spectral de la diode est effectué en modulant le courant d'entrée à partir d'une source de courant. La diode est contrôlée par un élément Peltier, le boîtier électronique ayant été développé au GSMA. Au point de fonctionnement du laser ( $i_{DL}=70\text{mA}$  et  $T_{DL}=30^\circ\text{C}$ ), la puissance moyenne du laser est de 10 mW. Lors des acquisitions, le courant de la diode sera fixé à 59.8 mA et la température (*i.e* résistance) à 4 valeurs différentes (*i.e.* 6215 Ω, 6867 Ω, 7517 Ω et 8290 Ω) pour couvrir la totalité du spectre d'émission de la source. Pour chaque température, une modulation de 1.1 V est alors appliquée pour accorder la longueur d'onde d'émission. Au final l'émission peut donc couvrir un domaine d'approximativement 6 cm<sup>-1</sup> (*i.e.* de 4872.8 cm<sup>-1</sup> à 4879 cm<sup>-1</sup>). Le faisceau de la diode laser est focalisé par une lentille asphérique de focale 50 mm et de diamètre 25.4 mm.

Tab.2. 1 : Caractéristiques de la diode laser

	Paramètre	Symbole	Unité	Valeur typique	Valeur max
<b>Peltier</b>	différence de température maximale	$\Delta T_{max}$	K	73	
	courant maximum	$I_{max}$	A	1.2	
	tension maximale	$U_{max}$	V	2.2	
	puissance maximale	$Q_{max}$	W	1.45	
	thermistance à 25°C	$R_0$	$\Omega$	8785	
	thermistance b	b	$\Omega$	3288	
<b>DFB</b>	courant d'opération	U	V		2
	courant maximal	$I_{max}$	mA		100
	courant limite	$I_{th}$	mA	16	
	pente d'efficacité	e	mW/mA	0.21	

Cinq raies d'absorption de la bande  $(20^0 1)_{III} \leftarrow (000)_I$  du CO<sub>2</sub> sont accessibles dans l'intervalle d'accordabilité de la diode Nanoplus. D'autres raies d'intensité plus faible sont accessibles dans le même intervalle et font partie de la bande  $(20^0 1)_{II} \leftarrow (000)_I$  du <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> et <sup>18</sup>O<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O. Ces raies n'ont pas été étudiées ici mais ont été prises en compte dans le processus de traitement. Le faisceau laser issu de la diode est séparé en deux parties via un beam-splitter. L'absorption dans les éléments optiques est négligeable. Le faisceau principal passe ensuite au travers d'une cellule d'absorption.

Nous représentons sur la figure suivante (Fig.2. 3) quatre des différentes raies dans la bande  $(20^0 1)_{II} \leftarrow (000)$  du C<sup>12</sup>O<sub>2</sub><sup>16</sup> accessibles dans la plage d'accordabilité de la diode laser DFB Nanoplus en prenant en compte le rapport isotopique naturel du dioxyde de carbone, à savoir pour C<sup>12</sup>O<sub>2</sub><sup>16</sup> : 98.42 % et pour C<sup>13</sup>O<sub>2</sub><sup>16</sup> 1.1106 %. La liste de ces raies est résumée dans le tableau ci-après (Tab.2. 2).

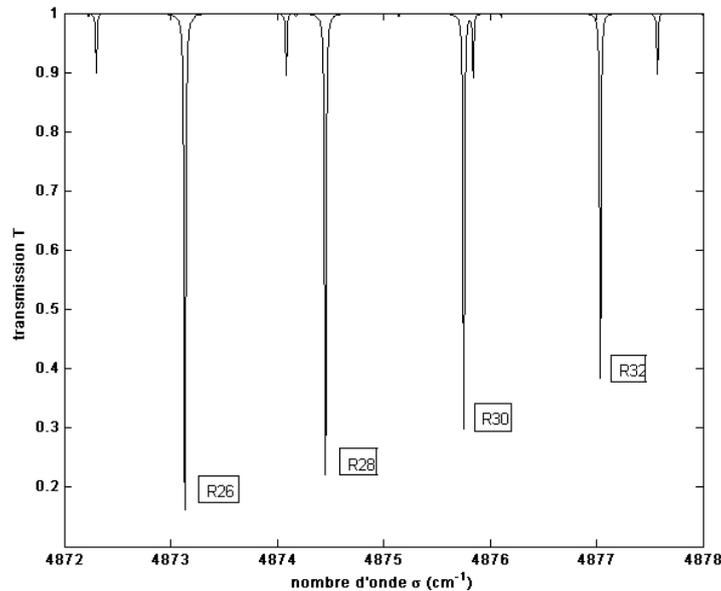


Fig.2. 3 : Transmission des raies d'absorption du CO<sub>2</sub> modélisée avec un profil de Voigt d'après les paramètres spectroscopiques de HITRAN et situées dans le domaine d'accordabilité de la diode entre 4872 et 4878 cm<sup>-1</sup>. L=203.8 cm, p=39.5 mbar et T= 293 K

**Tab.2. 2 : Raies du dioxyde de carbone situées dans le domaine d'accordabilité de la diode laser**

Isotope	Raie	Nombre d'onde (cm <sup>-1</sup> )	Transition
C <sup>12</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	R26	4873.129257	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>III</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
C <sup>13</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	P16	4874.086104	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>I</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
C <sup>12</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	R28	4874.448363	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>III</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
<b>C<sup>12</sup>O<sub>2</sub><sup>16</sup></b>	<b>R30</b>	<b>4875.74873</b>	<b>(20<sup>0</sup>1)<sub>III</sub>←(00<sup>0</sup>0)<sub>I</sub></b>
C <sup>13</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	P14	4875.842797	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>I</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
C <sup>12</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	R32	4877.070346	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>III</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
C <sup>13</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	P12	4877.572434	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>I</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>
C <sup>12</sup> O <sub>2</sub> <sup>16</sup>	R34	4878.293422	(20 <sup>0</sup> 1) <sub>III</sub> ←(00 <sup>0</sup> 0) <sub>I</sub>

Une cellule multipassages de type White d'une longueur de 203.8 cm pour les mesures d'intensité  $S$  et 1003.8 cm pour les mesures d'élargissement par l'air  $\gamma_a$  est utilisée. La température de la cellule est ajustable et des mesures ont été effectuées entre la température ambiante (295 K) et 210 K (incertitude totale : 1K). La partie restante du faisceau est couplée à un interféromètre de Fabry-Perot confocal utilisé pour l'étalonnage en fréquence (Intervalle Spectral Libre : ISL = 0.0095 cm<sup>-1</sup>). Deux photodiodes sont utilisées pour la détection des deux signaux, qui sont envoyés vers un PC pour l'acquisition des données via un module d'acquisition analogique/digital 16 bits DT9832.

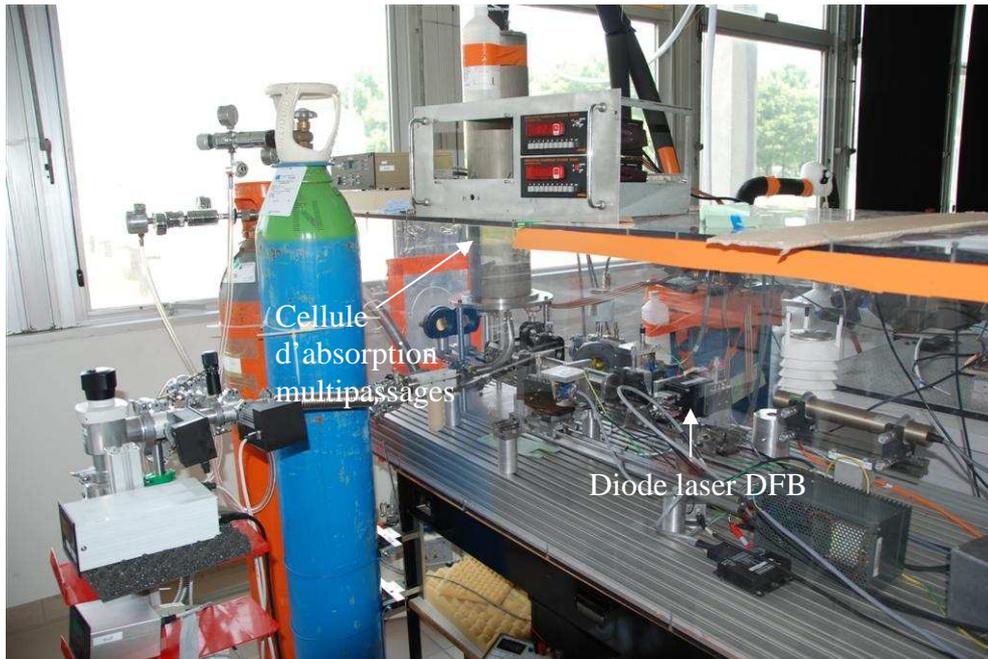
Le dioxyde de carbone est fourni par Air Liquide ainsi que l'air sec, chacun avec une pureté de 99.999%. La pression est mesurée avec une incertitude de 0.5% à l'aide de deux manomètres MKS Baratron (modèle 122BA) de pleine échelle 10 et 1000 Torr. Les variations de température et de pression sont négligeables durant la durée de mesure (0.5 s).

Dans un premier temps, un scan est effectué sur la totalité des spectres et les raies observées sont identifiées par comparaison aux spectres obtenus à partir des valeurs de la base de données HITRAN. Les raies isotopiques (d'intensités plus faibles) permettent notamment l'identification des raies.

Nous enregistrons environ 30 spectres par raie à des pressions variées de 2 à 14 mbar pour les mesures d'intensité et de 50 à 1000 mbar pour les mesures d'élargissement par l'air.

Dans ce dernier cas, la concentration de CO<sub>2</sub>, notée  $c$ , est autour de 1%.

Pour retrouver les paramètres spectroscopiques de la raie, un ajustement non-linéaire des moindres carrés sera appliqué à la transmission moléculaire expérimentale en utilisant un profil de Voigt pour modéliser la forme de raie.



**Fig.2. 4 : Spectromètre à diode laser du GSMA**

L'utilisation d'autres types de profils comme Rautian-Sobelman ou Galatry a démontré que, pour ces raies, même si les résidus étaient parfois plus faibles que ceux obtenus avec le profil de Voigt, l'influence sur les paramètres retrouvés était inférieure à 0.5%, ce qui est du même ordre de grandeur que la précision statistique sur les mesures d'intensité. Nous pouvons réécrire le profile de Voigt en fréquence, comme :

$$\tilde{\sigma}(\nu) = \frac{S}{\gamma\pi} y \left( \frac{\ln 2}{\pi} \right)^{-1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-u^2)}{y^2 + (x-u)^2} du \quad (2.42)$$

Avec

$$x = (\ln 2)^{1/2} (\nu - \nu_0) / \gamma_D, \quad y = (\ln 2)^{1/2} \gamma / \gamma_D \quad \text{et} \quad \gamma_D = \nu_0 / c (2 \ln 2 RT / m)^{1/2}$$

### 3. Mesures spectroscopiques

#### 3.1. Détermination des intensités de raie

Afin de déterminer les intensités de raies, une série d'acquisitions des spectres en transmission de chaque raie est effectuée à différentes pressions de CO<sub>2</sub> pur. Les mesures sont réalisées à température ambiante (295 K ± 1 K). L'intensité des raies à 296 K est ensuite calculée.

Pour déterminer l'intensité absolue, une méthode de régression linéaire des moindres-carrés est appliquée au fit effectué sur la transmission moléculaire réalisé en utilisant un profil de Voigt.

Afin de retrouver la transmission moléculaire, dans un premier temps le signal d'absorption est calibré en fréquence à l'aide d'une interpolation polynomiale sur les franges d'interférence du signal de Fabry-Pérot. Dans un deuxième temps, la transmission moléculaire  $T(\nu)$  est extraite du signal de cuve en utilisant la relation :  $A(\nu) = A_0 T(\nu)$ .

Avec  $A_0$  le signal de cuve sans molécules absorbantes. Cette quantité est calculée par régression linéaire sur l'ensemble du spectre ou plus pratiquement en enregistrant un signal de cuve à vide. Ceci est possible lorsque la puissance laser est constante ce qui est généralement le cas lorsque la source laser est une diode laser DFB.

L'intensité de la raie  $S(T)$  est liée à la transmission moléculaire par la loi de Beer-Lambert :

$$T(\nu) = \frac{I_T(\nu)}{I_0(\nu)} = e^{-\alpha(\nu, T, P)NL}$$

Avec  $I_T$ , l'intensité transmise et  $I_0$  l'intensité initiale,  $\alpha(\nu, T, P)$  le coefficient d'absorption à la fréquence  $\nu$  à la pression  $P$  et la température  $T$ ,  $N$  la densité de molécules absorbantes et  $L$  la longueur du chemin optique.

Le coefficient d'absorption  $\alpha(\nu)$  peut s'exprimer par rapport à la section efficace d'absorption  $\sigma(\nu)$  comme :  $\alpha(\nu) = \sigma(\nu)N$

Les intensités de raie sont mesurées en  $\text{cm}^{-1}/(\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2})$  à la température de chaque spectre, en utilisant la pression mesurée sans correction de l'abondance isotopique (pression totale mesurée). La force de raie pour l'isotope <sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub> pur peut être obtenue en divisant la force de raie déterminée par la fraction isotopique : 0.984204.

Des exemples de spectres obtenus pour la transition R30 du CO<sub>2</sub> à 4875.75  $\text{cm}^{-1}$  sont présentés ci-après (**Fig.2. 5**). Cette force de raie pour chaque spectre est ensuite normalisée à  $T_0 = 296$  K à l'aide de l'équation (2.43) afin que les différents spectres puissent être moyennés.

$$S(T_0) = S(T) \frac{Q_V(T)}{Q_V(T_0)} \frac{Q_R(T)}{Q_R(T_0)} \exp \left[ -\frac{hcE_0}{k} \left( \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (2.43)$$

$Q_V$  et  $Q_R$  sont respectivement les fonctions de partition vibrationnelle et rotationnelle et sont calculées en utilisant les expressions données dans [Gamache 2003].

La valeur pour un gaz de pur isotope peut être obtenue en divisant la valeur donnée dans HITRAN par la fraction isotopique, dans notre cas 0.984204.

Nous pouvons remarquer sur la figure suivante (Fig.2. 5) que les résidus n'excèdent pas 0.2 %.

L'incertitude correspond à un écart-type obtenu en moyennant les mesures à 296 K pour chaque raie.

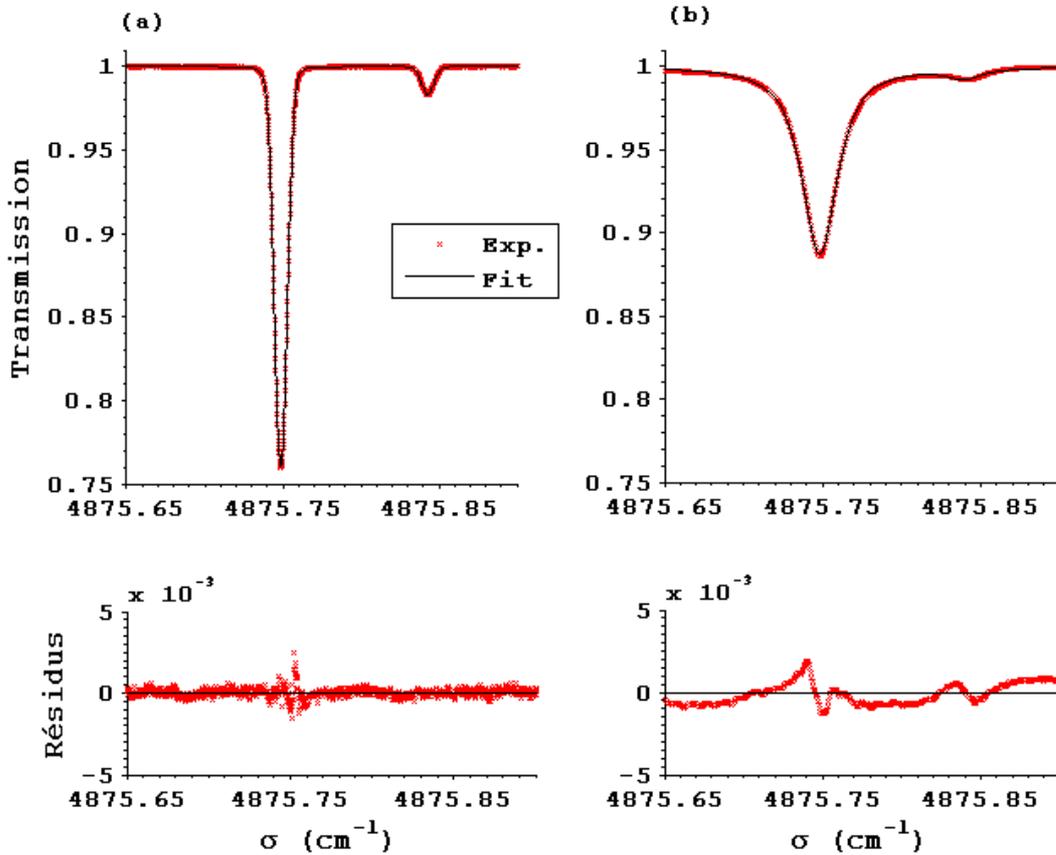


Fig.2. 5 : Exemple de spectres d'absorption enregistrés pour la transition R30 du CO<sub>2</sub> à 4875.75 cm<sup>-1</sup>. Les profils expérimentaux et les ajustements par profil de Voigt sont représentés. Les résidus calculés sont présentés sur les figures du bas. Les conditions expérimentales sont : (a)  $p = 3.71$  mbar,  $T = 293$  K,  $L = 203.8$  cm. (b)  $p = 166.1$  mbar,  $T = 295$  K,  $L = 1003.8$  cm et  $\rho_{CO_2} = 0.009$ .

Les résidus du profil de Voigt ont une forme de M typique de l'approche par modèle de Voigt. L'ajustement peut éventuellement être amélioré et les résidus réduits en utilisant un modèle tel que le modèle de Rautian-Sobelman.

Lors de la procédure d'ajustement, la valeur du coefficient auto-collisionnel  $\gamma_s$  n'a pas été fixée. Nous pouvons tout de même remarquer que la valeur ajustée est très proche de celle répertoriée dans HITRAN 2004 et est intermédiaire entre celles reportées dans [Regalia-Jarlot 2006] et [Toth 2007]. Les valeurs d'intensité à 296 K,  $S_0$ , retrouvées pour les cinq raies sont regroupées dans le tableau ci-

après (Tab.2. 3). Dans ce tableau sont aussi données les valeurs issues de HITRAN 2004 [Rothmann 2005] ainsi que de [Regalia-Jarlot 2006] et [Toth 2006] et la différence (%) avec les valeurs trouvées lors de cette étude.

**Tab.2. 3 : Intensité de raie à 296 K dans la région spectrale 2.05 μm pour les raies R26 à R 34 du CO<sub>2</sub> et comparaison avec les études précédentes. Les nombres entre parenthèses correspondent à l'incertitude sur la dernière décimale**

Raie	$\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	$S_0$ (10 <sup>-22</sup> cm <sup>-1</sup> /(molecule.cm <sup>-2</sup> ))						
		Ce travail	HITRAN 2004	Diff. (%)	Regalia et al 2006	Diff. (%)	Toth et al 2006	Diff. (%)
R26	4873.1290	1.984(7)	2.295	-16	1.996(40)	-0.6	1.985(15)	-0.1
R28	4874.4481	1.747(9)	2.019	-16	1.760(35)	-0.7	1.745(15)	0.1
<b>R30</b>	<b>4875.7487</b>	<b>1.507(6)</b>	<b>1.741</b>	<b>-16</b>	<b>1.509(30)</b>	<b>-0.1</b>	<b>1.504(11)</b>	<b>0.2</b>
R32	4877.0305	1.278(7)	1.474	-15	1.284(26)	-0.5	1.273(11)	0.4
R34	4878.2932	1.060(12)	1.225	-16	1.065(21)	-0.5	1.057(8)	0.3

Les résultats obtenus pour les valeurs d'intensité  $S_0$  des cinq raies étudiées sont très proches de ceux publiés dans les études les plus récentes. Cependant l'incertitude a été réduite (excepté pour la raie R34) et se situe aux alentours des 0.5 % (pour les raies R26 à R32). Les incertitudes sur la détermination de  $S_0$  pour cette expérience et les études précédentes sont regroupées dans le tableau suivant (Tab.2. 4).

**Tab.2. 4 : Incertitude en % sur la détermination de  $S_0$  lors de cette étude et des précédentes ([Regalia 2006] et [Toth 2006])**

Raie	$\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	Ce travail	Regalia et al 2006	Toth et al 2006
R26	4873.1290	0.35	2	0.76
R28	4874.4481	0.52	1.99	0.86
<b>R30</b>	<b>4875.7487</b>	<b>0.4</b>	<b>1.99</b>	<b>0.73</b>
R32	4877.0305	0.55	2.02	0.86
R34	4878.2932	1.13	1.97	0.66

Les résultats obtenus sur les intensités sont en très bon accord avec les expériences les plus récentes. Par rapport aux récentes publications [Régalia-Jarlot 2006] et [Toth 2006], l'écart n'excède pas 0.7% sur les cinq raies investiguées. Ces nouveaux résultats sur la valeur de  $S_0$  sont généralement intermédiaires aux valeurs reportées dans ces deux publications. Le gain en précision (*cf.* **Tab.2. 4**) par rapport aux mesures effectuées dans le même groupe [Regalia-Jarlot 2006] est du au gain en sensibilité du spectromètre à diode laser par rapport au spectromètre à transformée de Fourier précédemment utilisé. D'un autre côté, ces résultats sont très éloignés de ceux de HITRAN 2004 (16 % en moyenne). La prochaine mise à jour de HITRAN inclura les valeurs publiées dans [Toth 2006] qui, au vu des résultats obtenus lors des trois études récentes seront plus proches des valeurs réelles.

Les résultats obtenus lors de cette étude sont probablement les moins biaisés jamais reportées au vu des incertitudes obtenues, notamment pour la raie R30 (0.4%) qui nous intéresse plus particulièrement.

### 3.2. Coefficient d'élargissement par l'air $\gamma_a$ et coefficient de dépendance en température $\eta$

Afin de déterminer le coefficient d'élargissement par l'air  $\gamma_a$ , un parcours supérieur dans la cuve est utilisé par rapport à celui utilisé dans le cas des intensités (1003.8 cm pour 203.8 cm dans le cas de  $S_0$ ). Nous faisons varier la pression entre 50 et 1000 mbar.

L'étude est menée sur un spectre de température allant de  $-62^\circ\text{C}$  à température ambiante en vue de l'étude du coefficient de dépendance en température  $\eta$ . De manière plus détaillée, les différentes températures étudiées sont :  $-62^\circ\text{C}$ ,  $-45^\circ\text{C}$ ,  $-25^\circ\text{C}$ ,  $-3^\circ\text{C}$  et  $22^\circ\text{C}$ .

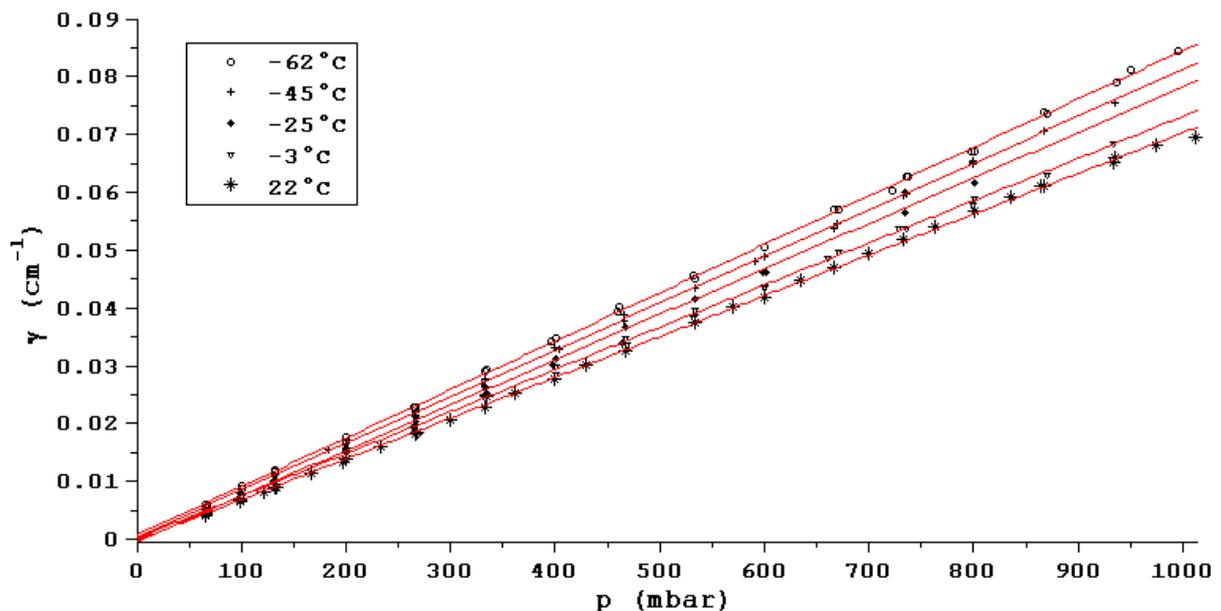


Fig.2. 6 : Largeur à mi hauteur de la transition R 30 déterminée par un profil de Voigt en fonction de la pression et leurs régressions linéaires pour différentes températures

Les largeurs à mi-hauteur sont mesurées en cm<sup>-1</sup> pour chaque température. Cette procédure est effectuée pour les 5 raies accessibles dans la plage d'accordabilité de la diode. Les largeurs retrouvées après la procédure d'ajustement sont tracées en fonction de la pression sur la figure précédente (**Fig.2. 6**).

La régression linéaire sur la courbe à température ambiante, nous permet de déterminer pour les 5 raies le coefficient d'élargissement par l'air  $\gamma_0(296K, p_0) = \gamma_{air}$  exprimé en (cm<sup>-1</sup>.atm<sup>-1</sup>). Cette valeur est simplement la valeur de la largeur à mi-hauteur définie pour une pression  $p=P_0$  à 296K.

Les valeurs déterminées par cette étude sont répertoriées dans le tableau suivant (**Tab.2. 5**) pour les cinq raies étudiées avec les valeurs déterminées lors des études précédentes et le tableau suivant (**Tab.2. 6**) répertorie les incertitudes sur la détermination de  $\gamma_{air}$  lors de ces expériences.

**Tab.2. 5 : Coefficient d'élargissement par l'air  $\gamma_{air}$  dans la région spectrale 2.05  $\mu$ m pour les raies R26 à R 34 du CO<sub>2</sub> et comparaison avec les études précédentes. Les nombres entre parenthèses correspondent à l'incertitude sur la dernière décimale**

Raie	$\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	$\gamma_{air}$ (cm <sup>-1</sup> /atm)				
		Ce travail	HITRAN 2004	Diff. (%)	Toth et al. 2007	Diff. (%)
R26	4873.1290	0.0727(3)	0.0692	4.8	0.0704(14)	3.2
R28	4874.4481	0.0714(13)	0.0687	3.8	0.0699(14)	2.1
<b>R30</b>	<b>4875.7487</b>	<b>0.0703(13)</b>	<b>0.0684</b>	<b>2.7</b>	<b>0.0693(14)</b>	<b>1.4</b>
R32	4877.0305	0.0691(10)	0.0681	1.4	0.0688(14)	0.4
R34	4878.2932	0.0675(10)	0.0678	-0.4	0.0684(13)	-1.3

**Tab.2. 6 : Incertitude en % sur la détermination de  $\gamma_{air}$  lors de cette étude et de [Toth 2007]**

Raie	$\sigma$ (cm <sup>-1</sup> )	Ce travail	Toth et al 2007
R26	4873.1290	0.41	1.99
R28	4874.4481	1.8	2
<b>R30</b>	<b>4875.7487</b>	<b>1.85</b>	<b>2.02</b>
R32	4877.0305	1.45	2.03
R34	4878.2932	1.48	2.05

Les résultats résumés dans le tableau sont comparés aux résultats des études précédentes. Nos résultats sont en très bonne adéquation avec les données de HITRAN 2004 et de la dernière étude publiée ([Toth 2007]).

Comme nous le voyons (Tab.2. 6), mis à part pour la raie R26, l'incertitude sur le coefficient d'élargissement par l'air reste somme toute assez élevée lorsque celui-ci est déterminé sur une seule température (1.8% dans le cas de la raie R30 par exemple) et la précision de ces mesures n'est pas grandement supérieure à celles reportées en 2007.

Le coefficient d'élargissement en fonction de la température est donné par l'équation (2.29), que nous pouvons réécrire d'une manière générale :

$$\gamma = \gamma_0 \frac{P}{P_0} \left( \frac{T_0}{T} \right)^\eta \quad (2.44)$$

Et qui peut être écrite sous la forme :

$$\ln \gamma(T) = -\eta \ln(T) + \ln(\gamma_0(296K)) + \eta \ln(296) \quad (2.45)$$

Le logarithme népérien du coefficient d'élargissement obtenu à différentes températures est tracé en fonction de  $\ln(T)$  sur la figure suivante (Fig.2. 7) (pour la raie R30).

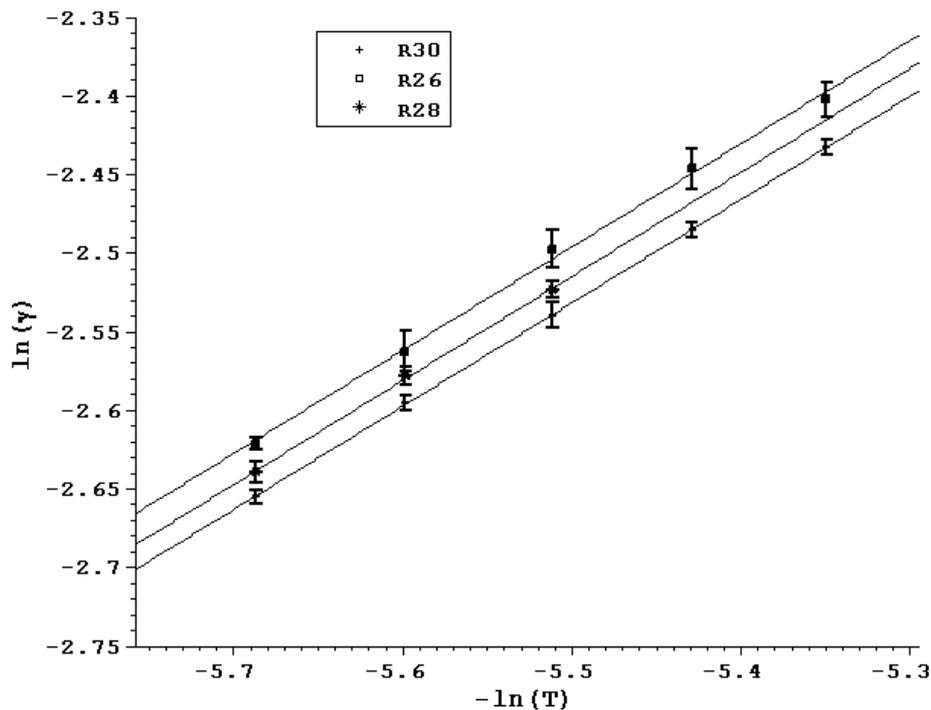


Fig.2. 7 :  $\ln(\gamma)$  en fonction de  $-\ln(T)$  pour déterminer  $\eta$

En utilisant l'équation (2.45), nous calculons les coefficients d'élargissement à 296 K  $\gamma_0(296K)$  et le coefficient de dépendance en température associé  $\eta$  pour les raies R26, R28 et R30. La pente de la

courbe nous donne directement le coefficient  $\eta$ . Par la suite, nous pouvons alors normaliser à la température de référence les coefficients d'élargissement obtenus aux diverses températures. Nous réduisons alors l'incertitude sur  $\gamma_0$  (296K) en moyennant ces mesures.

Nous pouvons remarquer premièrement que les lignes droites de régression tracées sont parfaitement parallèles pour les 3 transitions. Les coefficients d'élargissement par l'air et leur dépendance en température sont répertoriés dans le tableau suivant (Tab.2. 7). Il est à noter que pour la raie R28, les résultats à faible température n'étaient pas suffisamment précis. De fait la valeur du coefficient  $\eta$  n'a été déterminée qu'à partir des 3 valeurs aux températures supérieures. De même, ce paramètre n'a pu être déterminé pour les raies R32 et R34, les valeurs mesurées étant là encore trop imprécises, l'absorption devenant de plus en plus faible dans la cellule la température décroissant.

**Tab.2. 7 : Coefficients d'élargissements par l'air déterminés et incertitudes déterminées à plusieurs températures et coefficient de dépendance en température et comparaison avec les études précédentes**

Raie	$\gamma_0$ (cm <sup>-1</sup> /atm) at 296 K					$\eta$		
	Ce travail	HITRAN 2004	Diff. (%)	Toth et al. 2007	Diff. (%)	Ce travail	HITRAN 2004	Diff. (%)
R26	0.0727(3)	0.0692	4.8	0.0704(14)	3.2	0.656(20)	0.78	-19
R28	0.0713(2)	0.0687	3.7	0.0699(14)	2.0	0.662(17)	0.78	-18
<b>R30</b>	<b>0.0702(1)</b>	<b>0.0684</b>	<b>2.6</b>	<b>0.0693(14)</b>	<b>1.3</b>	<b>0.657(3)</b>	<b>0.78</b>	<b>-19</b>
R32	0.0691(10)	0.0681	1.4	0.0688(14)	0.4			
R34	0.0675(10)	0.0678	-0.4	0.0684(13)	-1.3			

L'incertitude sur le coefficient d'élargissement par l'air à la température de référence est très faible (0.15%) pour la raie d'intérêt principal de cette étude (*i.e.* raie R30 en vue d'une future mesure DIAL spatiale). Nous verrons par la suite que c'est un résultat primordial en vue de réduire les biais de mesures dus aux incertitudes spectroscopiques.

La même conclusion peut être tenue pour le coefficient  $\eta$  dont la valeur a été déterminée avec une incertitude inférieure à 0.45% dans le cas de la raie R30, alors que cette valeur n'avait jamais été reportée auparavant.

Nous pouvons d'ailleurs noter qu'en l'absence de mesures, ce paramètre a été fixé à une valeur de 0.78 dans HITRAN quelle que soit la raie d'absorption de la bande (20<sup>0</sup>1)<sub>III</sub> ← (000)<sub>I</sub>.

Bien que cette solution de fixer la même valeur pour toutes les transitions semble adéquate, celle-ci devrait l'être à une valeur de 0.66 plus réaliste au vu de ces mesures expérimentales.

#### **4. Mesure du pressure shift des raies de CO<sub>2</sub> autour de 2051 nm par spectroscopie photoacoustique**

Suite aux études précédentes, nous avons entrepris au LMD, la mesure du pressure shift de la raie R30 et des raies avoisinantes par spectroscopie photoacoustique au cours de la thèse. La spectroscopie photoacoustique est caractérisée par l'existence de nombres de techniques variées notamment selon les sources utilisées et de très grande sensibilité.

La théorie de la génération du signal photoacoustique est développée dans l'Annexe A.

Dans le cas où la radiation laser est modulée à une fréquence différente d'une des fréquences de résonance de la cellule, le signal photoacoustique s'exprime alors :

$$A_0(\nu) = \frac{(\gamma-1)\alpha(\nu)LW_L}{i\omega V_{cuve}} \quad (2.46)$$

Où  $\gamma$  est le coefficient adiabatique, rapport des chaleurs spécifiques isochore et isobare,  $\alpha(\nu)$  est le coefficient d'absorption à la fréquence  $\nu$ ,  $L$  la longueur de la cuve,  $W_L$  la puissance du laser,  $\omega$  la fréquence de modulation de la radiation laser et  $V_{cuve}$  le volume de la cuve.

Nous voyons donc que c'est une technique de détection directe à savoir que le signal mesuré est directement proportionnel au coefficient d'absorption du composé à la longueur d'onde d'excitation et donc à la section efficace à cette même longueur d'onde.

##### **4.1. Dispositif expérimental**

L'expérience envisagée s'appuie sur les travaux de Bosenberg [Bosenberg 1985] qui a étudié le « pressure shift » de raies de vapeur d'eau dans la région spectrale de 725 nm par une méthode de spectroscopie photoacoustique simultanée. Dans ce travail, deux cellules photoacoustiques non-résonantes sont successivement traversées par la radiation d'un laser pulsé. Une cellule est remplie de H<sub>2</sub>O pur à faible pression tandis que la deuxième est remplie d'un mélange de H<sub>2</sub>O à la même pression ainsi que d'air sec à pression atmosphérique. Une référence spectrale relative est déterminée à l'aide des franges d'un étalon Fabry-Pérot. Ainsi, il est possible de déterminer directement la valeur du pressure shift (exprimé en cm<sup>-1</sup>.atm<sup>-1</sup>) par le décalage entre les sommets des deux raies provenant respectivement de la cellule remplie de CO<sub>2</sub> pur et celle provenant du mélange de gaz.

Le laser est progressivement accordé en fréquence de manière à décrire le spectre d'absorption des différentes raies. Les deux spectres photoacoustiques provenant des deux cellules nous donne alors directement la valeur du décalage en pression induit par l'air.

Une expérience de ce type a premièrement été envisagée mais suite à des problèmes matériels, une seule cellule photoacoustique était en état de fonctionnement. Ainsi, le mode opératoire a été redéfini et consiste à utiliser successivement la même cellule photoacoustique remplie de CO<sub>2</sub> pur puis d'un mélange CO<sub>2</sub> + air sec. La cellule utilisée est présentée dans [Gibert 2007] et n'est pas résonante à la

fréquence de modulation utilisée. L'expérience et les résultats sont présentés ici succinctement, l'expérience ayant été peu concluante.

Le dispositif expérimental est constitué d'une diode DFB à 2051 nm (Nanoplus GMBH) dont la longueur d'onde d'émission est contrôlée par un thermo-élément Peltier. Cette émission laser est modulée à l'aide d'un chopper mécanique à une fréquence de 200 Hz. Une première lame séparatrice permet de récolter 10 % du signal laser (par l'intermédiaire d'un photodétecteur InGaAs) pour effectuer une normalisation en puissance afin de s'affranchir des fluctuations d'intensité de la diode DFB. Après traversée de la cellule photoacoustique, le faisceau est focalisé par une lentille de focale 25 mm afin de récolter le faisceau sur un détecteur InGaAs. Nous disposons ainsi d'un signal des franges du Fabry-Pérot nous permettant d'effectuer une calibration en fréquence. Le signal photoacoustique est détecté à l'aide d'un détecteur « lock-in » (détection synchrone).

Nous optimisons la taille des anneaux d'Haidinger sur le plan focal du détecteur qui a un diamètre de 75 µm en ne prenant qu'un seul anneau constructif. La lentille de focale 20 mm est placée à 6 cm du fabry-Pérot et le détecteur à 2.6 cm de la lentille.

La diode DFB Nanoplus GmbH est progressivement accordée en fréquence à l'aide d'un programme Labview développé durant la thèse. Ce programme permet de jouer directement sur le contrôleur peltier en contrôlant sa résistance ou son intensité. Nous fixons une valeur de courant (*i.e.* 100 mA) et accordons l'émission de la diode en faisant varier progressivement la résistance. Afin d'obtenir la meilleure résolution possible et de nous affranchir du temps de réponse de la stabilisation PID (Proportionnel Intégrale Dérivée), nous effectuons plusieurs boucles sur chaque consigne de résistance.

**Tab.2. 8 : Caractéristiques de la diode laser DFB Nanoplus**

	<b>Paramètre</b>	<b>Symbole</b>	<b>Unité</b>	<b>Valeur typique</b>	<b>Valeur max</b>
<b>DFB</b>	<i>courant d'opération</i>	<i>U</i>	V		2
	<i>courant maximal</i>	<i>I<sub>max</sub></i>	mA		100
	<i>courant limite</i>	<i>I<sub>th</sub></i>	mA	16	
	<i>pente d'efficacité</i>	<i>e</i>	mW/mA	0.21	

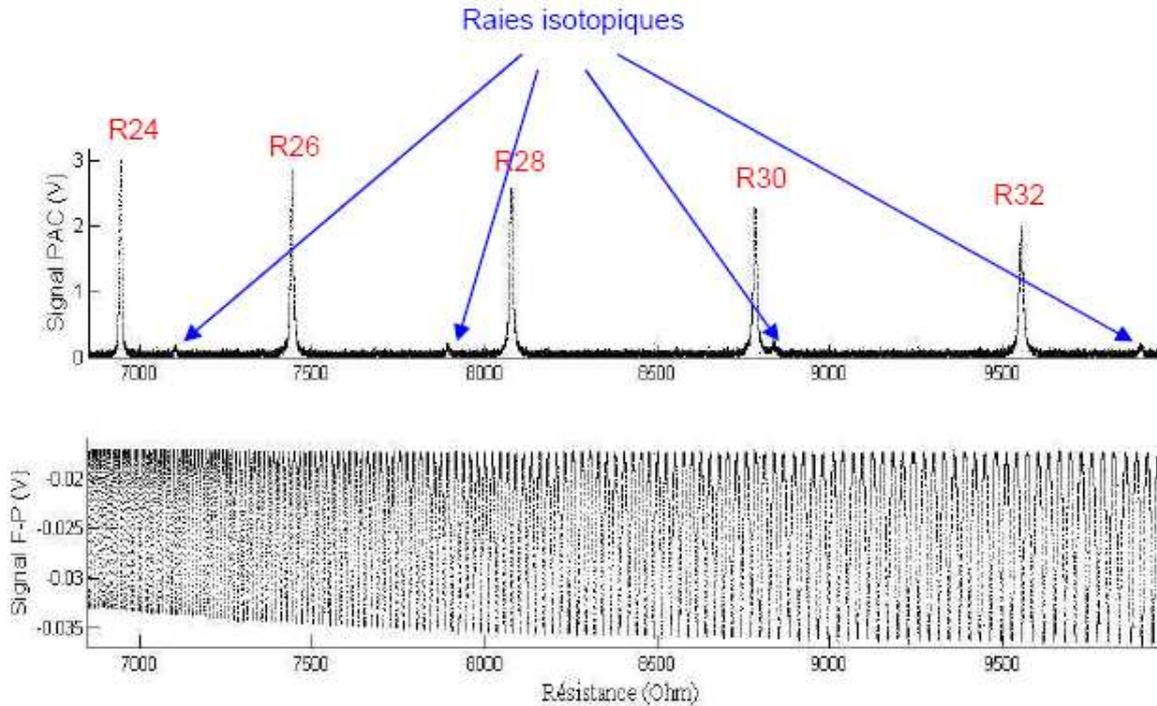
Ce dispositif nous permet alors de couvrir spectralement 6 raies dans la bande d'absorption  $(20^{01})_{III} \leftarrow (000)$  qui sont les raies R24 à R32.

Le domaine d'accordabilité de cette diode laser DFB Nanoplus est donc différent de celui de la diode utilisée dans le spectromètre d'absorption du GSMA.

La puissance moyenne de la diode est de 10 mW.

## 4.2. Résultats

La figure suivante (Fig.2. 8) présente un signal obtenu dans le cas d'une cellule remplie de 50 mbar de  $\text{C}^{12}\text{O}^{12}\text{C}^{12}$  ainsi que les franges du Fabry-Pérot obtenues pour les 5 raies en fonction de la résistance de l'élément Peltier.



**Fig.2. 8 : Signal photoacoustique et franges d'interférence du Fabry-Pérot en fonction de la résistance du Peltier pour une acquisition avec  $\text{CO}_2$  pur ( $p=50$  mbar)**

La résolution est très bonne et nous permet de décrire la raie très précisément.

Cependant, dans le cas du mélange de gaz, la pression initialement envisagée dans la cellule (*i.e.* 1 atm) ne permet pas de distinguer les raies d'absorption du bruit acoustique. En effet, comme vu précédemment et dans l'Annexe A, le signal photoacoustique est directement lié à la section efficace de la raie d'absorption du composé étudié. Dans 1 atm d'air, la section efficace des raies de  $\text{CO}_2$  étudiées est approximativement 2 ordres de grandeur inférieure à celles du composé à 50 mbar de  $\text{CO}_2$  pur.

A cette pression, il n'est pas possible de mesurer les raies d'absorption du  $\text{CO}_2$ , c'est pourquoi nous utilisons alors une pression d'air de 337 mbar ( $\sim 1/3$  atm).

Le signal est de même difficilement extractible du bruit. Cependant, nous pouvons malgré tout distinguer les 5 raies principales d'absorption bien que la forme lorentzienne attendue ne soit pas aisément distinguable. Afin de pouvoir utiliser malgré tout ce signal, nous l'ajustons par un profil gaussien en utilisant le logiciel IGOR. En effet, dans notre cas, la forme de la raie ne nous intéresse pas, seule la localisation du maximum du signal étant importante dans cette expérience.

L'étalonnage spectral est effectuée à l'aide des franges du Fabry-Pérot.

L'intervalle spectral libre (ISL) de l'étalon Fabry-Pérot est régi par son indice de réfraction  $n$  (dépendant de la longueur d'onde de la radiation laser  $\lambda$  et de la température  $T$ ) ainsi que par l'épaisseur de l'étalon  $e$  et l'angle d'incidence  $\theta$  selon la formule suivante :

$$ISL = \frac{\lambda_0^2}{2 \cdot n \cdot e \cdot \cos \theta + \lambda_0} \approx \frac{\lambda_0^2}{2 \cdot n \cdot e \cdot \cos \theta} \quad (2.47)$$

Dans notre cas l'épaisseur  $e = 25.072$  mm, l'indice de réfraction  $n = 4.099$  (à  $T = 296,5$  K) et l'étalon est utilisé en incidence normale d'où  $\theta = 0$ . L'alignement du Fabry-Pérot en incidence normale est effectué par auto-collimation.

L'indice de réfraction  $n$  est donné par une équation dite de Sellmeier et est dépendante de la température  $T$  et de la longueur d'onde  $\lambda$ . Les coefficients de Sellmeier utilisés sont tirés de [Frey 2006].

L'indice de réfraction est alors calculé pour une température de 296.5 K et une longueur d'onde de 2051 nm.

L'ISL donne l'écart spectral entre deux pics successifs et permet d'effectuer, dans notre cas, un étalonnage spectral de la courbe de transmission. La fonction de transmission de l'étalon Fabry-Pérot est régie par une fonction d'Airy et la transmittance de celui-ci s'écrit comme suit :

$$T_{FP} = \frac{(1-R)^2}{(1+R^2-2R\cos\delta)} = \frac{1}{1+F\sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right)} \quad (2.48)$$

Où le coefficient de finesse est :

$$F = \frac{4R}{(1-R)^2} \quad (2.49)$$

et la différence de phase entre deux réflexions successives :

$$\delta = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right) 2nl \cos \theta \quad (2.50)$$

L'incertitude de notre étalonnage spectral relatif est alors liée aux incertitudes sur les paramètres intervenant dans l'équation (2.47) à savoir  $e$ ,  $n$  et  $\theta$  ainsi que la température  $T$ .

L'incertitude sur la pression est elle de  $\pm 1$  mbar et celle sur la température est considérée égale à 1K.

Dans le cas de la raie R32, le signal photoacoustique obtenu dans le cas d'un mélange CO<sub>2</sub> + air est trop faible pour être utilisé et ce malgré plusieurs acquisitions. Dans le cas de la raie R26, la diode semble multimode au regard des franges du Fabry-Pérot et la raie n'est donc pas résolue. Ainsi, un pressure shift ne peut seulement être mesuré que pour les raies R24, R28 et R30.

Les calibrations spectrales et les pressure-shift déterminés sont représentés sur les figures suivantes (Fig. 2. 9 et Fig. 2. 10) pour respectivement les raies R28 et R30. Les ajustements gaussiens obtenus sous IGOR aux deux pressions sont présentés.

Cependant, le rapport signal à bruit des acquisitions en présence d'air est trop faible pour localiser précisément le pic maximal du signal. Plusieurs ajustements peuvent être réalisés sur la raie en minimisant les résidus. Nous prenons alors la position moyenne mais l'écart relatif en position spectrale par rapport au centre de la raie de CO<sub>2</sub> pur peut atteindre 6%.

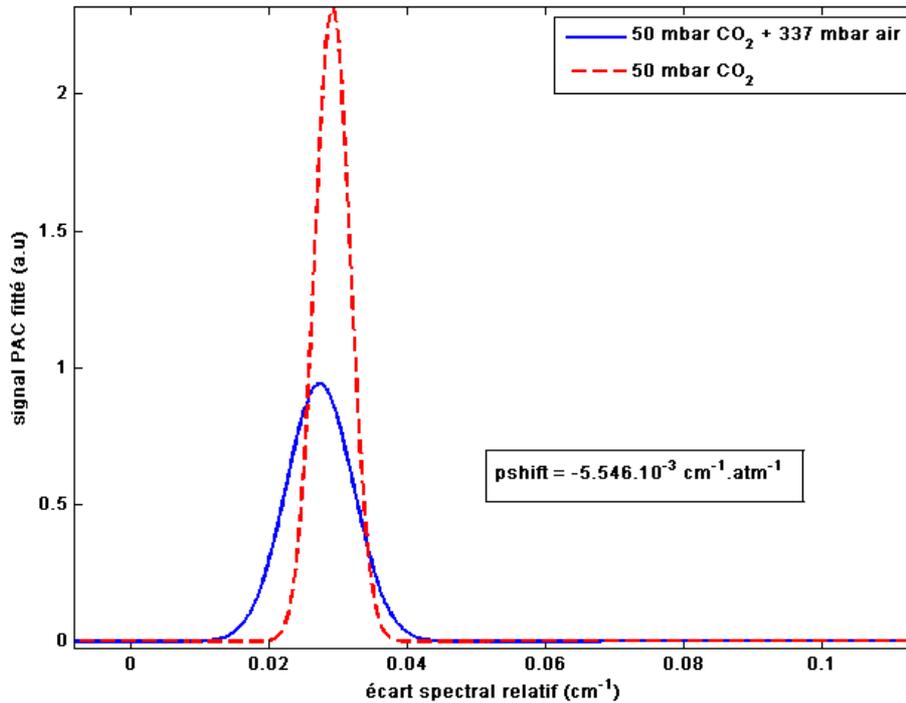


Fig. 2. 9 : Ajustements gaussiens des spectres photoacoustiques obtenus pour du CO<sub>2</sub> pur et un mélange CO<sub>2</sub>+air, et leurs calibrations relatives pour la raie R28

Le « pressure shift » pour chaque raie est alors directement donné pour chaque raie comme le produit de 3 fois l'écart spectral relatif entre les maxima des deux courbes.

Les résultats obtenus sont récapitulés dans le tableau ci-après (Tab. 2. 9) et comparés aux valeurs de la littérature.

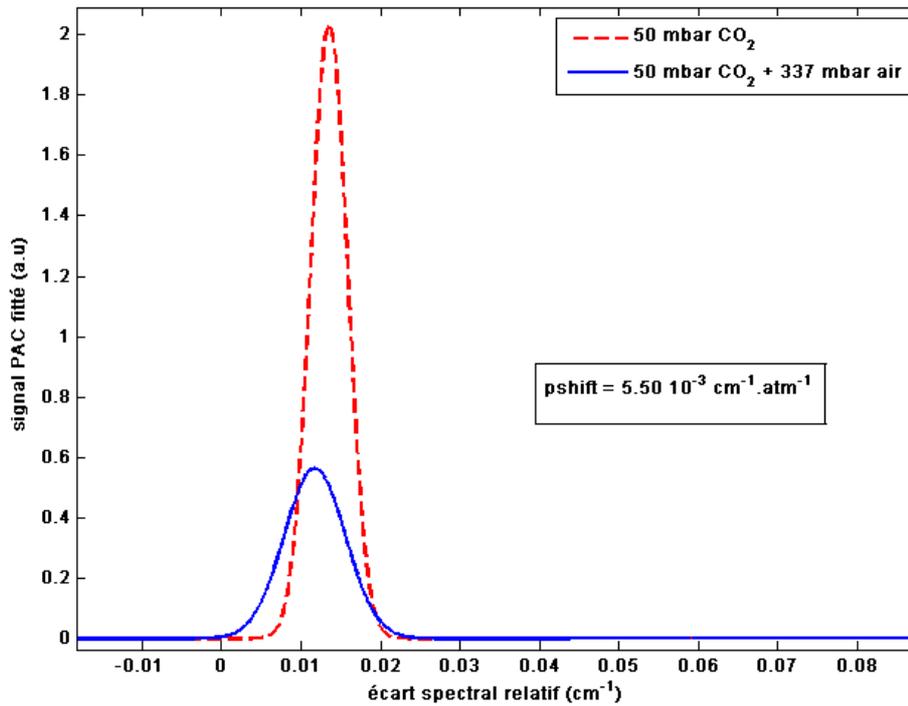


Fig.2. 10 : Ajustements gaussiens des spectres photoacoustiques obtenus pour du CO<sub>2</sub> pur et un mélange CO<sub>2</sub>+air, et leurs calibrations relatives pour la raie 30

Tab.2. 9 : Valeurs mesurées de « pressure shift » et incertitudes et comparaison aux valeurs obtenues dans [Toth 2007]

Raie	$p_{shift} * 10^{-3} (cm^{-1}.atm^{-1})$			
	Toth et al. (2007)		Ce travail	
	Valeur	Incertitude (%)	Valeur	Incertitude (%)
R24	-5.25	-5.2	-5.17	>5
R26	-5.35	-2.2		
R28	-5.52	-2.9	-5.55	>5
R30	-5.55	-2.6	-5.50	>5
R32	-5.67	-0.6		

Cette expérience n'a pas été concluante du fait de la trop faible sensibilité de la cuve photoacoustique utilisée. De plus, les fits gaussiens des spectres obtenus ne sont pas adéquats. Afin que le LMD se dote d'un spectromètre photoacoustique permettant de déterminer précisément ces « pressure shift » par ce type d'expérience, plusieurs pistes évidentes sont à étudier :

- il faut définir deux cuves résonantes à des fréquences de modulation accessibles par le chopper mécanique
- La diode laser DFB doit être remplacée par une source laser pulsée accordable continument en fréquence à ces longueurs d'onde. Typiquement la source OPO présentée au chapitre suivant permettrait d'envisager une mesure précise de ce paramètre.

## **5. Biais potentiels sur les mesures DIAL dus aux incertitudes spectroscopiques**

A partir de l'équation (1.36), nous comprenons bien qu'une mesure DIAL en colonne totale intégrée est sensible à deux types d'erreurs : les erreurs dues à la mesure DIAL d'épaisseur optique différentielle (erreurs instrumentales aléatoires et systématiques) et des erreurs sur le calcul de la fonction de poids (équation (1.38)). Les erreurs aléatoires dues aux erreurs de mesure de  $T$ ,  $p$  et  $\rho_w$  ont déjà été étudiées précédemment [Menziez 2003, FACTS 2005, Ehret 2008].

L'erreur résultante sur le rapport de mélange en CO<sub>2</sub> pour la raie R30 avec une émission sur le flanc de raie (3 GHz du centre de raie) est de 0.5 ppm pour une erreur de 1 hPa sur la pression de surface diffusante et de 0.3 ppm et 0.1 ppm pour respectivement des erreurs de température et d'humidité en utilisant la matrice de covariance d'erreur donnée par le modèle de précision météorologique ARPEGE de Météo-France. [A-SCOPE 2008, Ehret 2008] (*cf.* Annexe B).

Les erreurs instrumentales sont liées à la configuration de l'instrument et ne seront pas investiguées dans cette étude.

Nous allons ici nous focaliser sur les biais potentiels dus aux incertitudes sur les paramètres spectroscopiques.

Afin de remplir les objectifs scientifiques de restitution des puits et des sources, une mission DIAL spatiale de mesure du CO<sub>2</sub> en rapport de mélange intégré sur toute la colonne doit remplir deux conditions (*cf.* **Tab.1. 5**) :

- Le biais global doit être inférieur à 1 ppm dans le cas d'une fonction de poids de CO<sub>2</sub> constante (1.64 ppm pour le positionnement sur l'aile de la raie R30). Ceci concerne la précision du bilan carbone global et est aussi nécessaire pour effectuer des comparaisons entre les différentes techniques de mesure (mesures satellites passives, mesures in-situ...).
- Le biais inter-régional doit être inférieur que 0.1 ppm pour une fonction de poids constante (*i.e.* 0.164 ppm dans le cas d'une mesure sur l'aile de la raie R30). Ceci est nécessaire afin d'estimer précisément les flux inter-régionaux obtenus par des mesures entre deux régions (1000 km × 1000 km). C'est un critère capital afin de déterminer précisément les puits et sources de CO<sub>2</sub> [A-SCOPE 2008].

### **5.1. Evaluation des biais potentiels sur la restitution du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> dus aux incertitudes spectroscopiques**

En supposant une connaissance parfaite des variables météorologiques que sont  $T$ ,  $p$  et  $\rho_w$ , une erreur  $\delta X$  sur un paramètre spectroscopique va induire un biais sur le rapport de mélange en CO<sub>2</sub> mesuré :

$$\delta\rho(p_{surf}, T(p), \delta X) = \frac{\tau}{SWF(p_{surf}, T(p), \delta X)} - \frac{\tau}{SWF(p_{surf}, T(p), \delta X = 0)} \quad (2.51)$$

avec  $p_{surf}$  la pression de la surface réfléchissante à savoir la pression correspondant à l'altitude jusqu'à laquelle est intégrée la mesure.

Mise à part la force de raie  $S$  qui induit un biais constant, le biais induit est dépendant du profil de température par le calcul de la section efficace d'absorption et de la pression de la surface réfléchissante (qui inclut les effets d'altitude). La dépendance en  $p_{surf}$  correspond à la profondeur du domaine d'intégration de la fonction de poids. A savoir, les variations de pression de surface réfléchissante correspondent à des variations d'altitude d'intégration.

Le biais est aussi dépendant du contenu en vapeur d'eau, mais avec une sensibilité beaucoup plus faible qui ne sera pas détaillée ici.

Dans la suite de cette étude, nous allons donc évaluer ce biais différentiel pour des mesures entre deux régions aux paramètres météorologiques différents.

Pour ceci, un profil de Voigt, évalué à l'aide de l'algorithme d'Humlicek [Humlicek 1978], est utilisé pour calculer une section efficace d'absorption. A partir de l'équation (2.51), nous calculons alors les biais en fonction de pression de la surface réfléchissante dans le cas de diverses conditions météorologiques.

Celles-ci sont modélisés en utilisant les profils de température de l'ESA correspondant à 3 zones météorologiques différentes : un profil standard (nommé STA), un profil tropical (noté TRO) et un profil sub-arctique hivernal (SAW : Sub-Artic Winter). Les profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour ces 3 situations sont représentés sur les figures suivantes (**Fig.2. 11**, **Fig.2. 12** et **Fig.2.13**) entre la surface et une pression atmosphérique de 500 hPa.

Le profil de Voigt est un profil non-linéaire en fonction des paramètres spectroscopiques, une exception devant être faite pour la force de raie  $S_0$  comme mentionné précédemment.

Ces biais vont donc être estimés pour des incertitudes sur les paramètres spectroscopiques suivants :  $\gamma_0$ ,  $\eta$ ,  $p_{shift}$  et  $E''$ .

Nous considérerons par la suite l'incertitude sur le paramètre d'élargissement comme l'incertitude sur le seul coefficient d'élargissement par l'air  $\gamma_a$  sans prendre en compte le coefficient d'auto-élargissement du CO<sub>2</sub>, la pression partielle de CO<sub>2</sub> étant faible par rapport à la pression atmosphérique totale.

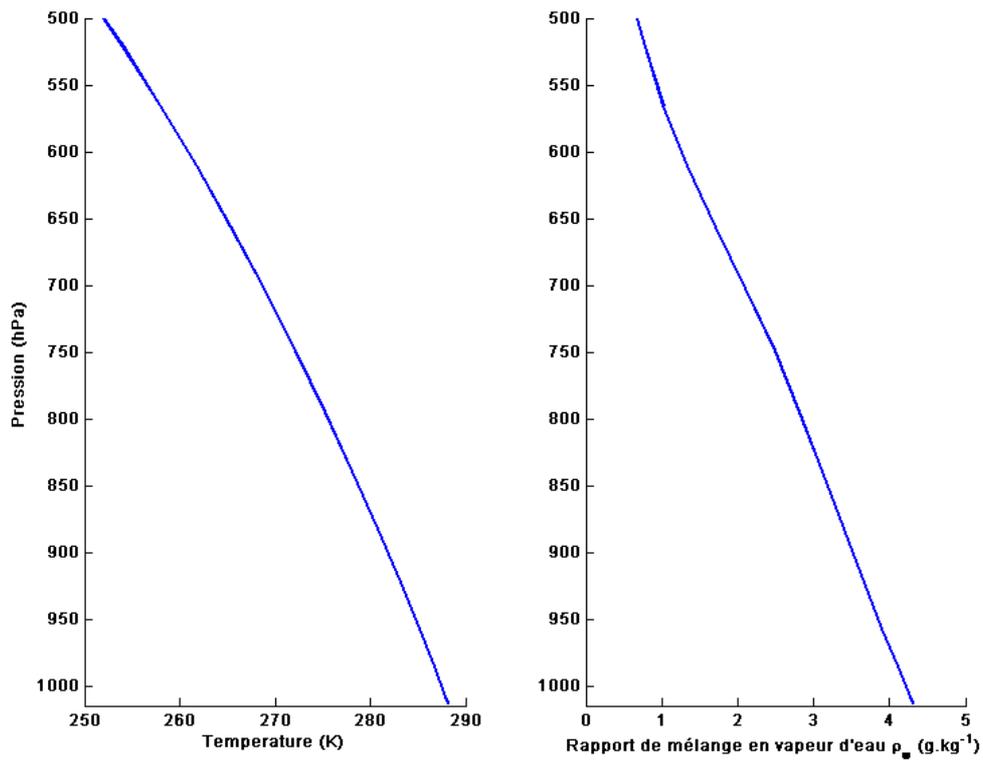


Fig.2. 11: Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil STA de l'ESA

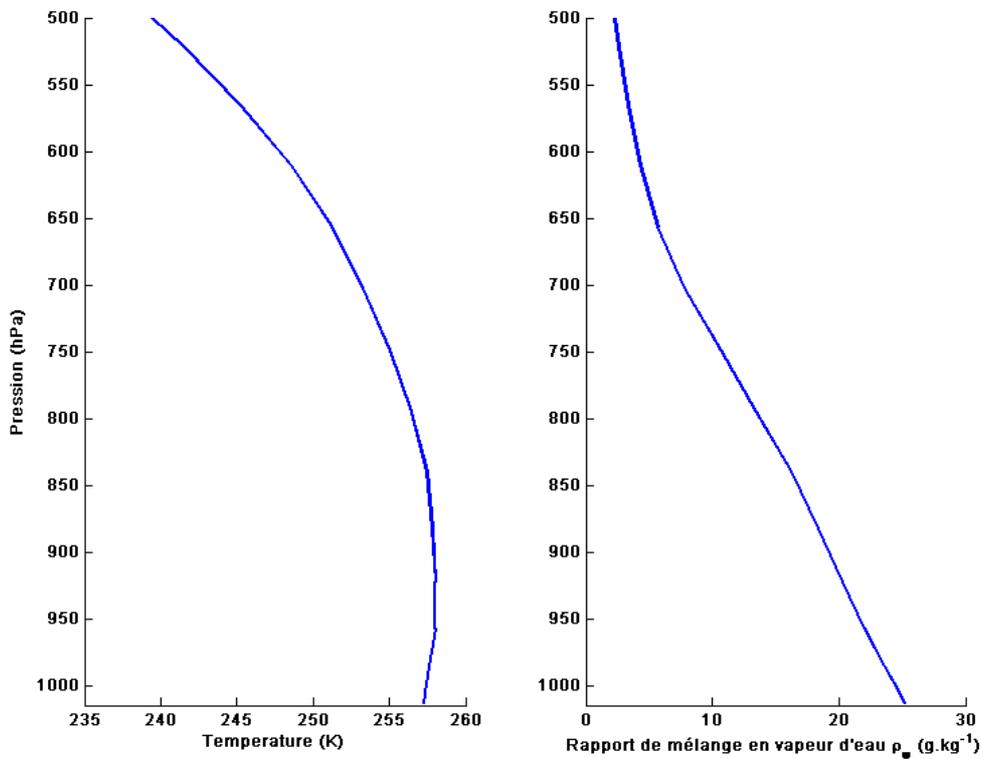


Fig.2. 12: Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil SAW de l'ESA

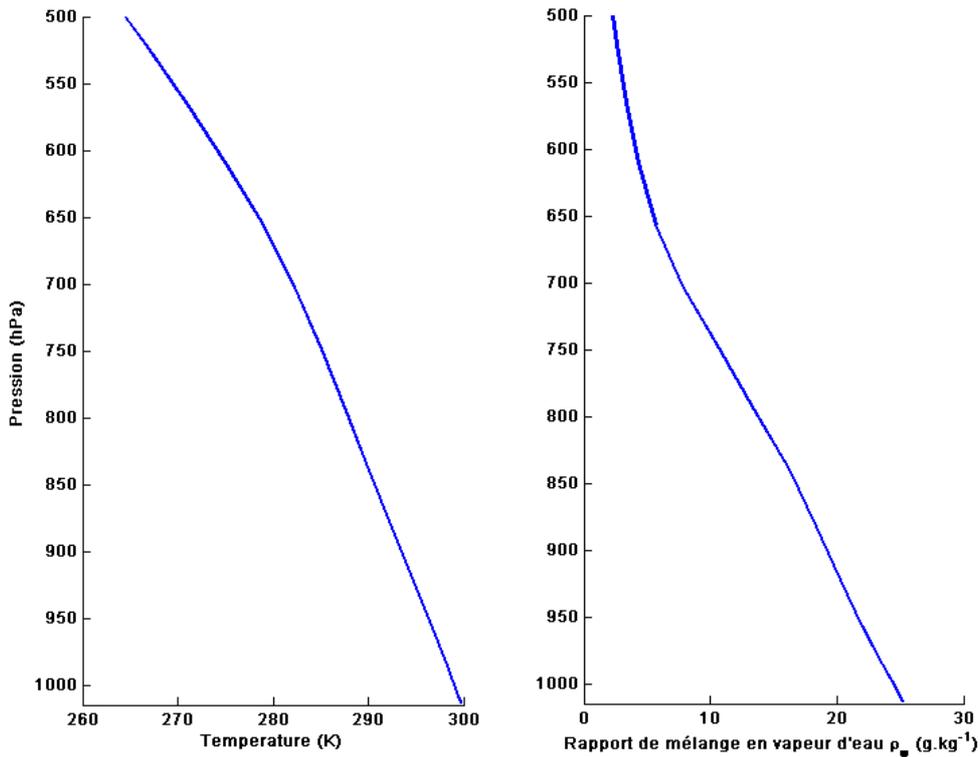


Fig.2. 13 : Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil SAW de l'ESA

Pour estimer ces biais nous introduisons alors une erreur  $\delta X$  sur les paramètres spectroscopiques.

Les erreurs considérées sur  $\gamma_0$  (0.15%) et  $\eta$  (0.45%) correspondent aux précisions de mesure de ces paramètres lors de l'étude spectroscopique précédemment décrite.

Concernant  $p_{shift}$  (2.6%), cette valeur d'incertitude correspond à celle reportée dans [Toth 2007].

Concernant  $E''$ , la valeur prise est celle de HITRAN, celle-ci est référencé en  $\text{cm}^{-1}$  avec quatre chiffres significatifs. Une erreur de  $10^{-2} \text{ cm}^{-1}$  paraît alors adéquate.

Le biais différentiel  $\delta\rho_{diff}$  estimé entre deux régions n'est autre que la soustraction entre le biais absolu obtenu lors d'une mesure dans une région, que nous pouvons noter 1, et celui obtenu dans la seconde notée 2, tous les deux calculés à l'aide de l'équation (2.51).

$$\delta\rho_{diff} = \delta\rho_1 - \delta\rho_2 \quad (2.52)$$

Entre les deux régions, les paramètres variables sont la pression et la température.

Nous estimons donc le biais absolu pour les erreurs spécifiées ci-dessus sur les paramètres spectroscopiques pour les trois profils différents. Les résultats sont représentés sur les figures suivantes (Fig.2. 14, Fig.2. 15, Fig.2. 16 et Fig.2.17).

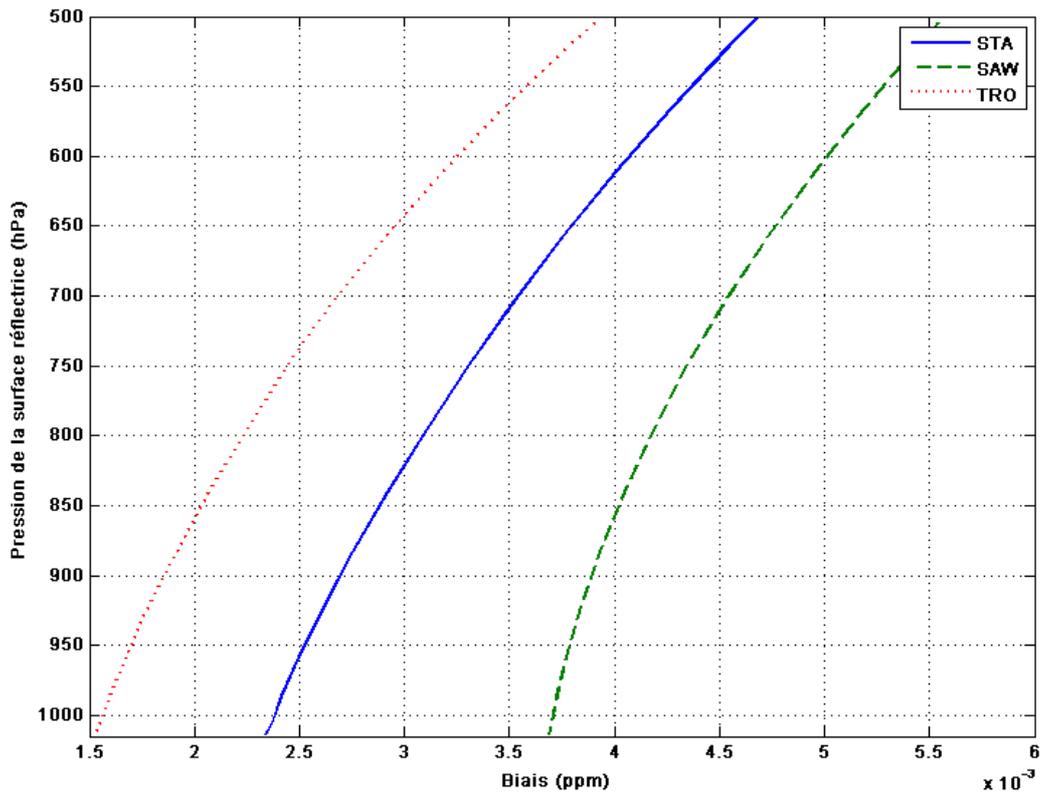


Fig.2. 14 : Biais induits par une erreur de  $+0.01 \text{ cm}^{-1}$  sur  $E''$

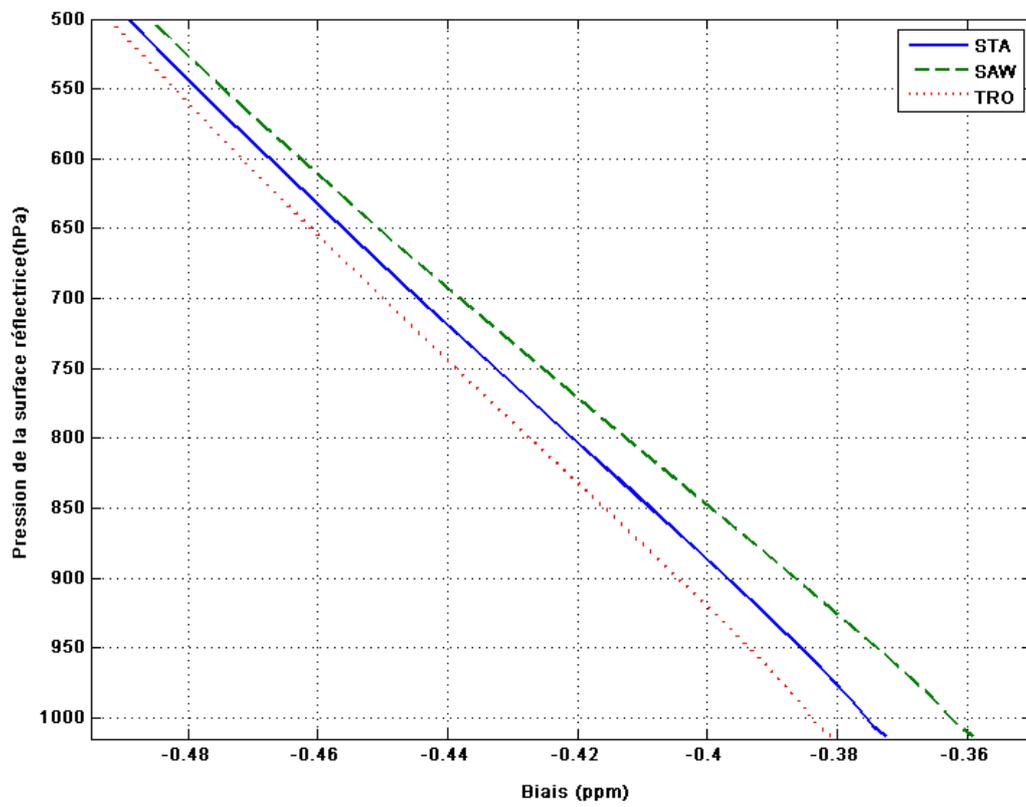


Fig.2. 15 : Biais induits par une erreur de  $+0.15 \%$  sur  $\gamma_0$

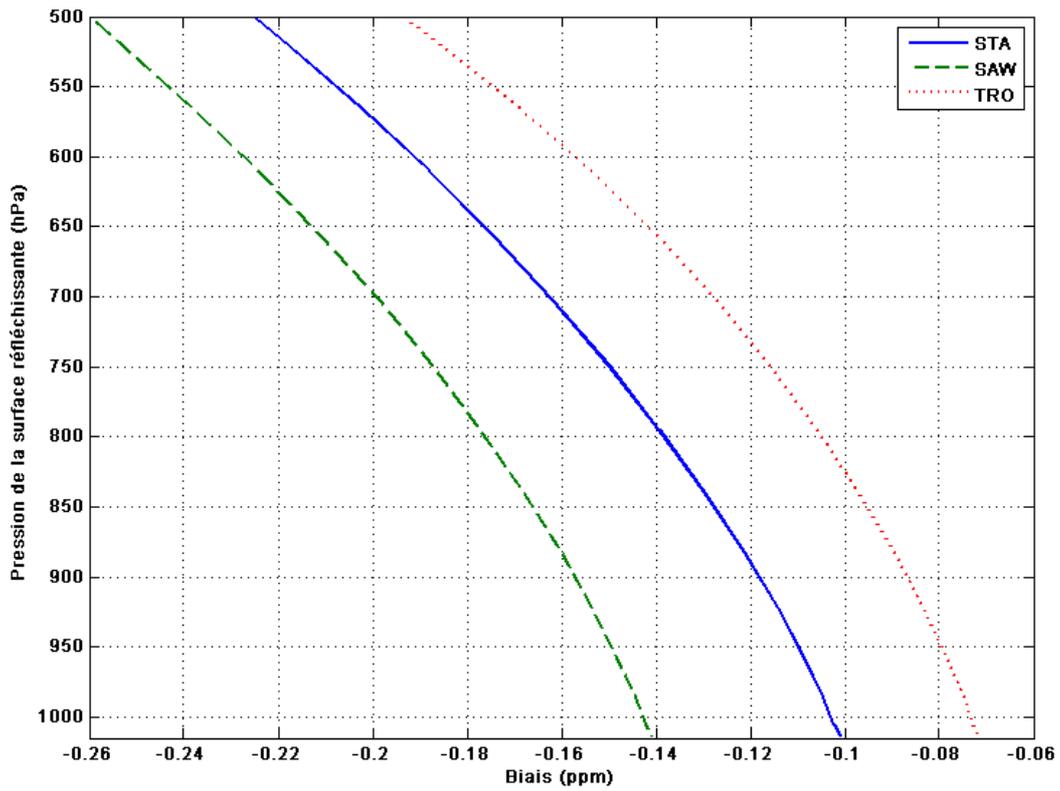


Fig.2. 16 : Biais induits par une erreur de +0.45% sur  $\eta$

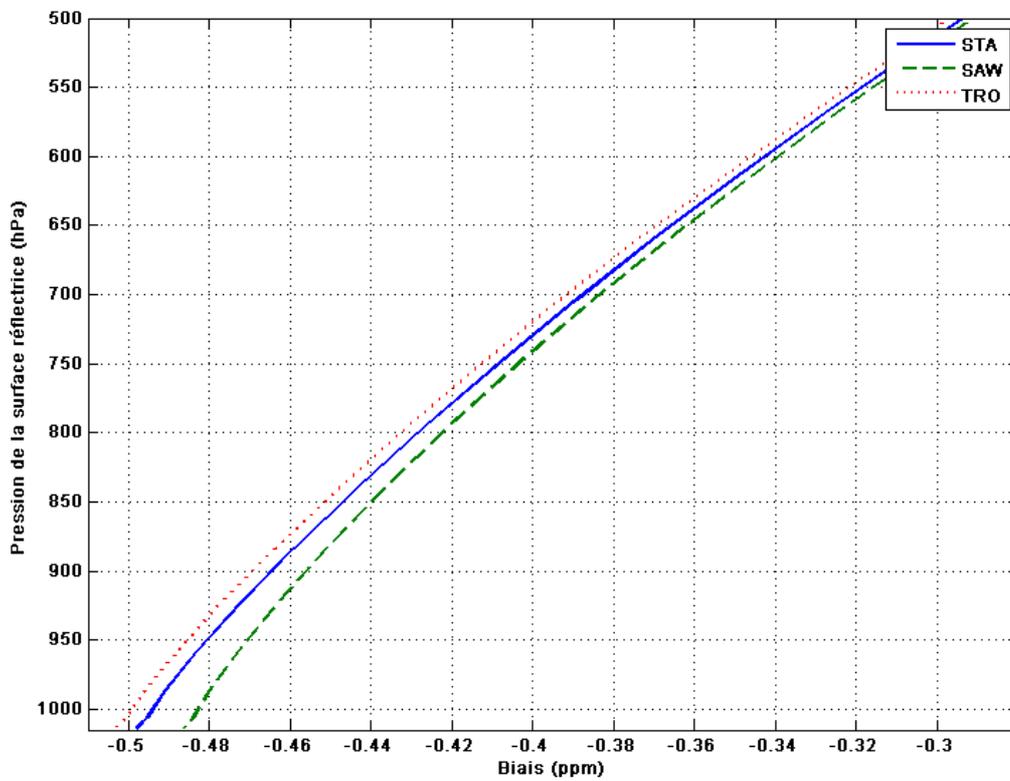


Fig.2. 17 : Biais induits par une erreur de +2.6% sur  $p_{shift}$

Nous pouvons d'ores et déjà noter que l'influence d'une erreur sur le niveau fondamental  $E''$  est négligeable, les biais induits étant de l'ordre de  $10^{-3}$  ppm, même à une pression de 1000 hPa. Ainsi ces biais ne seront pas discutés dans la section suivante.

## **5.2. Discussion sur les biais absolus**

Pour le profil standard, le biais induits par une erreur sur  $\gamma_0$  est de 0.37 ppm, le biais pour une erreur sur  $\eta$  est de 0.1 ppm et enfin celui induit par une erreur sur  $p_{shift}$  est de 0.5 ppm.

Si nous considérons que ces biais s'additionnent en valeur absolue, le biais global pour ce profil est de 0.98 ppm.

En considérant les profils extrêmes, subarctique et tropical, le résultat est sensiblement identique.

Cependant, cette valeur peut être considérée la borne supérieure car nous pouvons remarquer que les biais n'ont pas tous le même signe. En effet, nous avons effectué cette simulation en prenant une erreur positive sur les paramètres spectroscopiques. Dans ce cas, les biais liés au coefficient de dépendance en température de l'élargissement et au « pressure shift » sont négatifs tandis que le biais lié à une erreur sur le coefficient d'élargissement est positif. Ainsi, nous pouvons supposer qu'il existe une certaine compensation de ces biais du fait de leurs signes et que cette limite maximale n'est atteinte que dans le cas d'erreur maximale sur tous les paramètres spectroscopiques (*i.e.* 0.15% sur  $\gamma_0$ , 0.45% sur  $\eta$  et 2.6% sur  $p_{shift}$ ) avec un signe d'erreur sur le coefficient d'élargissement opposé à celui de  $\eta$  et de  $p_{shift}$ .

Ces biais sont totalement symétriques et dans le cas d'erreurs négatives sur les paramètres spectroscopiques leur signe est alors opposé.

Il est aussi intéressant de noter que l'incertitude sur l'intensité de raie  $S_0$ , bien que n'induisant pas de biais dépendant de la température ou de la pression, ont un impact sur les mesures de contenu intégré. En effet, quelles que soient les conditions de température, une erreur de 0.4% sur ce paramètre induit un biais additionnel de 1.47 ppm, proche du seuil pouvant être toléré (1.64 ppm).

Cependant, ce biais est commun à toutes les mesures et aura donc un effet négligeable dans l'évaluation du bilan de CO<sub>2</sub>. De même, les mesures provenant de tous les instruments utilisant la même raie d'absorption seront biaisées de la même valeur et ce biais ne sera donc pas critique lors de comparaisons entre ces instruments. Cependant il sera à prendre hypothétiquement en compte lors de comparaisons avec d'autres types d'instruments.

Une fois énoncé ceci, nous pouvons alors considérer que les conditions sont remplies en termes de biais absolu induits par les paramètres spectroscopiques sur la raie R30 étudiée pour une émission à 3GHz du centre de raie, à savoir qu'il soit inférieur à 1.64 ppm. Les différents biais absolus dans le cas d'un profil standard de température sont récapitulés dans le tableau suivant (**Tab.2. 10**).

**Tab.2. 10 : Biais absolus induits par des erreurs sur les paramètres spectroscopiques de la raie R30 dans le cas d'un profil de température standard**

Paramètre (incertitude)	Biais absolu induit (ppm)
S <sub>0</sub> (0.4 %)	1.47
E'' (0.01 cm <sup>-1</sup> )	0.0024
γ <sub>0</sub> (0.15 %)	0.37
H (0.45 %)	0.1
p <sub>shift</sub> (2.6 %)	0.5
<b>Total</b>	<b>2.44</b>

### 5.3. Discussion sur les biais différentiels inter-régionaux

Si nous considérons désormais la différence de biais (en valeur absolue) entre deux profils extrêmes (tropical et sub-arctique) à 1000 hPa, nous obtenons les biais différentiels induits par les erreurs spectroscopiques fonction de la température entre ces deux régions. Nous rappelons qu'afin de caractériser avec précision les flux de surface, celui-ci ne doit pas être supérieur à 0.164 ppm. Les valeurs obtenues sont de 0.025 ppm pour une erreur sur γ<sub>0</sub>, 0.06 ppm pour une erreur sur η et de 0.024 ppm pour une erreur sur p<sub>shift</sub>. Le biais différentiel total en fonction de la température est donc de 0.11 ppm.

De manière similaire, si nous considérons une différence de pression de surface réfléchrice, nous pouvons caractériser le biais différentiel induit par les variations de pression. Ainsi, en considérant les résultats obtenus à partir du profil de température standard, nous considérons alors la différence entre le biais pour une pression de 1000 hPa et une de 900 hPa. Cette différence de 100 hPa est alors significative d'un cas extrême entre une mesure pour un système météorologique de haute pression (HP : anticyclone) et d'un de basse pression (BP : dépression). Nous obtenons alors des biais différentiels de 0.026 ppm pour une erreur sur γ<sub>0</sub>, 0.015 ppm pour une erreur sur η et 0.03 ppm pour une erreur sur p<sub>shift</sub>. Ces résultats sont récapitulés dans la table suivante (Tab.2. 11).

**Tab.2. 11 : Biais différentiels induits par des erreurs sur les paramètres spectroscopiques de la raie R30 et par des différences de température (TRO-SAW) ou de pression (HP-BP) interrégionales**

		Paramètres spectroscopiques et biais potentiels		
		η (+0.45 %)	γ (+0.15 %)	p <sub>shift</sub> (+2.6 %)
<b>Biais moyen sur la mesure DIAL de la colonne de CO<sub>2</sub></b>	$\delta\rho_{\Delta P_{HP-BP}}$ (ppm)	+0.015	+0.021	-0.029
	$\delta\rho_{\Delta T_{TRO-SAW}}$ (ppm)	+0.065	-0.025	-0.024

Le biais différentiel total considéré comme la somme du biais différentiel induit par les différences de température et celui induit par les différences de pression est alors égal à 0.18 ppm, à peine supérieure

à la valeur visée. Cependant, de même que précédemment, ces biais différentiels ont des signes différents en fonction du signe de l'erreur et du signe de la différence de température et de pression. Ceci est indiqué dans le tableau précédent.

La valeur de 0.18 ppm est donc obtenue dans la configuration la plus défavorable. Les cas étudiés sont des cas extrêmes et il est peu probable d'effectuer des mesures de flux entre une zone tropicale et une zone arctique. De même des différences de pression de surface de 100 hPa, même entre une zone anticyclonique et une zone dépressionnaire est extrêmement rare.

Cependant, il faut noter que la variation de pression de la surface réfléchissante entre deux mesures est caractéristique de systèmes climatiques différents entre deux régions mais est aussi caractéristique de variations de topographie de la surface.

En effet, une différence de 100 hPa peut être assimilée à une variation d'altitude de 1000m. Ainsi, le biais différentiel entre une mesure sur une région à l'altitude de la mer et une région avec un relief de 1000m d'altitude sera le même que celui induit entre deux régions de même altitude mais de pression de surface différente de 100 hPa.

Ainsi, les régions de haute altitude (> 1 km) induiront des biais interrégionaux supérieurs à la valeur visée.

Les résultats de cette étude montrent donc que les nouvelles mesures spectroscopiques sont compatibles avec une détermination des puits et des sources de CO<sub>2</sub> déduites de mesures DIAL en colonne intégrée depuis l'espace. Cependant, nous avons mis en avant les problèmes potentiels induits par les variations de relief et notamment les zones de haute altitude concernant les biais différentiels.

Nous remarquons que les biais interrégionaux dus aux erreurs sur  $\eta$  et  $p_{shift}$  sont non-négligeables. Les incertitudes actuelles sur ces paramètres permettent de penser qu'elles peuvent encore être réduites.

Le niveau d'incertitudes (2.6%) sur le coefficient de décalage en fréquence du centre de raie induit par la pression des dernières valeurs publiées par Toth et al. [Toth 2007], nous permet de penser que c'est le paramètre dont la détermination est la plus susceptible de gagner en précision dans le futur avec une étude dédiée à cette raie particulière. Ainsi, ceci représenterait donc une réduction substantielle des biais et biais interrégionaux potentiels dans le cadre d'une mesure de rapport de mélange en CO<sub>2</sub> DIAL spatiale.

## 6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons principalement présenté les mesures spectroscopiques des paramètres des raies autour de 2051 nm réalisés à haute résolution au Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique. Pour cinq raies de la bande  $(20^01)_{II} \leftarrow (000)_{III}$  dont la raie R30, potentielle candidate à une mesure DIAL du CO<sub>2</sub> atmosphérique, les valeurs d'intensité, d'élargissement par l'air et leur dépendance en température (jamais reportée précédemment) ont été revisitées. Les très faibles incertitudes obtenues en font à ce jour les meilleurs résultats jamais reportés et démontrent un gain significatif en précision.

Nous avons pu, par la suite, étudier l'influence de ces résultats en termes de biais et biais interrégionaux potentiels lors d'une mesure DIAL spatiale de contenu intégré en rapport de mélange de CO<sub>2</sub> atmosphérique sur le flanc de la raie d'absorption R30. Ces nouvelles précisions sur les paramètres spectroscopiques montrent que les spécifications requises sur cette mesure pour une identification des flux de surface du CO<sub>2</sub>, suffisante pour contraindre les modèles de transport atmosphérique peuvent être atteintes en termes de biais ou biais différentiels.

Cependant, nous avons identifié une source potentielle de problème pour ce type de mesure lors du passage d'un satellite sur des zones terrestres de haute altitude. En effet la mesure différentielle de contenu intégré entre ces zones et des zones à la hauteur de la mer peut entraîner des biais différentiels supérieurs aux spécifications.

Enfin, une réduction des incertitudes sur les paramètres spectroscopiques de la raie R30 permettrait de réduire encore les biais potentiels. Ceci est envisageable, notamment pour le coefficient de « pressure shift » dont l'incertitude est encore actuellement relativement haute (*i.e.* 2.6%)

## **Chapitre III**

### **Source laser de puissance à 2 microns**

Ce chapitre traite d'une manière générale des sources laser de puissance à 2 microns et plus particulièrement du développement instrumental d'un émetteur pour une future mesure DIAL spatiale du dioxyde de carbone atmosphérique à 2 microns en détection directe. Le succès d'une future mesure satellite du CO<sub>2</sub> atmosphérique est notamment lié, pour une grande part, au développement de sources de puissance possédant des propriétés intrinsèques exigeantes notamment en termes de propriétés spectrales. Des travaux préliminaires concernant le développement de telles sources sont donc menés par les différents organismes scientifiques.

Premièrement, après un bref état de l'art, nous présenterons la source du LIDAR HDIAL du LMD et les modifications apportées au cours de cette thèse afin de générer une émission à 2051 nm.

Dans un deuxième temps, ce chapitre traitera du développement de la caractérisation d'une source paramétrique. Dans le cadre de la préparation d'A-SCOPE, l'Agence Spatiale européenne (ESA) a initié un contrat nommé PULSNIR (Pulsed Laser Source in NIR for LIDAR applications). Ce projet vise au développement d'une source de puissance dans le proche infrarouge. Le processus choisi est celui d'une source à conversion de fréquence. Après l'étude concernant les possibilités technologiques à envisager et les caractéristiques à remplir concernant l'émission laser, le développement et la caractérisation de la source seront présentés.

Ce chapitre traitera donc des développements de la source menés par l'ONERA (DMPH) et des premiers résultats obtenus ainsi que de l'implication du LMD/IPSL dans la caractérisation spectrale de cette source au cours de la présente thèse.

## 1. Les sources laser de puissance à 2 microns

### 1.1. Etat de l'art

En vue d'une future mission spatiale de mesure de concentration active du CO<sub>2</sub> atmosphérique, le développement de sources laser de puissance (dans le cadre de cette étude, à 2 microns) revêt une importance fondamentale. En effet la source laser est le cœur d'un instrument LIDAR, et afin de réduire les biais potentiels de mesure, doit posséder des propriétés intrinsèques, notamment spectrales, très contraignantes.

Dans le cas de systèmes sol ou aéroportés, plusieurs types d'émetteurs ont été développés (**Tab.3. 1**) :

**Tab.3. 1 : Développements de sources laser pour applications LIDAR de mesure de CO<sub>2</sub> à 2 μm**

<i>Organisme</i>	<i>Type de source et détection</i>	<i>Références</i>
<i>IPSL/LMD</i>	<i>2.06 μm cavité pulsée ouverte (Tm,Ho:YLF) détection hétérodyne</i>	<i>Gibert et al (2006)</i>
<i>NASA LaRC</i>	<i>2.05 μm cavité pulsée ouverte (Tm,Ho:YLF) détection hétérodyne</i>	<i>Koch et al (2004)</i>
<i>JPL - NASA</i>	<i>2.05 μm LAS émission continue (cw) puissance constante détection hétérodyne</i>	<i>Menzies et al (2008)</i>
<i>NICT (Japon)</i>	<i>2.05 μm cavité pulsée ouverte (Tm,Ho:YLF) détection hétérodyne</i>	<i>Ishii et al (2008)</i>
<i>NASA LaRC</i>	<i>2.05 μm cavité pulsée ouverte (Tm,Ho : LuLiF) Détection directe ou hétérodyne</i>	<i>Yu et al (2006)</i>
<i>IPSL/LMD</i>	<i>2.05 μm cavité pulsée fibrée (Tm,Ho :YLF) détection hétérodyne</i>	<i>(en cours de développement)</i>

Ainsi, tous les développements technologiques à 2 microns sont jusqu'à présent effectués autour d'une génération d'émission laser directe par pompage de cristaux d'YLF co-dopés Thulium / Holmium (Tm, Ho : YLF) utilisé en détection hétérodyne.

Des développements de source paramétrique ont été effectués à 1.6 μm mais pas encore à 2 microns.

De manière générale, nous pouvons définir trois architectures possibles pour un système DIAL à 2 microns :

- émission directe Tm,Ho : YLF + détection hétérodyne
- émission directe Tm,Ho : LuLiF + détection directe / hétérodyne
- émission paramétrique (OPO) + détection directe / hétérodyne

### 1.2. Source pulsée Tm, Ho : YLF à 2051 nm

Un système LIDAR HDIAL sol a été développé au LMD durant la thèse de F. Gibert [Gibert 2005] émettant à 2064 nm. L'émission relaxée à 2064 nm est produite en pompant un cristal de YLF co-dopé aux ions Thulium (Tm<sup>3+</sup>) : 5% et Holmium (Ho<sup>3+</sup>) : 0.5 % dans une cavité en anneau. Ce cristal possède deux bandes principales d'absorption à 2050 et 2065 nm. Le pompage est effectué par un laser Alexandrite Les oscillateurs locaux injectant la cavité ont été développées au LMD et sont

construits autour d'un cristal Tm, Ho : YLF pour la longueur d'onde ON et Tm, Ho : LuLiF pour la longueur d'onde OFF

Le schéma bloc de ce système est présenté ci-dessous (Fig.3. 1).

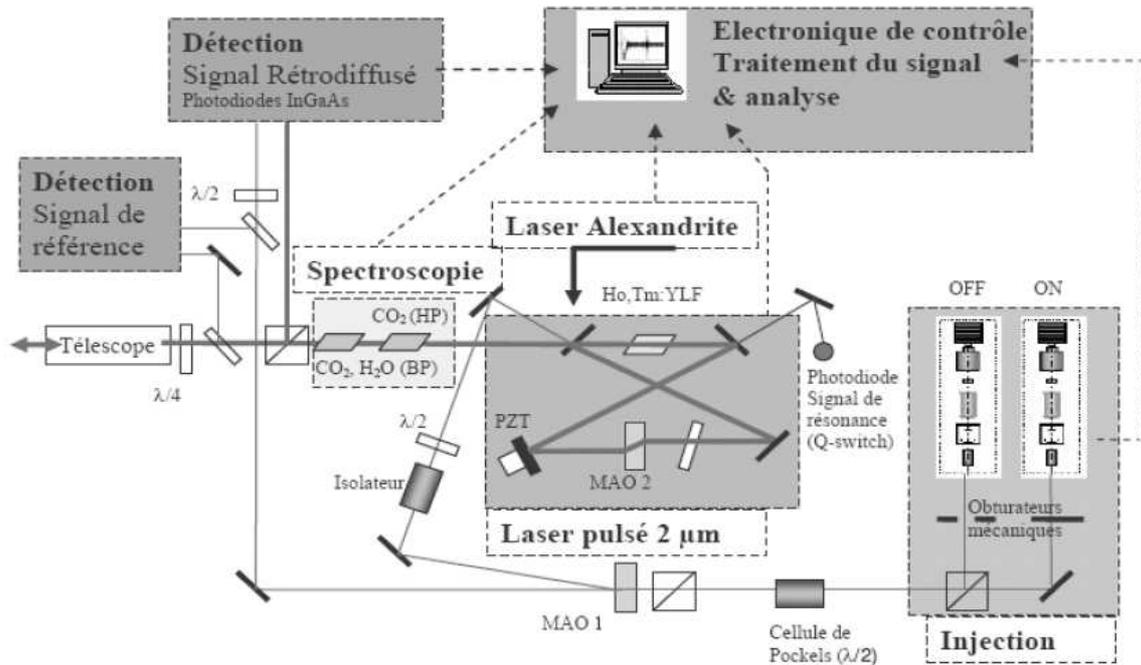


Fig.3. 1 : Schéma bloc du LIDAR HDIAL du LMD tiré de [Gibert 2005]

Dans le cadre de la thèse, un travail expérimental a été entrepris pour effectuer un changement de longueur d'onde du système :

- Le cristal a été changé pour un cristal de même dopage
- La cavité en anneau a été reconfigurée pour laser préférentiellement à 2051 nm
- La configuration de pompe a été optimisée
- L'insertion d'étalon a permis d'accorder les oscillateurs locaux à la longueur d'onde de 2051 nm

Une émission injectée déclenchée de 12 mJ stable a été obtenue à 2051 nm de largeur temporelle 230 ns (HWHM) à une fréquence de répétition de 10 Hz.

Des mesures LIDAR n'ont pu être démontrées à l'aide de ce système dû à un problème de couplage du faisceau dans le télescope n'ayant pu être résolu (télescope désaxé).

Nous n'avons cependant pas pu injecter la cavité à l'aide des diodes laser DFB Nanoplus.

L'énergie de ces diodes (10 mW) est encore trop faible et la largeur spectrale trop importante pour injecter la cavité en anneau.

## **2. PULSNIR : Présentation générale**

Comme vu lors des chapitres précédents, l'intérêt pour une future télédétection du dioxyde de carbone depuis l'espace a gagné en importance lors des dernières années grâce notamment au développement rapide de nouvelles technologies de sources laser. Ceci est notamment lié aux premiers lancements de mission avec laser de puissance dans l'espace (ALADIN : Atmospheric LAser Doppler INstrument 2007,...) En effet, le département Observation de la Terre et futures missions de l'Agence Spatiale Européenne (ASE) conduit actuellement une mission pour identifier les spécifications scientifiques et techniques pour une mission de télédétection active du CO<sub>2</sub> depuis l'espace.

En termes d'approche générale, pour surveiller de manière globale les différentes espèces atmosphériques, l'étude WALES (WATER vapour Lidar Experiment in Space) a marqué une étape importante car elle a indiqué le potentiel de base scientifique et technique pour des lidars à absorption différentielle spatiaux. Les premières études sur la mesure DIAL du CO<sub>2</sub> (c.f Chapitre I) ont mis en avant le concept favorable de mesure dans les bandes spectrales à 1.6  $\mu\text{m}$  et 2  $\mu\text{m}$ . Quel que soit le mode détection choisi (*i.e.* directe ou hétérodyne), le succès de cette mission est lié au développement i) de nouvelles technologies laser et ii) de détecteurs performants.

Au commencement de cette étude, deux bandes spectrales d'absorption du Dioxyde de Carbone, à 1.6 $\mu\text{m}$  et 2 $\mu\text{m}$ , peuvent être envisagées, en considérant plusieurs paramètres tels que les sources laser disponibles ainsi que les détecteurs, la non-pollution des raies d'absorption du CO<sub>2</sub> par les autres composés atmosphériques, une force de raie adéquate...(*cf.* Chapitre I)

Le projet PULSNIR lancé par l'Agence Spatiale Européenne s'inscrit dans le développement préliminaire de nouvelles sources dans le proche infrarouge.

En considérant les largeurs de raies typiques du CO<sub>2</sub> atmosphérique (de l'ordre de 1 GHz) et leur espacement (de l'ordre de plusieurs dizaines de GHz), il est alors évident que la précision de la mesure repose de manière critique sur une largeur de bande étroite des différentes longueurs d'onde transmises mais aussi sur une stabilisation très précise de l'émission à la fréquence choisie. En particulier les spécifications sur la pureté spectrale (proportion de l'énergie laser émise contenue dans un certain intervalle spectral restreint) semblent être une des conditions les plus drastiques et exigeantes pour le système laser en question.

De manière générale, une émission laser dans le proche infrarouge peut être obtenue soit en pompant un matériau laser approprié ayant des bandes d'émission dans la région spectrale requise (émission directe), ou par technique de conversion de fréquence (FCT : Frequency Conversion Technique), dans laquelle le pulse laser de pompe de puissance est déplacé en longueurs d'onde ON et OFF par un sous

système de conversion de fréquence. La technique de conversion de fréquence semblant plus adaptable dans les bandes spectrales de 1.6  $\mu\text{m}$  et 2  $\mu\text{m}$  c'est celle qui est étudiée dans le projet PULSNIR.

Un émetteur laser pour DIAL  $\text{CO}_2$  comme envisagé dans cette étude sera donc basé sur une longueur d'onde de pompe dans le domaine de 1 $\mu\text{m}$  et l'utilisation d'une conversion de fréquence par déplacement RAMAN ou par conversion de fréquence paramétrique (la technologie étudiée est l'OPO : Oscillateur Paramétrique Optique). Dans chacun des cas, la génération de plusieurs longueurs d'onde pourrait être effectuée, soit en injectant la longueur d'onde de pompe alternativement dans différents convertisseurs de fréquence (FCU : Frequency Conversion Unit) séparés, soit en injectant alternativement deux longueurs d'onde de pompe dans le même bloc de conversion.

L'objectif du contrat PULSNIR est donc de démontrer expérimentalement la possibilité d'une telle unité de conversion de fréquence. Cette activité est de même étroitement liée à une autre étude de l'ASE, nommée HELPS (High Efficient Laser Pump Source for LIDAR applications) dédiée au développement d'un laser de pompe accordable, dans la bande de 1 $\mu\text{m}$ , avec une efficacité de conversion augmentée.

## **2.1. Spécifications instrumentales**

Dans cette étude, les deux bandes spectrales (*i.e.* 1.6 $\mu\text{m}$  et 2  $\mu\text{m}$ ) doivent être étudiées de manière théorique, bien qu'une seule des deux longueurs d'onde ne soit ensuite sélectionnée pour le développement de l'unité de conversion. Les spécifications de base déduites des études préliminaires [FACTS 2005, Ehret 2008] au démarrage du projet sont les suivantes : à une fréquence de répétition de 50 Hz, le laser doit délivrer des impulsions d'une durée de plusieurs dizaines de nanosecondes d'une énergie de plus de 40 mJ à la longueur d'onde désirée.

En plus de la reproduction extrêmement précise et hautement répétable de la longueur d'onde absolue (stabilité de la longueur d'onde centrale supérieure à 10% : 1.5 MHz), l'unité de conversion de fréquence devra fournir une émission de largeur spectrale très étroite (dans le domaine de plusieurs dizaines de MHz), ainsi qu'une pureté spectrale supérieure à 99.98% sur une bande spectrale de 1 GHz. La longueur d'onde centrale doit être accordable sur  $\pm 3$  GHz dans le cas de l'émission à 2  $\mu\text{m}$  et  $\pm 6$  GHz pour 1.6  $\mu\text{m}$  afin de pouvoir couvrir spectralement les raies d'absorption correspondantes, le faisceau laser devant posséder un profil gaussien avec un facteur de qualité  $M^2 < 2$ . Ces spécifications spectrales sont nécessaires pour minimiser l'erreur de mesure et seront investiguées par la suite.

L'accordabilité spectrale de la source est aussi nécessaire afin de bénéficier d'une source pouvant être utilisée comme émission ON ou OFF.

Tous ces paramètres sont explicités dans le tableau suivant (**Tab.3. 2**).

**Tab.3. 2 : Spécifications expérimentales pour la source LASER du projet PULSNIR**

<i>Paramètre</i>	<i>Valeur</i>	<i>Commentaire</i>
<i>longueur d'onde <math>\lambda</math></i>	$\lambda_1, \lambda_2 \in [1.57 \mu\text{m}, 1.61 \mu\text{m}]$ ou $\lambda_1, \lambda_2 \in [2.04 \mu\text{m}, 2.06 \mu\text{m}]$	<i>seul une des deux plages de longueur d'onde sera finalement sélectionnée</i>
<i>accordabilité de la longueur d'onde</i>	$\pm 3 \text{GHz}$ pour $\lambda \in [2.04 \mu\text{m}, 2.06 \mu\text{m}]$ et $\pm 0.6 \text{GHz}$ pour $\lambda \in [1.57 \mu\text{m}, 1.61 \mu\text{m}]$	
<i>énergie par pulse</i>	$> 40 \text{ mJ}$	
<i>fréquence de répétition des pulses</i>	$50 \pm 2 \text{ Hz}$	<i>mode simple pulse continu</i>
<i>efficacité de conversion optique-optique</i>	$> 35\%$	<i>ratio de la puissance optique de sortie/ puissance optique de pompe</i>
<i>stabilité de l'énergie pulse à pulse (rms)</i>	$< 3\%$ à court terme (sur 10s) et $< 10\%$ à long terme (sur 24 h)	
<i>Polarisation</i>	<i>linéaire, <math>&gt; 100:1</math></i>	
<i>mode spatial</i>	<i>gaussien</i>	<i>en champ lointain</i>
<i>qualité spatiale du faisceau</i>	$M^2 < 2.0$	
<i>divergence du faisceau</i>	$< 400 \mu\text{rad}$	<i>champ lointain, à 99% d'énergie encerclée</i>
<i>stabilité de pointage du faisceau</i>	$< 150 \mu\text{rad}$	<i>court terme (sur 10s)</i>
<i>durée du pulse <math>\tau</math></i>	$\tau \in [10 \text{ ns}, 120 \text{ ns}]$	<i>FWHM</i>
<i>mode longitudinal</i>	<i>monomode</i>	
<i>largeur de raie spectrale du pulse</i>	$< 60 \text{ MHz}$	<i>FWHM</i>
<i>variation de largeur de raie pulse à pulse (rms)</i>	$< 6 \text{ MHz}$	<i>FWHM, court terme (sur 10s)</i>
<i>pureté spectrale</i>	$99.98\%$ de l'énergie de l'impulsion sur 1 GHz	
<i>stabilité fréquentielle du centre pulse à pulse (rms)</i>	$< 1.5 \text{ MHz}$	<i>court terme (sur 10s)</i>

Comme cité précédemment, l'unité de conversion de fréquence doit être adaptable à toute longueur d'onde de pompe comprise entre 1000 nm et 1100 nm (sources développées dans HELPS).

## 2.2. Biais induits par les caractéristiques spectrales de la source laser sur la restitution du rapport de mélange en CO<sub>2</sub>

Nous allons répertorier ici les erreurs induites par la source laser lors d'une mesure DIAL en ce qui concerne ses caractéristiques spectrales. Bien qu'au début de l'étude PULSNIR, les deux bandes spectrales (*i.e.* 1.6 et 2  $\mu\text{m}$ ) sont à étudier, nous allons présenter ici ces résultats pour une émission à 2

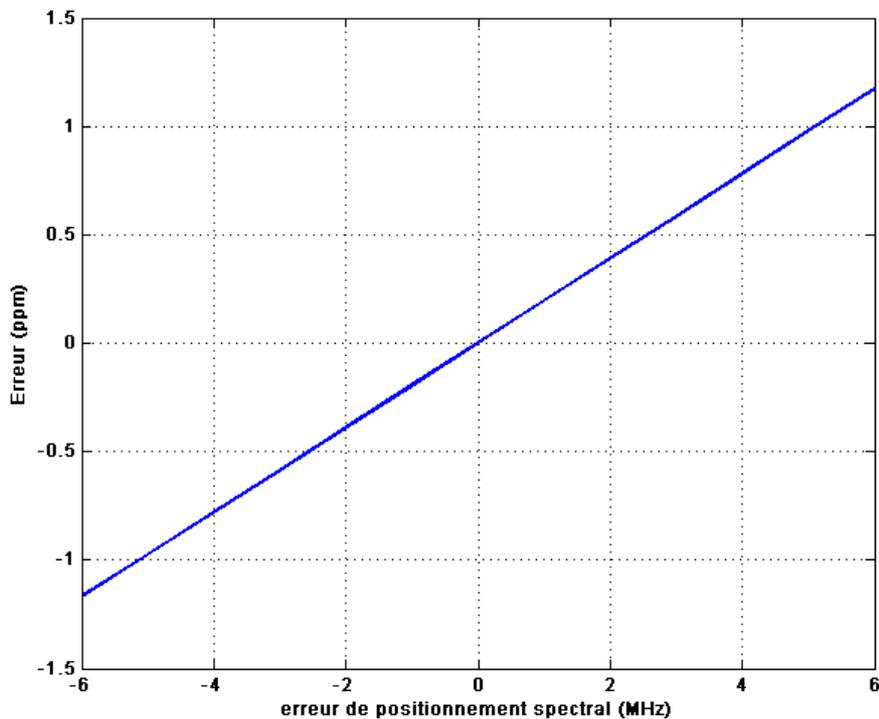
µm sur la raie R 30. Comme nous l'avons mentionné au Chapitre II, deux types d'erreurs associées à une mesure DIAL peuvent être distingués : le biais global et le biais différentiel.

Concernant le biais global, nous voyons aisément d'après l'équation (1.47) que celui-ci peut être du soit à une erreur sur la mesure de l'épaisseur optique, soit à une erreur de la détermination de la fonction de poids. Nous avons répertorié dans le Chapitre II, les biais potentiels pouvant être induits par l'incertitude sur les paramètres météorologiques (pression, température et rapport de mélange en vapeur d'eau). Nous allons étudier ici ceux induits par les caractéristiques spectrales de la source qui influent sur la mesure effective d'épaisseur optique. Ces sensibilités conditionnent certaines spécifications explicitées dans le tableau précédent.

### 2.2.1. Erreur de positionnement spectral du laser

L'erreur de positionnement spectral est la somme de l'erreur de positionnement laser et l'incertitude sur l'effet doppler du au mouvement du satellite. La position spectrale de l'émission ON détermine la section efficace d'absorption effective. Un décalage spectral de cette émission induit donc une épaisseur optique  $\tau_{err}$  au lieu de  $\tau$ . Le biais induit est alors :

$$d\rho = \frac{\tau - \tau_{err}}{\int_0^p WF_p(p) dp} \quad (3.1)$$



**Fig.3. 2 : Biais induit par un décalage spectral de l'émission laser monomode par rapport à la fréquence centrale d'émission visée : 2051.017 nm (146.167 THz)**

Pour un décalage spectral maximal de  $\pm 1.5$  MHz comme spécifié dans le (Tab.3. 3), le biais induit est de  $\pm 0.29$  ppm.

### 2.2.2. Erreur de largeur spectrale de l'émission

La section efficace effective inclus dans la fonction de poids est la moyenne de la section efficace d'absorption pondérée par la distribution spectrale de l'émission :

$$\tilde{\sigma}_i(p) = \int_{\nu} h_L(\nu) \sigma_i(\nu, p) d\nu \quad (3.2)$$

Où  $h_L$  est la distribution spectrale de l'émission. Si une erreur est faite sur la largeur de raie de l'émission ceci résulte en une erreur sur le calcul de la section efficace effective et donc sur le rapport de mélange en CO<sub>2</sub>.

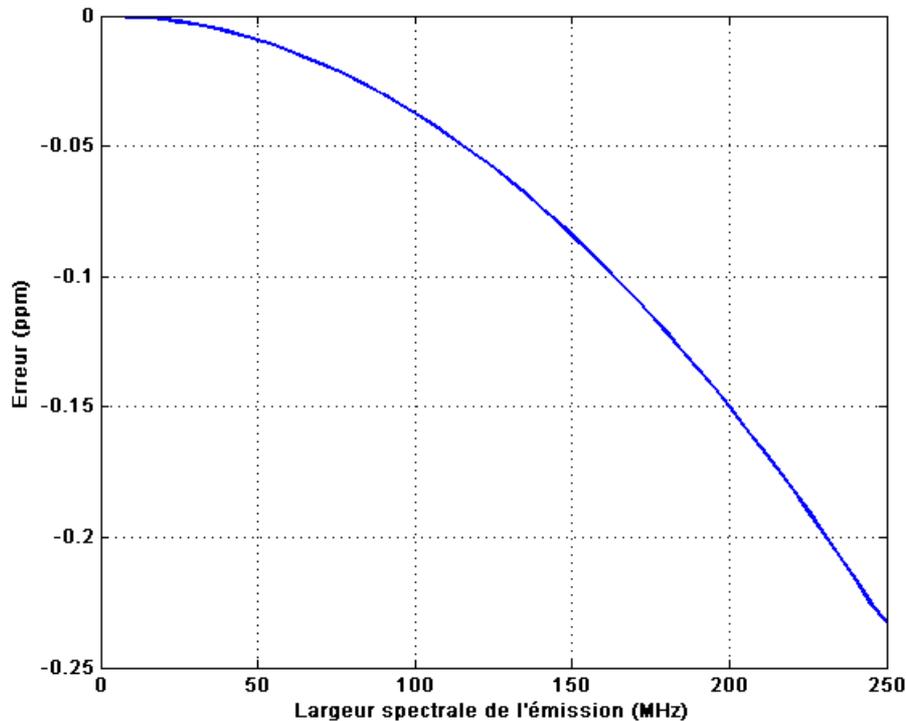


Fig.3. 3 : Erreur induite par une erreur de 10% sur la largeur spectrale de l'émission laser en fonction de la largeur de raie d'émission pour une fréquence centrale d'émission à 2051.017 nm.

Comme représenté sur la figure précédente (Fig.3. 3), dans le cas d'une émission de 60 MHz de largeur spectrale (FWHM), une variation de 10 % de cette largeur (*i.e* 6 MHz) entraîne une erreur négligeable de 0.0135 ppm.

Le changement de largeur spectrale  $\Delta f$  est donc un critère moins crucial que la stabilité spectrale. Un objectif de variation maximale de celle-ci de 10 % pour une émission de 60 MHz (FWHM) est donc un objectif raisonnable permettant d'induire un biais pouvant être considéré négligeable

### 2.2.3. Erreur induite par la pureté spectrale

Comme il a été montré précédemment [Ismail 1989, Ehret 2008], l'impureté spectrale de la raie laser peut causer des erreurs systématiques conséquentes lors de mesures DIAL.

La présence d'une partie de l'énergie on-line qui n'est pas prise en compte dans le calcul de la section efficace d'absorption effective peut conduire à une erreur importante sur le rapport de mélange si cette fraction de lumière impure est moins absorbée que prévue. Cependant cette propriété n'influence que les mesures en détection directe car dans le cas d'une détection cohérente, la fraction impure de l'émission se situe hors de la largeur de bande fréquentielle de détection.

L'épaisseur optique mesurée  $\tau$  est d'après l'équation (1.18) :  $\tau = \frac{1}{2} \log \left( \frac{E_{ON} P_{OFF}}{E_{OFF} P_{ON}} \right)$

, où  $E_{ON}$  et  $E_{OFF}$  sont les énergies émises et  $P_{ON}$  et  $P_{OFF}$  sont les puissances signal reçues données par :

$$P_{ON} = KE_{ON} \left[ (1 - \varepsilon_{ON}) \exp(-2\tau_{ON}) + \varepsilon_{ON} \exp(-2\tau'_{ON}) \right]$$

Et

$$P_{OFF} = KE_{OFF} \left[ (1 - \varepsilon_{OFF}) \exp(-2\tau_{OFF}) + \varepsilon_{OFF} \exp(-2\tau'_{OFF}) \right]$$

Avec  $K$  le bilan radiométrique.

Avec  $\varepsilon_{ON}$  et  $\varepsilon_{OFF}$  qui sont respectivement l'impureté spectrale (IS) ON-line et OFF-line,

avec  $PS_{ON/OFF} = 1 - \varepsilon_{ON/OFF}$  ( $PS$  : pureté spectrale et  $ON/OFF$  : ON ou OFF).

et  $\tau_{ON}$  et  $\tau_{OFF}$  sont l'épaisseur optique pour l'émission spectralement pure ON-line et OFF-line.

et  $\tau'_{ON}$  et  $\tau'_{OFF}$  sont l'épaisseur optique pour l'émission spectralement impure ON-line et OFF-line.

En considérant que :

$$|\varepsilon_{ON} [1 - \exp(2(\tau_{ON} - \tau'_{ON}))]| \ll 1$$

et

$$|\varepsilon_{OFF} [1 - \exp(2(\tau_{OFF} - \tau'_{OFF}))]| \ll 1$$

(ce qui revient à dire que la différence d'épaisseur optique entre la longueur d'onde centrale de l'émission et celle où a lieu l'émission impure est importante, donc à considérer que le décalage spectral de l'impureté est grand)

et en utilisant les équations (1.18), (3.3) et (3.4) :

$$\tau \approx (\tau_{ON} - \tau_{OFF}) + \frac{\varepsilon_{ON}}{2} [1 - \exp(2(\tau_{ON} - \tau'_{ON}))] - \frac{\varepsilon_{OFF}}{2} [1 - \exp(2(\tau_{OFF} - \tau'_{OFF}))]$$

$\Delta\tau = \tau - (\tau_{ON} - \tau_{OFF})$  est l'erreur de mesure sur l'épaisseur optique et l'erreur relative sur le rapport de mélange est :

$$\frac{\delta\rho}{\rho} = \frac{\delta\tau}{\tau} \quad (3.6)$$

Et on a finalement :

$$\frac{\delta\rho}{\rho} = \frac{1}{2(\tau_{ON} - \tau_{OFF})} \left[ \frac{\varepsilon_{ON} [1 - \exp(2(\tau_{ON} - \tau'_{ON}))]}{-\varepsilon_{OFF} [1 - \exp(2(\tau_{OFF} - \tau'_{OFF}))]} \right] \quad (3.7)$$

Dans chaque cas (OFF et ON-line), l'erreur sur le rapport de mélange est proportionnelle à l'impureté spectrale. De manière générale, le domaine spectral autour de la longueur d'onde OFF est suffisamment libre de toute absorption pour considérer  $\tau_{OFF} = \tau'_{OFF} = 0$ .

Dans le cas de la longueur d'onde ON, nous ne pouvons pas savoir où se situe (spectralement) la proportion d'impureté spectrale. Nous pouvons donc considérer que celle-ci est émise où l'absorption est nulle ( $\tau'_{ON} = 0$ ) ce qui conduirait à l'erreur maximale. Avec cette considération, l'erreur est seulement dépendante de l'épaisseur optique totale. Nous considérons la portion d'énergie ON spectralement émise à 12 GHz du centre de raie. Ceci est représenté ci-dessous (Fig.3. 4).

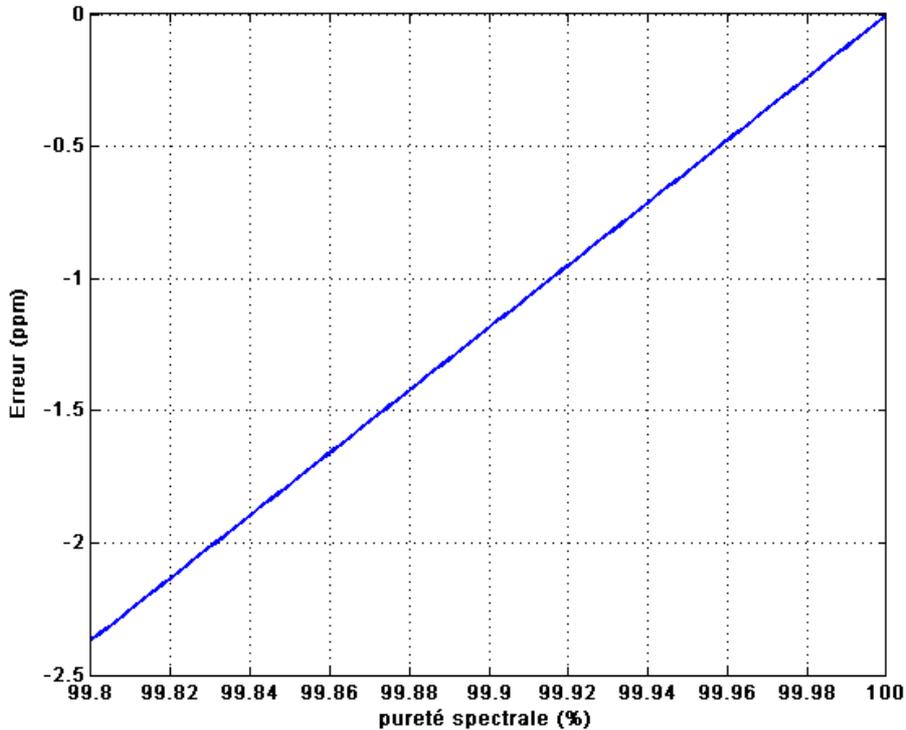


Fig.3. 4 : Erreur induite en fonction de la pureté spectrale de la source pour une émission à 2051.017 nm

Ainsi, une pureté spectrale de 99.98 % pour la source engendrerait un biais de 0.24 ppm. Afin d'atteindre une erreur de 0.1 ppm, l'impureté spectrale doit être inférieure à 0.008 %.

Cette étude a été poussée dans une publication récente [Ehret 2008]. Il a été montré que l'utilisation de filtres étroits centrés sur la longueur d'onde centrale d'émission permet de réduire les conditions sur la pureté spectrale de la source. En se plaçant dans les mêmes conditions (émission à 3 GHz du centre de la raie R 30), l'utilisation d'un filtre de largeur spectrale de 1 GHz (FWHM) associé à une pureté spectrale de 99.8 % permet de viser un biais de 0.1 ppm (0.027 % pour un rapport de mélange moyen de 370 ppm). Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure ci-dessous (Fig.3. 5). En comparant ce résultat (0.2% d'impureté spectrale) à celui obtenu précédemment (0.008%), l'utilisation du filtre permet donc le gain d'un facteur 25 sur les spécifications de ce paramètre.

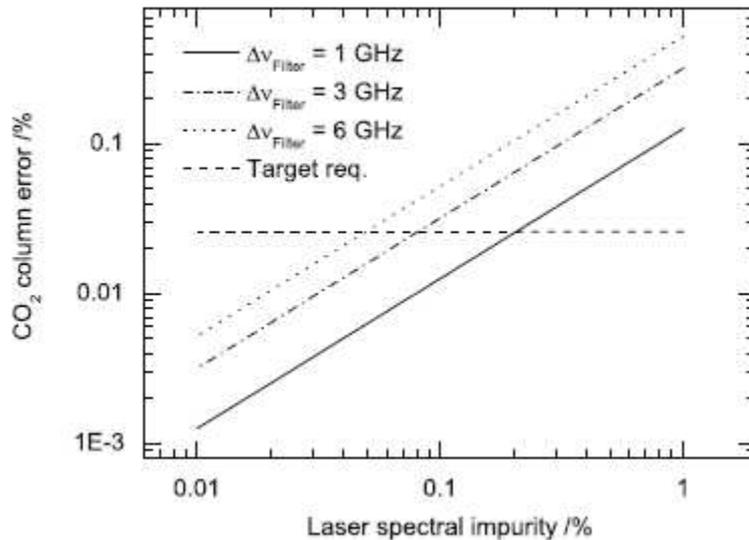


Fig.3. 5 : Erreur en % sur le rapport de mélange en CO<sub>2</sub> en fonction de la pureté spectrale en utilisant des filtres de diverses largeurs spectrales tiré de [Ehret 2008]

Notons que l'impureté spectrale de l'émetteur à la longueur d'onde OFF induit des biais négligeables. Cependant, gardons à l'esprit que le développement de cette source est prévu pour une utilisation aussi bien à  $\lambda_{ON}$  qu'à  $\lambda_{OFF}$  ou toute autre longueur d'onde dans un intervalle de  $\pm 3$  GHz. Les biais liés aux paramètres météorologiques ou aux spécifications de la source sont regroupés dans le tableau ci-dessous (Tab.3. 3).

Tab.3. 3 : Biais induits par les paramètres météorologiques et les spécifications visées pour la source

Paramètre	Incertitude	Biais induit (ppm)
$T$	1K (Modèle arpège)	0.3
$\rho_w$	1% (Modèle arpège)	0.1
$P$	1 hPa	0.5
$\lambda$	$\pm 1.5$ MHz	0.3
$\Delta f$	6 MHz	0.015
$P_{spec}$	99.8 % (avec filtre 1 GHz)	0.1
<b>Total</b>	<b>Somme algébrique</b>	<b>1.3 ppm</b>

La somme quadratique de ces différents biais est égale à 0.7 ppm et est donc inférieure aux 1.64 ppm limites spécifiés pour une mesure sur le flanc de la raie R 30.

### 2.3. Configuration envisageable : conversion de fréquence par effet Raman

A la suite d'études préliminaires, la technologie de conversion de fréquence par effet RAMAN, un temps envisagée, a été écartée. Des limitations apparaissant avec cette technique [PULSNIR 2008]:

- La première difficulté est le grand écart entre la longueur d'onde de pompe et la longueur d'onde signal visée (~1064 nm et 2051nm). La différence d'énergie entre ces deux niveaux est  $\sim 4520 \text{ cm}^{-1}$  et l'écart maximal pouvant être produit par un processus Raman est de  $4155 \text{ cm}^{-1}$ . L'utilisation d'une chaîne de deux cellules Raman devient alors nécessaire et l'efficacité totale du système est grandement réduite par les pertes séquentielles de deux processus Raman.
- La seconde est le choix limité de milieux Raman adéquats. Le manque d'accordabilité dans un processus Raman conduit au fait que la seule manière d'atteindre une longueur d'onde finale précise à partir d'une longueur d'onde initiale déterminée ne se fait que par le choix de la molécule. La fréquence vibrationnelle de la molécule utilisée comme milieu Raman doit fournir exactement le décalage souhaité. Dans notre cas, la seule combinaison de molécules permettant ceci est  $\text{CH}_3\text{D}/\text{O}_2$ . Bien qu'elle donne accès à la longueur d'onde désirée, ceci n'est pas un milieu Raman idéal en terme de gain car son spectre est plus large que désiré ce qui a un impact sur les efficacités de conversion. De même afin d'atteindre les spécifications requises en terme de largeur de raie, l'étage Raman devra être injecté par une radiation OPO qui fixera la largeur de raie d'émission.
- La faible taille de cellule imposée par un tel projet (< 30 cm). Une telle cellule impose donc un faisceau de très haute densité de puissance spatiale car le faisceau doit être focalisé au centre de la cellule. Cependant, le seuil de dommage des matériaux et des revêtements est vite atteint. Ainsi, la puissance incidente est limitée. L'utilisation d'une cellule plus grande permettrait d'utiliser une échelle de Rayleigh plus grande ce qui conduirait à des gains plus grands

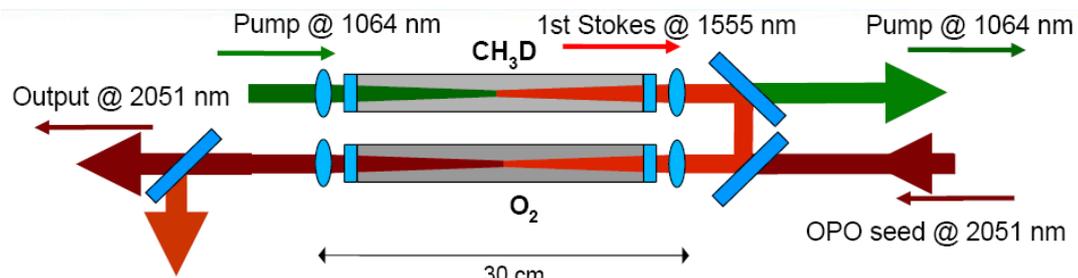


Fig.3. 6 : Schéma général de la configuration Raman envisageable (tiré de [PULSNIR 2008])

C'est donc le développement d'une source paramétrique (Oscillateur Paramétrique Optique : OPO) qui est choisie. Celle-ci est développée par le Département Mesures Physiques de l'ONERA. Le LMD, dans le cadre de cette thèse est chargé de la caractérisation spectrale : évaluer le potentiel d'une

solution d'asservissement par cuve photoacoustique et mesure de la pureté spectrale de la source. Le schéma électronique de stabilisation est effectué par Norsk Electro Optics SAS.

**Tab.3. 4 : Performances atteignables par conversion de fréquence Raman**

	<i>énergie de pompe</i>	<i>durée de l'impulsion de pompe (FWHM)</i>	<i>énergie stokes</i>	<i>durée de l'impulsion stokes (FWHM)</i>	<i>largeur spectrale de l'impulsion stokes (FWHM)</i>	<i>efficacité de conversion</i>
<i>première cellule</i>	200 mJ	10 ns	50.1 mJ	5 ns	0.4 cm <sup>-1</sup> (12 GHz)	25.1 %
<i>seconde cellule</i>	50.1 mJ (1 mJ injecté)	5 ns	21.3 mJ	4 ns	déterminé par l'OPO injecté	42.5 %
<i>Total</i>	200 mJ	10 ns	21.3 mJ	4 ns	déterminé par l'OPO injecté	10.7 %

#### 2.4. Principe général de l'Oscillateur Paramétrique Optique

Un oscillateur paramétrique optique (OPO) est une source de lumière cohérente et monochromatique. A partir d'une onde laser de pompe de fréquence  $\omega_p$ , un OPO produit deux ondes de fréquences inférieures par interaction non-linéaire avec le milieu : le signal à la fréquence  $\omega_s$  et le complémentaire à  $\omega_c$  [Armstrong 1962]. La conservation d'énergie impose  $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ . La conversion de fréquence de pompe vers les ondes générées se fait au travers d'une interaction non-linéaire de second ordre. Un OPO est constitué de deux éléments essentiels :

- Un milieu non-linéaire, à l'origine de la conversion de fréquence effectuée par l'OPO. Ce milieu crée un gain non-linéaire pour les ondes signal et complémentaire. Ce milieu est souvent un cristal biréfringent qui possède des axes de propagation ordinaire (o) et extraordinaire (e).
- Une cavité optique, généralement constituée de deux miroirs hautement réfléchissants situés de part et d'autre du milieu amplificateur. Le rôle de la cavité est de faire osciller le rayonnement, et de permettre son amplification par passages successifs dans le milieu. Cette cavité introduit nécessairement des pertes pour les ondes oscillantes.

Le cristal produit un gain paramétrique à la longueur d'onde déterminée par deux conditions :

- a) Conservation de l'énergie :

$$h\nu_p = h\nu_s + h\nu_i \quad (3.8)$$

- b) Accord de phase (conservation de la quantité de mouvement) :

$$\vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_i \quad (3.9)$$

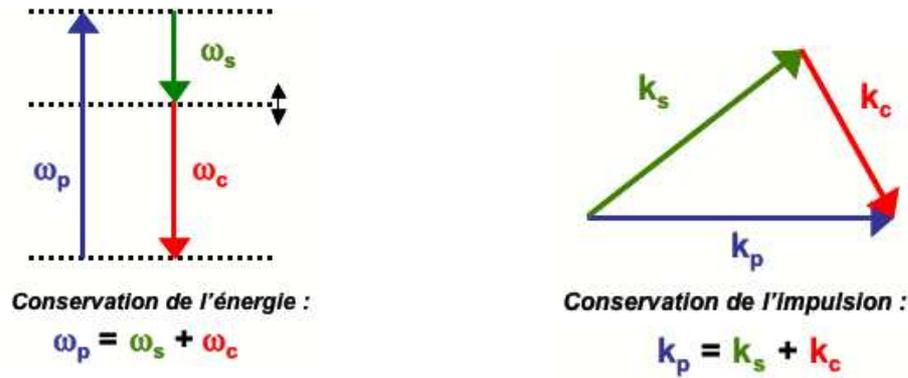


Fig.3.7 : Conservation de l'énergie et du moment dans un processus optique paramétrique

Lorsque le gain paramétrique dépasse les pertes des ondes dans un tour de cavité, l'OPO oscille et produit une lumière cohérente accordable (Fig.3. 8).

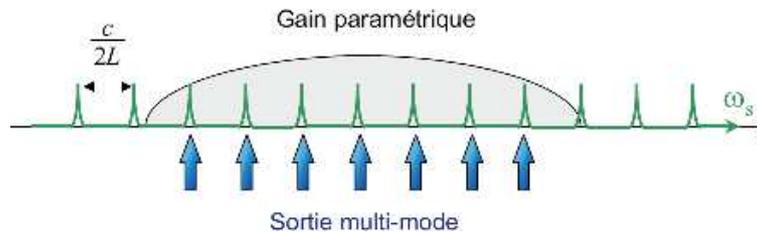


Fig.3. 8 : Emission multimode d'un OPO comprise sous la bande de gain paramétrique

A faible puissance de pompe, le gain est trop faible par rapport aux pertes : il n'y a pas d'oscillation. Au delà d'une certaine puissance de pompe, appelée seuil d'oscillation, le gain dépasse les pertes et l'amplification progressive des ondes générées est possible. Lorsque la puissance des ondes oscillantes devient importante, le gain diminue.

En transférant une partie de son énergie aux ondes signal et complémentaire, la pompe est atténuée au cours de l'interaction : on parle de dépeuplement de la pompe. A forte puissance, il peut arriver que la pompe soit entièrement dépeuplée. Le signal et le complémentaire se recombinent alors pour recréer de la pompe : c'est la saturation, généralement non souhaitable dans un OPO.

Une des caractéristiques principales d'un OPO est son accordabilité. En effet, les fréquences des ondes générées peuvent être ajustées de manière continue en changeant l'accord de phase entre les trois ondes. En pratique, cela revient à tourner un cristal non-linéaire autour d'un axe particulier ou bien à changer sa température.

Comme explicité précédemment, la génération de deux ondes de fréquences inférieures à partir de l'onde de pompe est liée aux propriétés intrinsèques du matériau non-linéaire utilisé.

Dans la plupart des cristaux, la dispersion de l'indice de réfraction est normale ( $n_p > n_s > n_c$ ), la relation de conservation de la quantité de mouvement ne peut, à priori, pas être satisfaite. Au fur et à mesure de la propagation dans le matériau des faisceaux, un désaccord de phase défini par la relation :

$\Delta\vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_c$  apparait. Dans cette configuration où l'accord de phase n'est pas vérifié ( $\Delta\vec{k} \neq 0$ ), l'énergie de pompe est initialement transférée vers l'onde signal et l'onde complémentaire, puis après une longueur de cohérence  $L_c$ , le sens du processus s'inverse et l'énergie du signal et du complémentaire se reconvertissent en rayonnement de pompe. Le processus de conversion de fréquence varie donc en  $\sin^2(z)$  et reste globalement inefficace,  $z$  étant la longueur du cristal dans la direction de propagation initiale de la pompe.

### 2.4.1. Accord de phase par biréfringence

Cependant si l'on peut satisfaire la condition d'accord de phase ( $\Delta\vec{k} = 0$ ), l'efficacité de conversion est proportionnelle à  $z^2$  ce qui conduit à un transfert efficace de la pompe vers les ondes signal et complémentaire.

Cette situation peut être obtenue en utilisant la biréfringence de certains cristaux non-linéaires et on parle alors d'accord de phase par biréfringence.

Il existe deux types d'accord de phase : l'accord de phase de type I où la polarisation du signal et du complémentaire est la même et l'accord de phase de type II où le signal et le complémentaire ont des polarisations différentes.

### 2.4.2. Quasi-accord de phase (QAP)

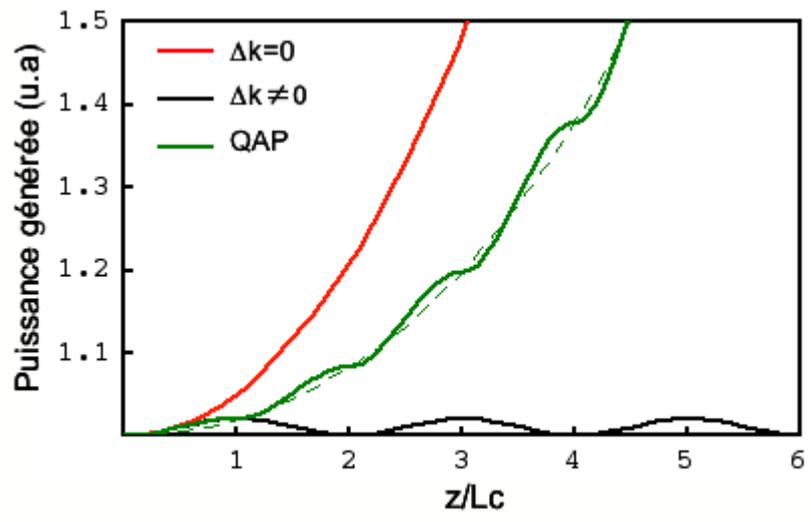


Fig.3. 9 : Représentation de la puissance générée en fonction de la longueur de pénétration dans le matériau par rapport à la longueur de cohérence dans le cas d'accord de phase, de non-accord de phase et de quasi-accord de phase

Dans certains cas, il n'est pas possible de trouver un accord de phase par biréfringence pour les fréquences signal et complémentaire désirées. C'est le cas par exemple des matériaux non-linéaires isotropes (ici, le matériau utilisé, le ppLN : periodically poled Lithium Niobate : Niobate de lithium

périodiquement retourné n'est pas isotrope). A défaut d'annuler exactement le désaccord de phase il est parfois possible de le remettre à zéro périodiquement afin de garder les ondes en phase : c'est le quasi accord de phase [Fejer 1992].

Les interférences destructives qui ont normalement lieu à chaque longueur de cohérence sont supprimées, et la puissance des ondes générées peut croître continûment à la traversée du milieu non-linéaire. Cependant, l'efficacité est réduite. En plus de pouvoir remplacer l'accord de phase par biréfringence lorsque celui-ci n'est pas possible, le quasi accord de phase possède un certain nombre d'avantages :

- Il n'est plus nécessaire d'avoir des polarisations croisées.
- Le décalage spatial (double-réfraction) entre les ondes éventuellement observable lors de l'accord de phase par biréfringence est supprimé.
- Pour les matériaux où il existe un accord de phase par biréfringence, le quasi accord de phase peut permettre d'utiliser une direction de propagation dans laquelle la non-linéarité du matériau est plus importante.

### **3. Les OPO spectralement fins**

L'intérêt d'une source paramétrique pour une future mesure DIAL réside notamment dans la capacité à la rendre spectralement fine. Ceci devient un point crucial lors de la mise en œuvre d'OPO en régime nanoseconde (la source à développer devant fournir des impulsions de durée comprise entre 10 et 120 ns). Plusieurs techniques et configurations peuvent être envisagées.

#### **3.1. OPO simplement résonnant : SROPO (Singly Resonant OPO)**

Dans un SROPO, une des deux ondes créées oscille dans la cavité optique. Ainsi, en tenant compte des résonances ou modes longitudinaux de la cavité, la fréquence de l'onde résonnante ne peut prendre que des valeurs discrètes qui correspondent aux modes de la cavité. La plupart des modes situés dans la bande de gain paramétrique peuvent alors osciller. Or, en régime nanoseconde, la largeur de gain est grande par rapport à l'intervalle spectral libre et la source sera donc multimode longitudinale.

Pour rendre le SROPO impulsif monomode et l'accorder en fréquence, il existe deux techniques :

- a. l'injection optique à l'aide d'un laser monomode afin de favoriser l'oscillation sur un des modes de la bande de gain.
- b. l'insertion dans la cavité d'un élément sélectif (réseau, prisme, étalon Fabry-Pérot ou réseau de Bragg en volume).

Toutefois ces deux techniques présentent des inconvénients : dans le premier cas, la source est complexe et son accordabilité spectrale est limitée à celle de l'injecteur; dans le deuxième cas, l'élément sélectif augmente les pertes dans la cavité et ainsi le seuil d'oscillation.

##### **3.1.1. SROPO à réseau de Bragg VBG (Volume Bragg Grating)**

Des applications d'OPO à miroir de Bragg ont été récemment développées. L'intérêt du VBG est dû, notamment, à leur réponse spectrale très fine. Récemment un OPO à bande étroite utilisant un miroir VBG comme coupleur de sortie a été réalisé [Jacobsson 2005].

Un élément VBG est un élément photosensible transparent en verre ou en polymère de volume typique de quelques mm<sup>3</sup> avec une modulation périodique de l'indice de réfraction pouvant être utilisé pour filtrer une longueur d'onde particulière qui remplit les conditions de Bragg :

$$\lambda_B = 2n_0\Lambda \cos \theta \quad (3.10)$$

Où  $\Lambda$  est la période du réseau,  $n_0$  est l'indice de réfraction moyen du matériau et  $\theta$  est l'angle interne entre l'axe du faisceau et la direction perpendiculaire aux franges.

La largeur spectrale du pic de réflectivité est donnée par :

$$\Delta\lambda = \lambda_B \left[ \frac{n_1^2}{n_0^2 \cos^4 \theta} + \frac{4\Lambda^2}{d^2} \right]^{1/2} \quad (3.11)$$

Pour un réseau de Bragg, la réflectivité peut être changée en ajustant la longueur  $d$  ou l'amplitude de modulation  $n_1$  et la fréquence centrale du miroir peut être ajustée en changeant l'angle d'incidence du faisceau ou la température du miroir (l'expansion thermique changeant l'espacement du réseau). Pour une énergie de pompe maximale (1.7 mJ à 532 nm), l'énergie du signal (975.3 nm) atteint 0.35 mJ. La largeur spectrale du signal est de 50 GHz, ce qui correspond à une diminution d'un facteur 20 par rapport à une configuration utilisant un miroir conventionnel en lieu et place du miroir VBG. Le cristal non-linéaire utilisé est du PPLN. Le même groupe de travail a effectué un développement d'un autre OPO simplement résonant utilisant le PPLN autour de 2  $\mu\text{m}$  [Henriksson 2006] et qui produit une énergie de signal de 720  $\mu\text{J}$  à 2008 nm pour une énergie de pompe (1.06  $\mu\text{m}$ ) de 4.2 mJ.

Un OPO simplement résonant fonctionnant avec un cristal périodiquement polarisé combiné avec un miroir VBG pompé avec une onde fondamentale à 1  $\mu\text{m}$  peut donc être une piste très intéressante pour le développement futur d'une source paramétrique à 2  $\mu\text{m}$ . Cependant la largeur spectrale (plusieurs dizaines de GHz) d'un OPO nanosecondes à miroirs VBG est trop grande pour l'application demandée dans le cadre de PULSNIR (<60 MHz).

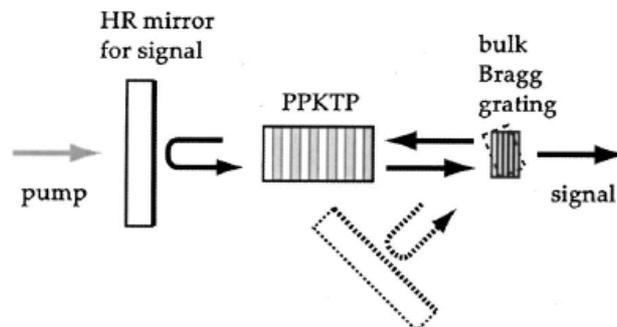


Fig.3. 10. : SROPO avec un coupleur de sortie VBG [Jacobsson 2005]

### 3.1.2. SROPO injecté

De manière basique, dans un OPO injecté, l'oscillation est forcée sur un seul et unique mode axial par l'introduction d'un mode pur dans ce mode durant le temps de montée de celui-ci. La fréquence injectée recouvre un seul mode axial et la puissance injectée est suffisamment grande comparée au niveau de bruit de manière à ce que le mode injecté commence à dépeupler la pompe avant qu'aucun mode adjacent ne puisse osciller. En comparaison aux cavités spectralement sélectives, la technique d'injection est très attractive car l'OPO ne souffre pas de pertes optiques additionnelles. Par conséquent, un seuil d'oscillation bas et une haute efficacité de conversion sont attendus dès lors que la puissance injectée devient supérieure au seuil d'oscillation.

Bien que la longueur de la cavité OPO soit ajustée pour être résonante à la longueur d'onde injectée, la longueur d'onde de l'OPO peut différer de celle injectée due à différents processus :

- Si le gain paramétrique d'un mode non-injecté devient plus grand que le gain d'un mode injecté, alors le mode avec le plus grand gain va osciller, conduisant à un saut de mode. Un tel comportement peut être observé si le mode injecté ne se situe pas exactement au sommet de la courbe de gain paramétrique [Amediak 2008].
- En cas de désaccord de phase ( $\Delta k \neq 0$ ) : dans ce cas, les ondes amplifiées (signal ou complémentaire) subissent un changement de phase car le vecteur d'onde de la polarisation non-linéaire n'est pas égal à celui des ondes amplifiées.
- Un retour non-désiré de l'onde non-résonante. En cas de faible retour optique de l'onde non-résonante, la valeur de gain maximal dépendant de la phase relative entre les trois ondes, par conséquent la phase du mode résonant peut être affectée pour maintenir le gain à sa valeur maximale.
- Un indice de réfraction non-linéaire : la résonance de la cavité peut être modifiée par l'indice de réfraction non-linéaire (effet Kerr) induit par la pompe.

Pour des applications DIAL, des OPO injectés de puissance ont été développés à 1.6  $\mu\text{m}$  [Amediak 2008] et notamment pour la mesure du  $\text{CO}_2$ . Dans ce travail, le faisceau injecté à 1572.993 nm est délivré par une diode laser DFB télécom fibrée, le cristal étant pompé par la seconde harmonique d'un laser Nd:YAG. La cavité utilisée est une cavité en anneau qui semble plus appropriée pour un processus d'injection car les trois miroirs présentent un plus grand rejet de l'onde complémentaire non-résonante et le retour optique au laser d'injection est réduit substantiellement. Cependant la plus haute efficacité de conversion sera obtenue avec une cavité linéaire. Une énergie de 40 mJ injecté est obtenue dans cette configuration pour une énergie de pompe de 100 mJ. La durée de pulse est de 5 ns. Cependant, il subsiste quelques imperfections, notamment spectrales, sur cette source, des modes parasites apparaissant. L'accord en fréquence est de même réalisé manuellement.

Si nous comparons les performances obtenues avec un OPO injecté et une solution basée sur un élément dispersif, alors seul l'OPO injecté peut produire un signal puissant (plusieurs dizaines de mJ) du à l'absence de pertes optiques et la haute efficacité de cette architecture. Cependant, la technique d'injection souffre de plusieurs limitations : la complexité de l'architecture, la nécessité de stabiliser activement deux cavités, les longueurs d'onde limitées pour les diodes laser à cavité externe et leur sensibilité aux vibrations mécaniques.

C'est pourquoi dans le cadre de ce projet, nous allons étudier le développement d'un OPO doublement résonant (DROPO : Doubly Resonant OPO) permettant de s'affranchir de ces limitations.

### 3.2. Présentation générale du DROPO (Doubly Resonant OPO)

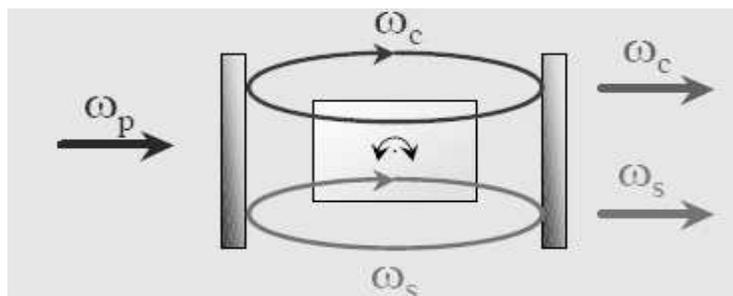
#### 3.2.1. Considérations générales

Au vu des difficultés pour atteindre des puissances convenables avec une architecture d'OPO simplement résonant à réseau de Bragg et la complexité d'un SROPO injecté, dans le cadre du contrat PULSNIR, l'architecture finalement envisagée est une configuration d'OPO à deux cavités imbriquées.

Dans un OPO doublement résonant (DROPO), les deux ondes signal et complémentaire oscillent dans une cavité optique unique dans sa version la plus simple. Le DROPO présente l'avantage d'avoir un seuil d'oscillation très bas, car celui-ci est atteint dès que le seuil paramétrique en simple passage compense les pertes des ondes signal et complémentaire. La faible valeur du seuil est le principal atout des DROPO.

Dans la géométrie linéaire, les ondes signal et complémentaire traversent le cristal dans les deux sens. Au retour, ces ondes peuvent se recombinaison pour produire par somme de fréquences, une onde à la fréquence pompe qui se propage en sens opposé à l'onde incidente.

Pour éviter cette reconversion au retour, on peut utiliser des cavités en anneau mais celles-ci conduisent à des trajets optiques longs. Ces cavités conduisent à des peignes de modes plus resserrés ce qui amène une plus grande difficulté pour atteindre une émission monomode. Le développement d'OPO en anneau en régime d'impulsion nanoseconde se heurte à un problème principal qui est le seuil d'oscillation relativement haut.



**Fig.3. 11 : OPO doublement résonant à cavité simple**

Les autres limitations du DROPO sont les fortes fluctuations de l'intensité émise et l'absence d'oscillations pour certaines plages de longueurs d'ondes. Ceci provient du phénomène de cluster de modes qui est mis en avant par un diagramme de Giordaine-Miller [Giordaine-Miller 1965] sur la figure suivante (**Fig.3. 12**). Ceci signifie que pour un DROPO il existe sous la courbe de gain paramétrique plusieurs modes signal et complémentaire qui coïncident sous la bande de gain paramétrique et conduisent à une émission multimode (**Fig.3. 13**).

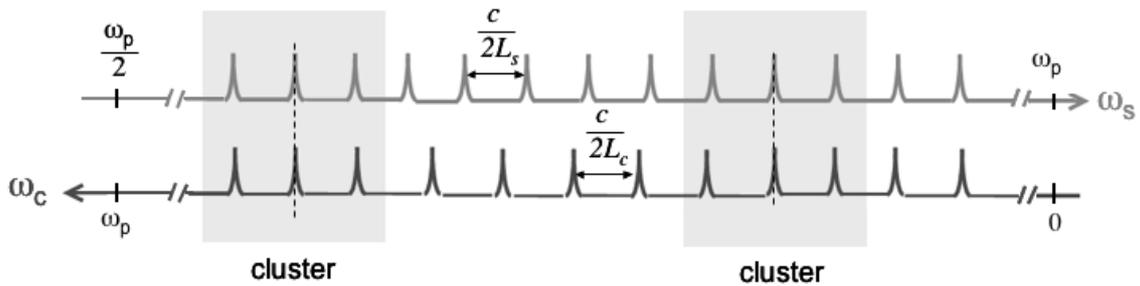


Fig.3. 12 : Diagramme de Giordmaine et Miller : mise en évidence de cluster de modes dans un OPO doublement résonant

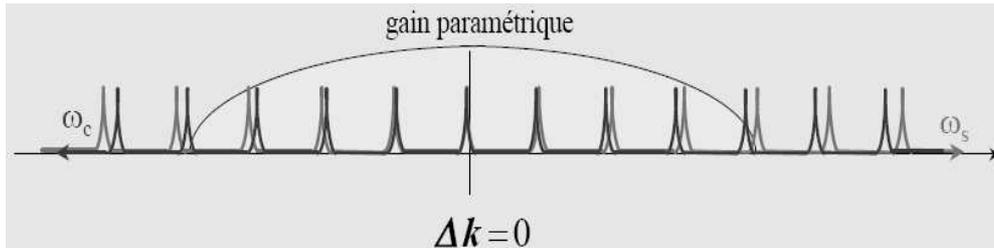


Fig.3. 13 : Emission multimode sous la courbe de gain paramétrique d'un DROPO à cavité simple

### 3.2.2. DROPO à cavités séparées

Cependant le développement de DROPO à cavités séparées permet de s'affranchir de ces problèmes de cluster de modes.

Il est développé de telle manière que les ondes signal et complémentaire oscillent dans deux cavités distinctes (Fig.3. 14).

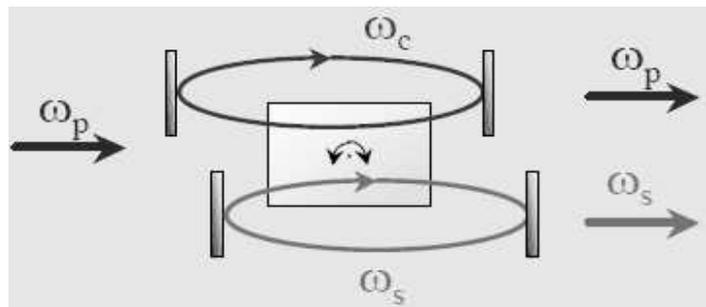
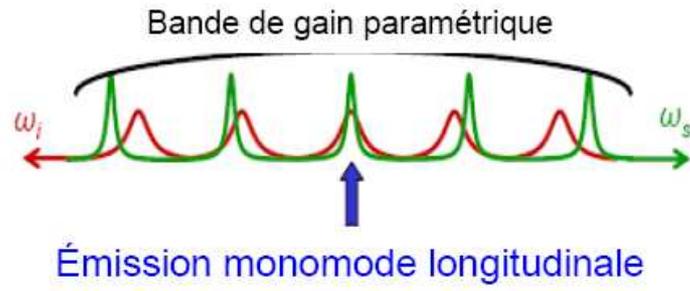


Fig.3. 14 : OPO doublement résonant à cavités séparées

Il est donc possible d'ajuster séparément les longueurs optiques des cavités signal et complémentaire. Lorsque ces deux valeurs sont adaptées, le recouvrement entre modes voisins (de part et d'autre d'une coïncidence exacte) devient très faible et l'oscillation ne s'effectue que sur un seul mode [Scherrer 2000, Berrou 2007] (Fig.3. 15).

Ce type de cavité (Entangled Cavity OPO ou ECOPO) a été conçu à l'ONERA et fait l'objet d'un brevet.



**Fig.3. 15 :** *Diagramme de Giordaine-Miller : émission monomode dans un DROPO*

#### 4. MOPA : architecture envisagée

Afin de satisfaire à la fois aux exigences spectrales, spatiales et énergétiques, l'ONERA/DMPH a choisi de développer une architecture de type oscillateur/amplificateur. (Master Oscillator / Power Amplifier : MOPA)

##### 4.1. DROPO

Le DROPO constitue la partie critique du développement de l'unité de conversion de fréquence. En effet, le but du DROPO n'est pas l'obtention d'une émission de puissance mais la génération d'une émission d'un faisceau monomode longitudinal, en accord avec les spécifications en termes de longueur d'onde, largeur spectrale et pureté spectrale. Le design de celui-ci est basé sur un quasi-accord de phase de type II dans un cristal de PPLN. En effet, dans le cadre précis investigué, nous nous trouvons proche de la dégénérescence ( $\omega_s \approx \omega_c \approx \omega_p/2$ ). Dans ce cas, l'émission obtenue par interaction paramétrique est plus étroite spectralement pour une interaction de type II qu'une interaction de type 0 (trois ondes ayant la même polarisation).

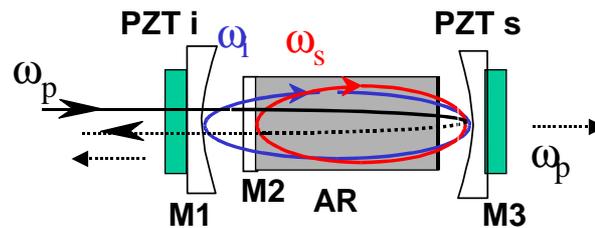


Fig.3. 16 : Design préliminaire du DROPO

La cavité est une cavité originale, qui permet de compacter le design de base de l'OPO à cavités duales [Raybaut 2009]. Celle-ci n'est composée que de trois miroirs. Comme représenté précédemment (Fig.3. 16), les ondes signal et complémentaire oscillent respectivement entre les paires de miroirs M2-M3 et M1-M3. Les miroirs M1 et M3 sont montés sur deux PZT (PieZoelectric Translators) pour effectuer un ajustement en fréquence fin. Le miroir M2 est déposé directement sur la face du cristal. La cavité signal est une cavité à très haute finesse et le complémentaire est couplé en sortie par le miroir M1 à l'étage d'amplification. Dans cette configuration, c'est le même miroir (M3) qui réfléchit les trois ondes (pompe, signal, complémentaire). La réflexion du faisceau de pompe augmente les performances du DROPO si la phase relative  $\Delta\varphi = \varphi_p - (\varphi_c + \varphi_s)$  est correctement ajustée afin de maintenir le processus de conversion paramétrique au retour. Ceci est effectué en utilisant un cristal avec un faible biseau :  $\Delta\varphi$  peut alors être ajustée en déplaçant le cristal perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau. La période du pas de polarisation du cristal de ppLN est de l'ordre de

14.4 $\mu\text{m}$ . Pour différentes périodes on peut atteindre la longueur d'onde désirée en ajustant la température.

Différents paramètres sont limités par le cristal lui-même. En effet, l'ouverture de celui-ci donne la taille maximale du rayon d'étranglement (« waist ») des ondes et ainsi la puissance maximale de pompe injectable afin de rester sous le seuil de dommage. Pour une interaction de type II, seuls des cristaux avec une ouverture de 1mm sont disponibles commercialement.

Cela signifie que des waists de pompe de 200-250  $\mu\text{m}$  peuvent être utilisés. Le seuil de dommage de 1  $\text{J}/\text{cm}^2$  du PPLN correspond à peu près à 1 mJ pour un waist de pompe de 250  $\mu\text{m}$  [SNLO]. Travailler deux fois en dessous de cette limite de pompage est nécessaire lorsque l'on travaille avec des cavités OPO à réflexion de pompe : l'énergie correspondante du complémentaire attendue serait donc de l'ordre de 100  $\mu\text{J}$ . Afin de garder une bonne qualité de faisceau, des résonateurs stables sont choisis : les miroirs M1 et M3 sont concaves. La taille du waist de pompe choisi impose aussi cette courbure afin de garder le meilleur recouvrement possible entre les ondes résonantes et l'onde de pompe. L'OPO est inséré dans un ensemble mécanique développé à l'ONERA contenant un four permettant de réguler la température à  $\pm 3$  mK pour la stabilité des cales piézo-électriques.

#### **4.2. OPA (Optical Parametric Amplificator)**

Afin d'atteindre le niveau de puissance spécifié pour la source, des étages d'amplification sont nécessaires. C'est ce que l'on appelle un OPA (Optical Parametric Amplifier). En effet, la puissance optique au sortir du DROPO se situe aux alentours des 100 $\mu\text{J}$  et doit donc être amplifiée tout en maintenant les propriétés du faisceau et la qualité spectrale.

De hautes efficacités de conversion non-linéaire peuvent être obtenues en utilisant un cristal de PPLN en type 0 pour l'étage de préamplification (gain de l'ordre de 10 avec un seul cristal) [PULSNIR 2008]. Cependant, pour atteindre les puissances envisagées, d'autres amplificateurs sont nécessaires.

En utilisant des cristaux de KTP (qui ont un haut seuil de dommage contrairement au PPLN) et en utilisant l'énergie de pompe et en compensant la double-réfraction (walk-off), de hautes efficacités d'amplification peuvent également être atteintes en permettant d'extraire des énergies plus élevées [Arisholm, 2004]. Ceci a conduit l'ONERA au design général de l'unité de conversion de fréquence représenté sur la figure suivante (**Fig.3. 17**) :

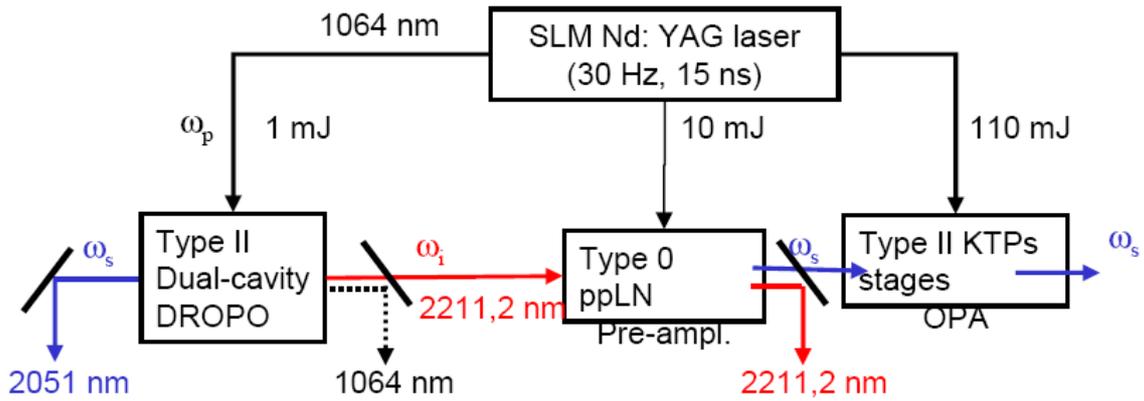


Fig.3. 17 : Design préliminaire de l'unité de conversion de fréquence

Le montage doit alors être optimisé : nombre de cristaux, taille des cristaux, nombre de miroirs filtrants, nécessité de coupler l'énergie de sortie du complémentaire... Pour ceci, des simulations sont conduites (code SNLO).

Un autre point crucial pour atteindre une haute efficacité est le recouvrement temporel des faisceaux (amplifié et de pompe). A cause du temps de construction de l'oscillation dans la cavité OPO, le pulse complémentaire utilisé pour injecter l'étage de préamplification est fortement dissymétrique. Sans une ligne à retard, il n'y aurait pas de recouvrement entre la première moitié de la pompe et le complémentaire durant l'amplification. La valeur du délai optimal est corrélée à la longueur des cristaux amplificateurs et au niveau de pompe et est égale à 10 ns dans cette configuration [PULSNIR 2008].

Les résultats de ces simulations conduisent à un design optimal composé d'un cristal de PPLN de 12 mm pour l'étage préamplificateur suivi de quatre cristaux de KTP de 25 mm pour l'étage amplificateur.

## 5. Démonstration préliminaire du MOPA (DROPO+OPA) : puissance, efficacité de conversion et qualité de faisceau

Le développement pratique de la source DROPO par l'ONERA s'est heurté à quelques difficultés expérimentales. En effet, nous rappelons (Fig.3. 18) l'architecture envisagée pour le DROPO avec le cristal de ppLN biaisé afin d'ajuster finement l'accord de phase ainsi que le miroir M2 déposé directement sur la face externe opposée du cristal.

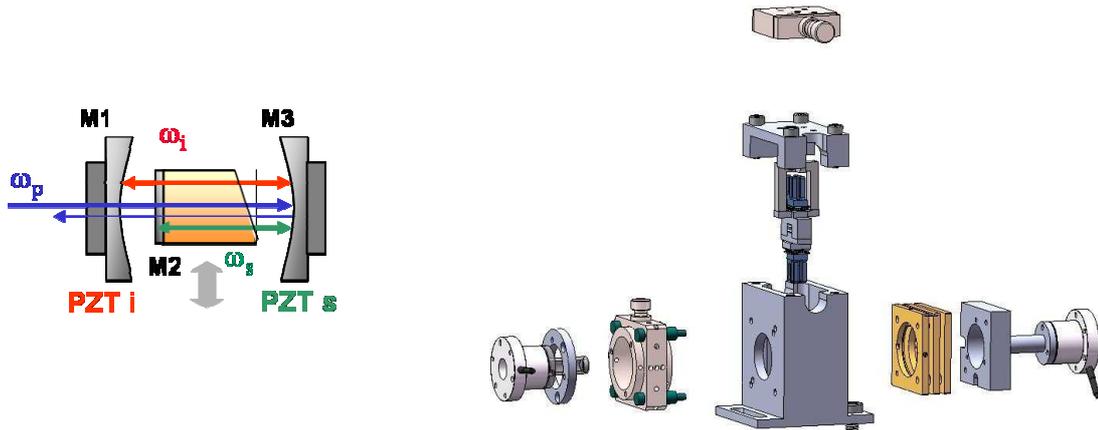


Fig.3. 18 : Architecture optique (gauche) et architecture mécanique (droite) du DROPO

Durant des premiers tests, des dommages optiques ont été observés sur le miroir M2, directement déposé sur le cristal. Une configuration avec un miroir externe a été mise en place pour pallier ce problème. Ce sont les résultats obtenus dans cette configuration que nous présentons ci-après. Nous pouvons cependant noter ici que des expériences ultérieures avec un cristal de PPLN, dont les traitements des miroirs ont été effectués chez un autre fournisseur, ont été réalisées.

Un DROPO en configuration linéaire avec miroir externe a donc été conçu. Seul 1 mJ de pompe est utilisé pour pomper le DROPO sur un rayon d'étranglement (« waist ») de 250  $\mu\text{m}$ . Le cristal utilisé dans cette nouvelle configuration est un cristal de PPLN en type II (largeur spectrale fine) de 16 mm.

Un DROPO en configuration linéaire avec miroir externe a donc été conçue à l'ONERA. Ces changements ont aussi une influence sur l'oscillation du mode longitudinal. En effet, avec une cavité plus longue, l'espacement de modes est plus court et l'obtention d'une émission monomode longitudinale est plus difficile. Le système est développé autour d'un laser de pompe Nd:YAG déclenché (« Q-switch »). Un faisceau de 3.6W est produit par une cavité (résonateur instable) délivrant un profil laser gaussien en champ lointain avec un waist de 2mm produisant une émission monomode longitudinale à 1064 nm, à une fréquence de répétition de 30 Hz et une énergie de 120 mJ. La durée des impulsions est de 15 ns.

L'oscillation a lieu, avec un seuil autour de  $200\mu\text{J}$ . Une énergie de sortie de  $8\mu\text{J}$  pour une pompe incidente de  $0.5\text{ mJ}$  est obtenue. L'énergie extraite apparaît avoir un comportement quasi-linéaire (pente d'extraction  $\sim 3\%$ ) avec l'énergie de pompage dès lors que le seuil d'oscillation est atteint (Fig.3. 19).

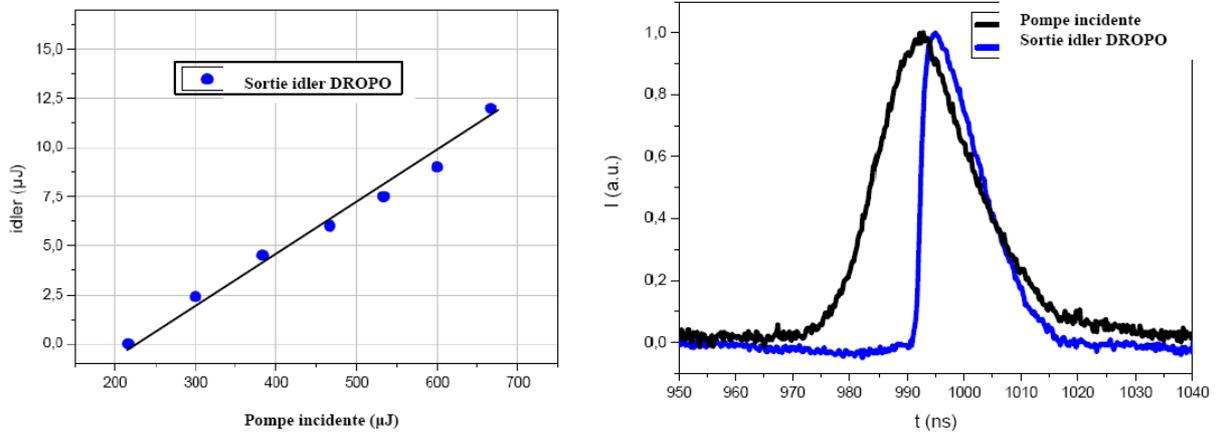


Fig.3. 19 : Energie de sortie du DROPO en fonction de l'énergie de l'onde pompe incidente (gauche) et profils temporels du signal complémentaire du DROPO et de la pompe

Concernant l'OPA, une caractérisation de l'étage de pré-amplification a d'abord été effectuée : après une ligne à retard de  $10\text{ ns}$ ,  $6\text{ mJ}$  sont utilisés pour pomper le premier étage d'amplification. La mesure du faisceau est effectuée avec une caméra infrarouge pyrocam de pixels de  $100\mu\text{m}$  (Fig.3. 20).

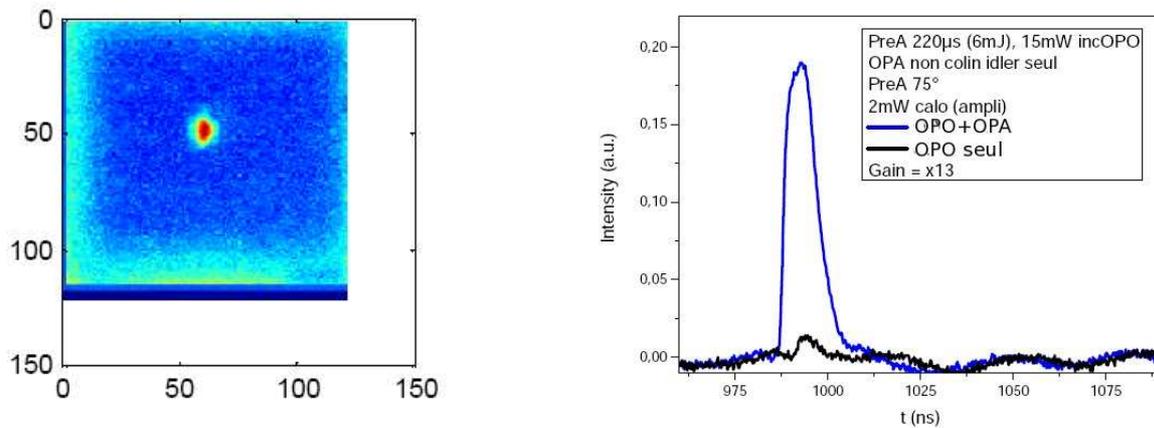
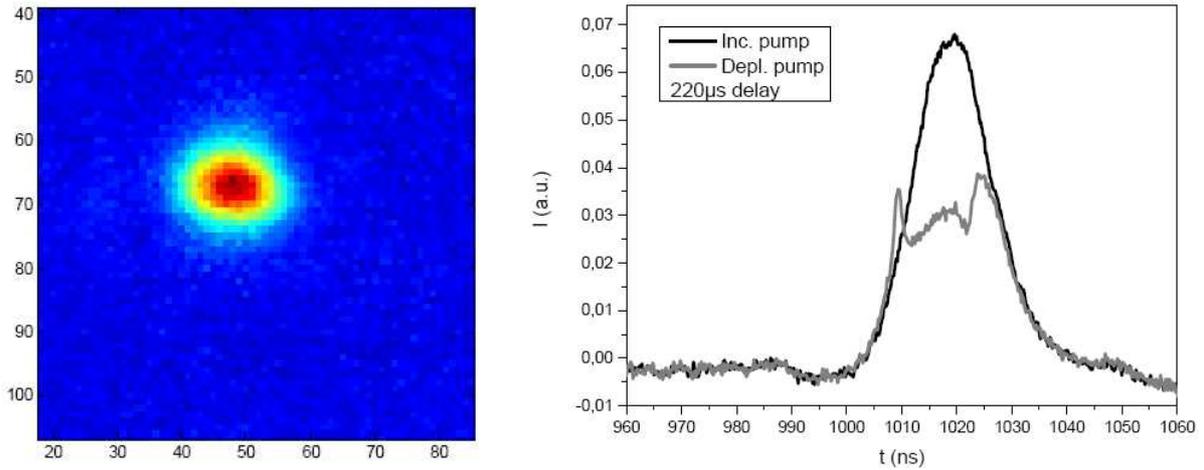


Fig.3. 20: Profil spatial de sortie du préamplificateur et profil temporel du signal complémentaire sans et avec préamplification

Le gain typique de l'étage de pré-amplification est de 6 (avec une pompe de  $5\text{ mJ}$ ), alors que le gain maximal atteint est de 13 (avec une pompe de  $6\text{ mJ}$ ).

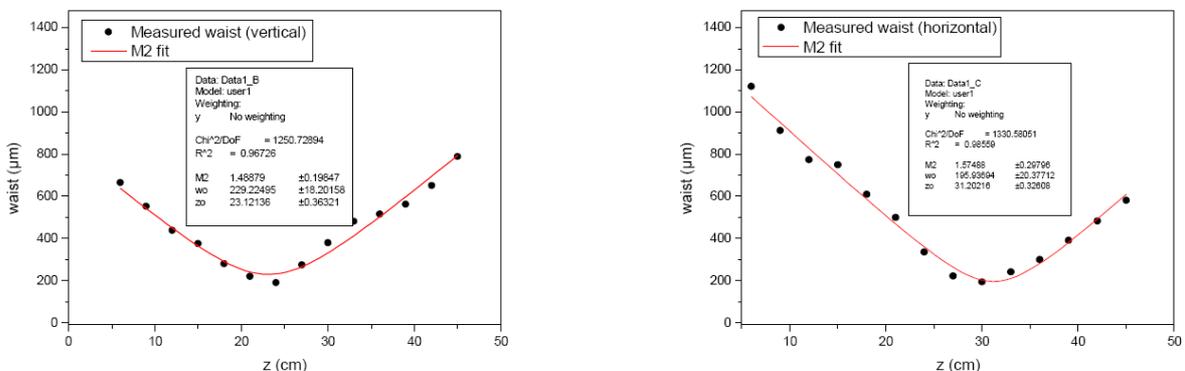
L'étage d'amplification (« boosters ») de cristaux de KTP a lui aussi été caractérisé : la puissance de sortie ainsi que l'efficacité de conversion et la qualité de faisceau ont été investigués. Ces résultats sont représentés sur la figure ci-après (Fig.3. 21).



**Fig.3. 21 :** *Faisceau de sortie de l'amplificateur (gauche) et profil temporel du signal complémentaire sans et avec amplification et pompe incidente (droite)*

La puissance de sortie de l'ensemble de l'unité de conversion atteinte dans la configuration testée est de 12.5 mJ ce qui correspond à une efficacité de conversion de 12%. On observe aussi une déplétion de 33% de la pompe à travers les 4 KTP (**Fig.3. 21 droite**) ce qui induit une conversion de la pompe en signal de 17.8 %, les photons « signal » étant plus énergétiques que les photons « complémentaires ». L'énergie effective en entrée des KTP est de 86mJ du fait des différentes pertes sur les optiques (miroirs, ligne à retard). Ainsi, en tenant compte de ces pertes, le pourcentage de conversion par rapport aux 93 mJ de pompe disponibles en entrée des différents étages est de 16.5%. Expérimentalement, une énergie de 11.2 mJ est mesurée, ce qui correspond à 12 % d'efficacité de conversion par rapport à la pompe de 93 mJ et de 13% par rapport aux 86 mJ effectifs. Ces pertes sont dues aux miroirs filtrants placés en sortie de l'étage de KTP et peuvent être réduites avec de meilleurs miroirs.

En ce qui concerne le facteur de qualité  $M^2$  du faisceau, celui-ci a été caractérisé en mesurant les waists du faisceau dans les directions horizontale et verticale, et est inférieur à 1.9 (**Fig.3. 22**).



**Fig.3. 22 :** *Mesure du facteur de qualité  $M^2$  du faisceau déduit des waists vertical (gauche) et horizontal (droite)*

L'objectif de 30 à 40 mJ avec une efficacité de conversion optique-optique supérieure à 35%, ne sont pour le moment pas atteints, cependant de nombreux points peuvent être améliorés afin d'augmenter l'efficacité du système :

- **DROPO** : en revenant à la configuration initiale (cristal plus court et miroir déposé sur le cristal), et en effectuant un meilleur ajustement du biseau, un gain de 2 est attendu sur la puissance ainsi que sur la stabilité spectrale (cavité plus courte). Cette expérience a été vérifiée récemment à l'ONERA
- **préamplificateur PPLN** : le recouvrement de modes peut être amélioré en ajustant la partie opto-mécanique et la stabilité de pointage du faisceau (instabilités thermo-mécaniques). De plus un cristal plus long peut être envisagé. De nouveaux cristaux de PPLN à large ouverture (IMS Japan) ont été développés ; ainsi ce type de cristaux permettrait de coupler une pompe plus intense (la double-réfraction deviendrait de même négligeable). Un gain de 2 peut être attendu sur cet étage.
- **amplificateurs KTP** : dans cet étage, l'ajout d'un cinquième cristal de KTP ainsi que la suppression des pertes intermédiaires (miroirs filtrants et ligne à retard) permettrait d'augmenter considérablement le gain.

Les performances attendues et les performances expérimentalement mesurées ainsi que les points d'amélioration potentiels sont récapitulés dans le tableau suivant (**Tab.3. 5**).

**Tab.3. 5 : Performances théoriques attendues et performances expérimentales pour chaque étage du MOPA**

<i>paramètre</i>	<i>attendu</i>		<i>obtenu</i>		<i>points d'amélioration / gain attendu</i>
	<i>puissance (puissance incidente)</i>	<i>efficacité de conversion / gain</i>	<i>puissance (puissance incidente)</i>	<i>efficacité de conversion / gain</i>	
<b>DROPO</b>	<i>100 μJ (1 mJ)</i>	<i>10 %</i>	<i>8 μJ (0.5 mJ)</i>	<i>1.6 %</i>	- <b>PPLN 12 mm</b> - <b>miroir déposé</b> - <b>gain x 2</b>
<b>préamplificateur PPLN</b>	<i>2 mJ (10 mJ)</i>	<i>20 (gain)</i>	<i>0.2 mJ (6 mJ)</i>	<i>13 (gain)</i>	- <b>cristal plus long</b> - <b>stabilité pointage</b> - <b>gain x 2</b>
<b>amplificateur KTP</b>	<i>35 mJ (100 mJ)</i>	<i>35%</i>	<i>12.5 mJ (86 mJ)</i>	<i>12%</i>	- <b>5ème cristal</b> - <b>Suppression pertes</b> - <b>gain x 2</b>

## **6. Caractérisation de la stabilité spectrale de la source**

Outre la puissance émise, la stabilité spectrale de la source laser est un élément essentiel pour une source DIAL. En effet, afin de réaliser une mesure DIAL précise, les dérives spectrales de la source laser doivent être minimisées. Les critères de stabilité précisés sont une dérive maximale de 1.5 MHz sur 10s. Nous avons investigué les différentes solutions de stabilisation active de la source.

### **6.1. Stabilisation avec cellule photoacoustique**

Lors de cette étude, un problème important était l'étude de faisabilité d'un contrôle spectral de cette source par méthode photoacoustique. Cette étude de faisabilité a été réalisée à l'IPSL au cours de cette thèse. En effet celle-ci semble très prometteuse et avantageuse car elle permet une mesure absolue de la section efficace de la raie (ou du coefficient d'absorption de celle-ci) et permet donc directement de déterminer le décalage en fréquence.

Notons que dans le cadre d'une stabilisation de la source DROPO, nous nous trouvons dans le cas d'une excitation pulsée. Dans ce cas, des impulsions de durée de l'ordre de la nanoseconde sont employées. Ainsi, les fréquences de répétition de la source pulsée étant de l'ordre de quelques dizaines de Hz, ceci résulte en de courtes périodes d'illumination suivies de longues périodes d'obscurité. En mode pulsé, le signal est généralement étudié dans le domaine temporel. L'élaboration du signal acoustique en mode pulsée n'est pas détaillée ici mais conduit à la génération par chaque onde sinusoïdale d'amplitude décroissante en exponentielle négative se superposant, dont la valeur  $A_0$  à  $t=0$  est donnée par la formule [Schmid 2006] :

$$A_0 = Q \cdot \frac{G \cdot (\gamma - 1) \cdot E_0 \cdot \alpha(\nu) \cdot L}{V} \quad (3.12)$$

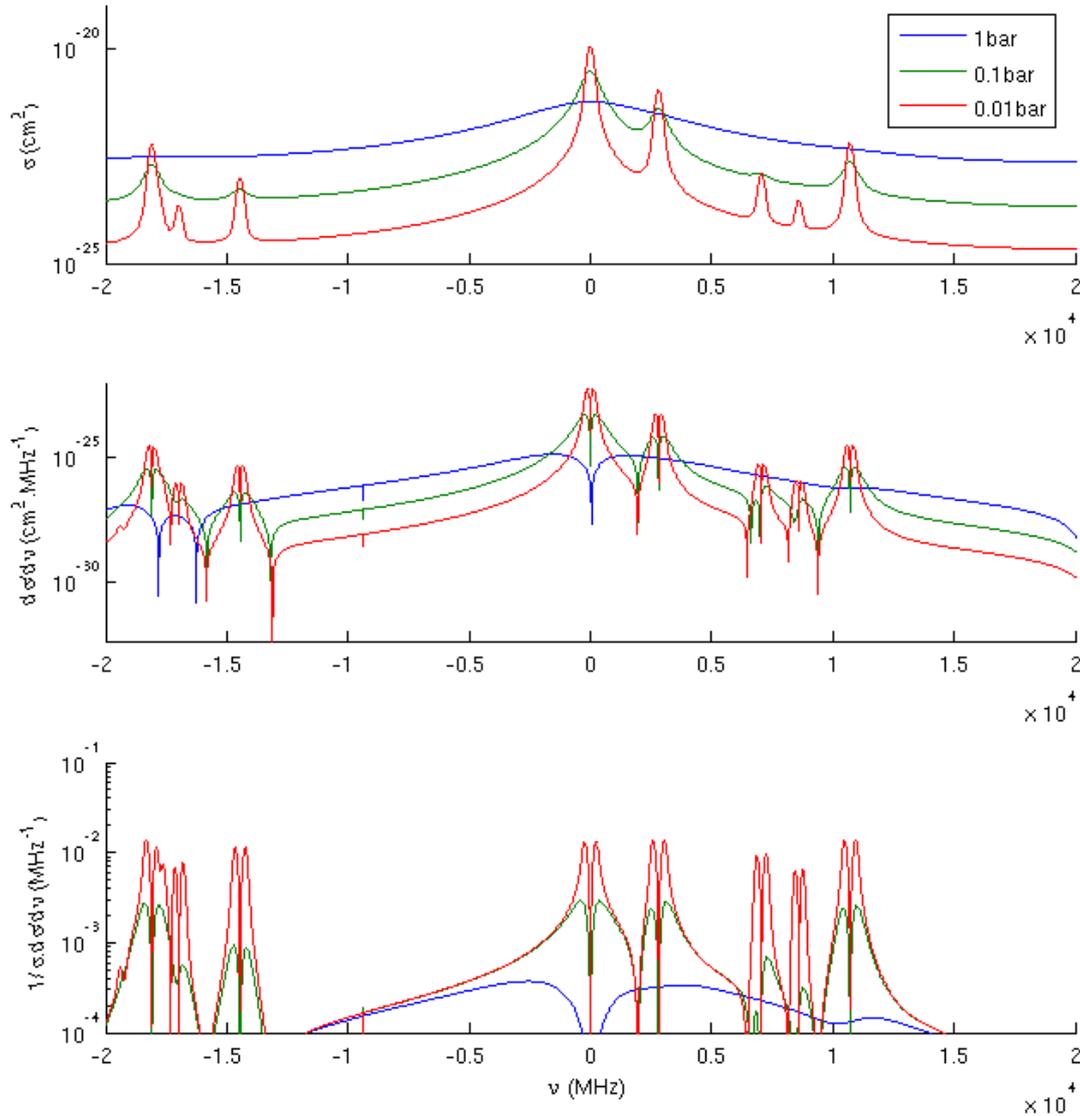
Avec  $Q$  le facteur de qualité de la cellule et  $E_0$  l'énergie laser incidente dans la cellule et  $G$  un facteur géométrique.

Dans notre cas, nous devons contrôler la stabilité spectrale de la source DROPO à  $\pm 1.5$  MHz. Pour une cellule donnée et à une énergie incidente stable, l'amplitude du signal est alors directement liée à la variation de coefficient d'absorption (*i.e* de section efficace).

Nous avons tracé ci-après (**Fig.3. 23**), le rapport de la dérivée de la section efficace selon la fréquence et de la section efficace pour la raie R30. Ceci nous donne directement la précision relative à atteindre sur la mesure de la section efficace pour contrôler la stabilité fréquentielle de la source à 1.5 MHz.

Ainsi à 3 GHz du centre de raie, une mesure de variation de fréquence de 1.5 MHz est plus favorable à une pression de cellule de 100 hPa et induit une précision relative requise de  $9 \cdot 10^{-4}$ . Dans notre cas, nous devons alors mesurer des variations de coefficients d'absorption de  $2.25 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$ . En moyennant

la mesure sur 300 signaux (10s), nous devons alors mesurer un coefficient d'absorption minimal de  $3.8.10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ .



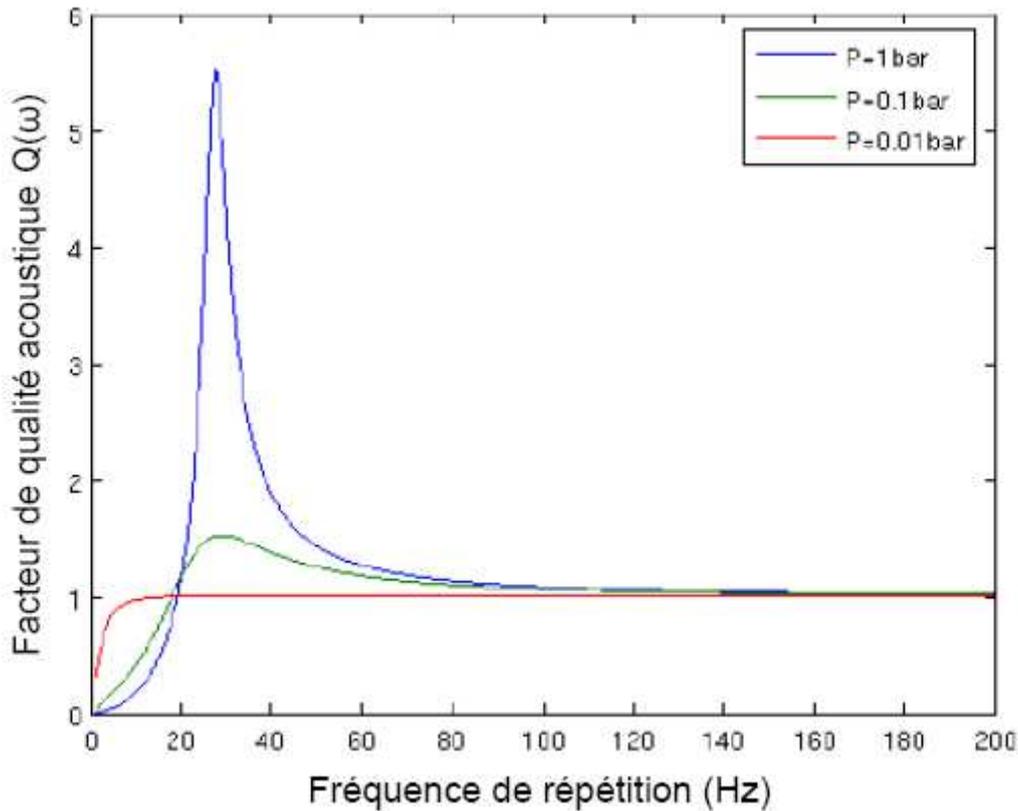
**Fig.3. 23 :** Section efficace (haut), dérivée de la section efficace par rapport à la fréquence (milieu) et dérivée relative de section efficace (bas) pour la raie R30 et les raies avoisinantes pour trois pressions

Ces degrés de précision ne peuvent pas être atteints dans le cas de cellules non-résonantes. Nous envisageons alors la possibilité de définir une cellule résonante à la fréquence de répétition du laser (*i.e.* 30 Hz).

A une fréquence de répétition si faible, l'utilisation des modes longitudinaux ou radiaux conduit à des tailles caractéristiques de cellule trop grandes (ordre du mètre). Aussi nous envisageons d'utiliser la résonance d'Helmholtz (à une fréquence beaucoup plus basse) d'une cellule. La configuration envisagée est une cellule DDHR (Doubly Differential Helmholtz Resonator) consistant en deux

cylindres équipés d'un microphone et reliés par un capillaire. Cette configuration a déjà été développée avec succès dans le cas d'une radiation laser modulée [Zeninari 2003]. Afin d'obtenir une résonance de Helmholtz à 30 Hz.

Afin de modéliser l'apport d'un tel système, nous le modélisons à l'aide de la théorie EHR (Extended Helmholtz Resonator) [Nordhaus 1981]. Nous pouvons alors estimer le facteur de qualité obtenu  $Q$  dans le cas des trois pressions différentes précédemment étudiées (Fig.3. 24).



**Fig.3. 24 :** *Facteur de qualité acoustique dans le cas d'une cellule DDHR modélisée par la théorie EHR pour 3 pressions différentes*

Ainsi, le gain atteignable pour une telle cellule dans le cas d'une pression de 100 hPa est de 1.4 et est négligeable. Ainsi ce type de système n'est pas adapté à une telle mesure.

Cependant, dans le cas d'une excitation photoacoustique pulsée, un très large spectre fréquentiel est excité et ainsi de nombreuses fréquences de résonance peuvent être utilisées.

Ainsi, en analysant le signal dans le domaine fréquentiel après transformée de Fourier et en utilisant le premier mode longitudinal (100), un coefficient d'absorption minimal de  $6.1 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1}$  a été atteint [Brand 1995] pour des pulses de 20 mJ.

Ainsi les spécifications de ce projet peuvent être atteintes par méthode photoacoustique en utilisant une cuve à bas bruit et en filtrant le signal dans le domaine fréquentiel.

## **6.2. Stabilisation à l'aide d'un lambdamètre et procédure utilisée**

Une deuxième méthode de stabilisation spectrale a été mise en place à l'ONERA. Elle est effectuée à l'aide d'un signal provenant d'un lambdamètre haute-résolution. Celui-ci est constitué de six étages successifs d'interféromètres de Fizeau, fournissant donc une mesure spectrale très précise.

Cependant, contrairement aux techniques évoquées précédemment, le lambdamètre fournit une mesure relative et non-absolue. Afin de minimiser cette influence sur la mesure, l'étalonnage de l'appareil est effectué grâce à une source laser stabilisée sur une transition atomique du Rubidium à 780 nm.

De plus, afin d'atteindre les spécifications requises, une procédure de stabilisation spectrale est mise en place. Ceci est effectué en utilisant le signal de sortie du lambdamètre haute finesse qui mesure tir à tir la fréquence émise puis par un contrôle de la température et des capteurs piézoélectriques. Cette procédure est mise en œuvre par une électronique spécifique de NEO.

La procédure est alors la suivante :

- La température du cristal est ajustée pour faire correspondre le maximum de la courbe de gain paramétrique et la longueur d'onde désirée.
- La phase relative est ajustée en déplaçant le cristal biseauté perpendiculairement à l'axe de propagation du faisceau pour maximiser la sortie de l'OPO.
- La fréquence du signal est accordée, dans la bande de gain paramétrique, aussi proche que possible de la raie d'absorption. Ceci est fait par des sauts de modes discrets de la cavité signal et en ajustant la longueur de la cavité complémentaire.
- La fréquence signal est continûment ajustée sur la raie d'absorption en ajustant simultanément les deux cavités (signal et complémentaire).

Le lambdamètre (High-Finesse ws-u) fonctionne dans le visible aux longueurs d'onde inférieures à 1100nm. Ainsi, la portion de l'émission du DROPO envoyée dans le lambdamètre est préalablement doublée en fréquence à travers un cristal de KTP de type II de 20 mm de long par un processus de génération de seconde harmonique (SHG : Second Harmonic Generation).

Dans un premier temps, le comportement de la pompe est étudié et celle-ci montre une stabilité de  $\pm 6$  MHz sur 15 s (moyenne quadratique). Dans un deuxième temps, la stabilité de l'OPO en mode libre est caractérisée : la stabilité spectrale de celui-ci est de  $\pm 3.4$  MHz sur 45s. Cependant afin d'atteindre les spécifications sur la stabilité, celles-ci doivent être atteintes en mode libre car le contrôle doit se faire tir à tir. En utilisant la procédure de contrôle explicitée ci-dessus, les variations peuvent être réduites à  $\pm 3.2$  MHz en moyenne quadratique sur 10s (**Fig.3. 25** : expérience effectuée par l'ONERA et NEO).

Les variations résiduelles de  $\pm 3$  MHz sont directement liées au bruit électronique des cales piézo-électriques. L'objectif (*i.e*  $\pm 1.5$  MHz sur 10s) pourrait être atteint en utilisant des cales de plus faible

bruit. De même, l'utilisation de l'architecture précédemment envisagée (cristal de 7 mm et revêtement déposé sur le miroir) permettrait d'accroître les performances. En effet une cavité plus courte serait beaucoup plus stable. Une stabilité de  $\pm 1.5$  MHz sur 10s peut donc être envisagée à terme.

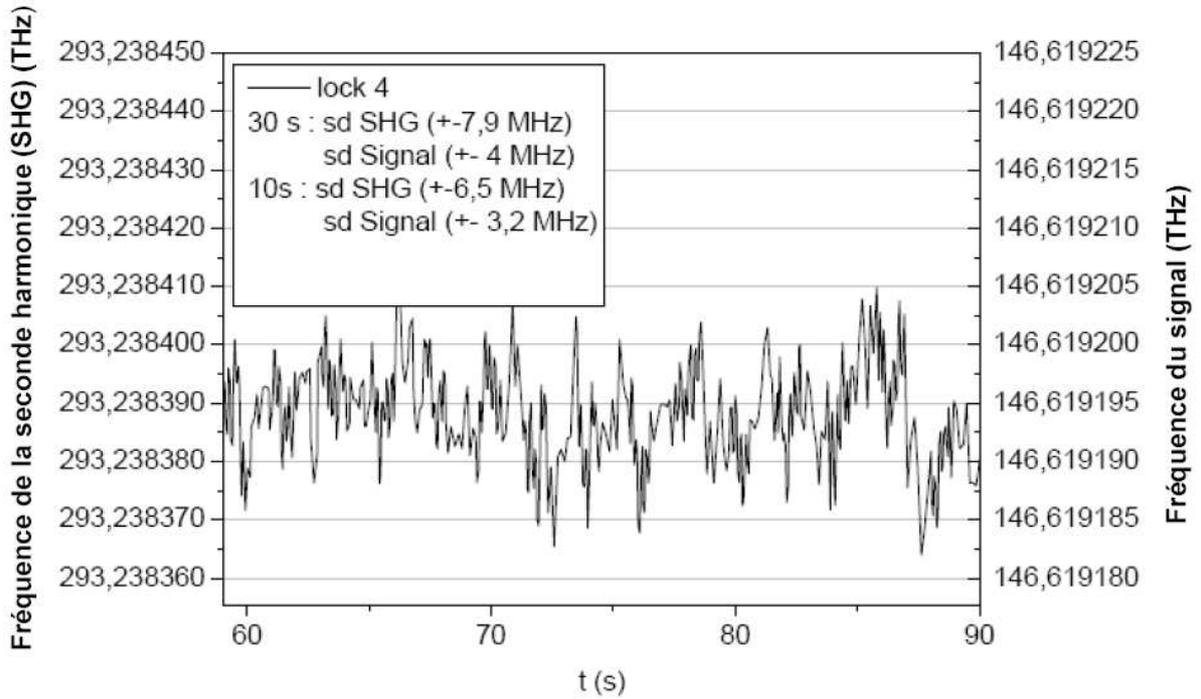


Fig.3. 25 : Comportement spectral à court terme du DROPO en utilisant la procédure PULSNIR et enregistré à l'aide du lambda-mètre

## **7. Mesure de la pureté spectrale**

### **7.1. Principe de la mesure**

Afin d'étudier cette propriété, un protocole expérimental a été défini au cours de cette thèse. Afin de pouvoir caractériser cette pureté spectrale, il est nécessaire de définir un filtre optique permettant de s'affranchir de la fraction spectralement pure de la radiation. Ainsi, la pureté spectrale est définie comme le ratio de l'énergie contenue dans la plage spectrale sur l'énergie totale émise  $P_0$ . En utilisant un filtre, nous mesurons donc l'énergie émise hors de cette bande spectrale :  $P$ .

Afin de définir un filtre optique, nous nous proposons d'utiliser une cellule d'absorption multipassages que nous utiliserons comme filtre Notch (coupe bande).

La pureté spectrale  $p$  devient donc :

$$p = 1 - \left( \frac{P}{P_0} \right) = 1 - \int a(\lambda) \cdot T(\lambda) \cdot d(\lambda) \quad (3.13)$$

Avec  $T(\lambda) = \exp(-\sigma_{CO_2}(\lambda) \cdot N_{CO_2} \cdot L)$  la transmission de la cellule et  $a(\lambda)$  le profil spectral de la raie laser

En normalisant la puissance mesurée par la puissance émise (*i.e.* puissance avant la traversée du filtre), il vient :

$$p = 1 - \frac{P_{ON} / P_{ON}^{ref}}{P_{OFF} / P_{OFF}^{ref}} = 1 - \frac{P_{ON} \cdot P_{OFF}^{ref}}{P_{OFF} \cdot P_{ON}^{ref}} \quad (3.14)$$

## **7.2. Caractérisation spectrale de la raie d'absorption utilisée comme filtre Notch**

### **7.2.1. Etalonnage spectral de la raie d'absorption à l'aide d'un étalon Fabry-Pérot.**

Afin de tester la pureté de la source DROPO, nous proposons d'utiliser la raie d'absorption de la cellule comme filtre Notch. Le principe de la caractérisation de la pureté spectrale de la source consiste à mesurer le rapport entre les énergies émises dans et hors du filtre [Amediek 2008].

Pour ceci, une cellule d'absorption multipassages à deux miroirs cylindriques est utilisée [Kasyutich 2007], pour un passage total cumulé de 11.656 m (106 passages).

Afin de caractériser la raie d'absorption utilisée comme filtre, nous nous proposons d'utiliser une diode laser DFB (Distributed FeedBack) dont la largeur spectrale annoncée par le fabricant est inférieure à 5 MHz.

La diode est progressivement accordée en fréquence sur la raie au moyen d'un contrôle de la température du Peltier. Ceci est effectué via un contrôle informatique, par l'intermédiaire d'un programme Labview déjà mentionné précédemment.

La diode laser émet un faisceau d'une puissance moyenne de l'ordre de 10 mW qui est modulé par un chopper mécanique à la fréquence de 200 Hz. Le faisceau divergent de la diode laser est collimaté à l'aide d'une lentille de focale 2.6 mm. Le faisceau est par deux fois séparé en deux par l'intermédiaire d'une lame séparatrice (R=10% à 2,05 μm) afin d'être dirigé respectivement vers un photo-détecteur (photodiode InGaAs) et un étalon Fabry-Pérot (Germanium) en incidence normale dont le signal de sortie est collecté par une lentille (f=25 mm) puis focalisé sur un détecteur (InGaAs). La partie restante du faisceau traverse la cuve multi-passages et est collecté en sortie par une lentille (f=20 mm) et focalisé sur un détecteur (InGaAs). Le signal détecté en sortie de cuve est amplifié puis dirigé vers une détection synchrone (lock-in). Le signal détecté après l'étalon Fabry-Pérot (FP) est de même dirigé vers une détection synchrone. Les détections synchrones sont déclenchées sur le signal du chopper mécanique.

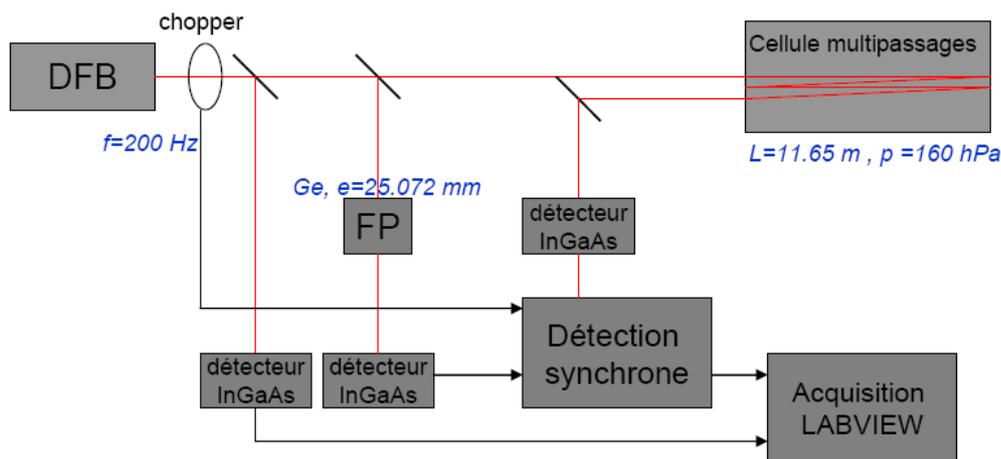


Fig.3. 26 : Schéma de l'expérience d'étalonnage de la raie d'absorption de la cellule multipassages

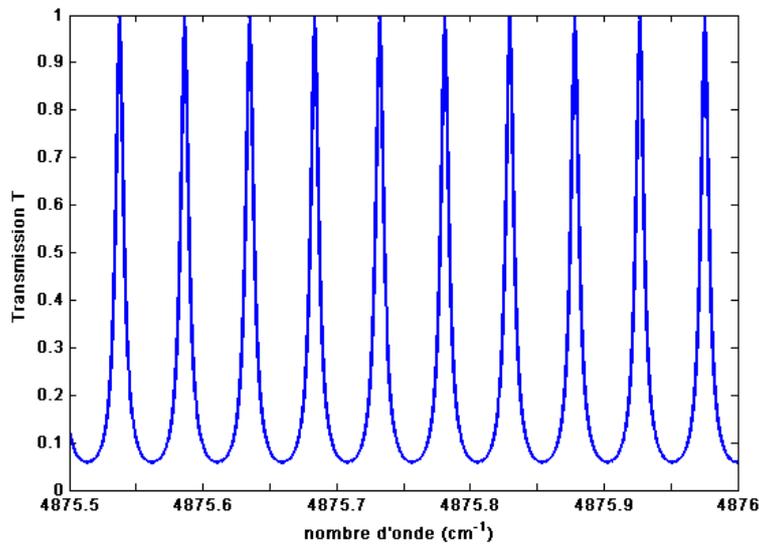
Le premier détecteur InGaAs permet d'effectuer un contrôle de l'énergie émise par la diode afin de normaliser les mesures effectuées. L'étalon Fabry-Pérot permet d'établir un étalonnage spectral de la transmission de la cuve.

L'intervalle spectral libre (ISL) de l'étalon Fabry-Pérot est défini par son indice de réfraction  $n$  (dépendant de la longueur d'onde de la radiation laser  $\lambda$  et de la température  $T$ ) ainsi que par l'épaisseur de l'étalon  $e$  et l'angle d'incidence  $\theta$  selon la formule suivante :

$$ISL = \frac{\lambda_0^2}{2 \cdot n \cdot e \cdot \cos \theta + \lambda_0} \approx \frac{\lambda_0^2}{2 \cdot n \cdot e \cdot \cos \theta} \quad (3.15)$$

Dans notre cas l'épaisseur  $e = 25.072$  mm, l'indice de réfraction  $n = 4.099$  (à  $T = 296,5$  K) et l'étalon est utilisé en incidence normale d'où  $\theta = 0$ . L'alignement du Fabry-Pérot en incidence normale est effectué par auto-collimation. La transmission de l'étalon FP, son coefficient de finesse et la différence de phase entre réflexions ont déjà été mentionnés au chapitre précédent (équations (2.50) à (2.52)).

Les franges d'interférence théoriques simulées de l'étalon Fabry-Perot utilisé sont présentées sur la figure suivante (**Fig.3. 27**).

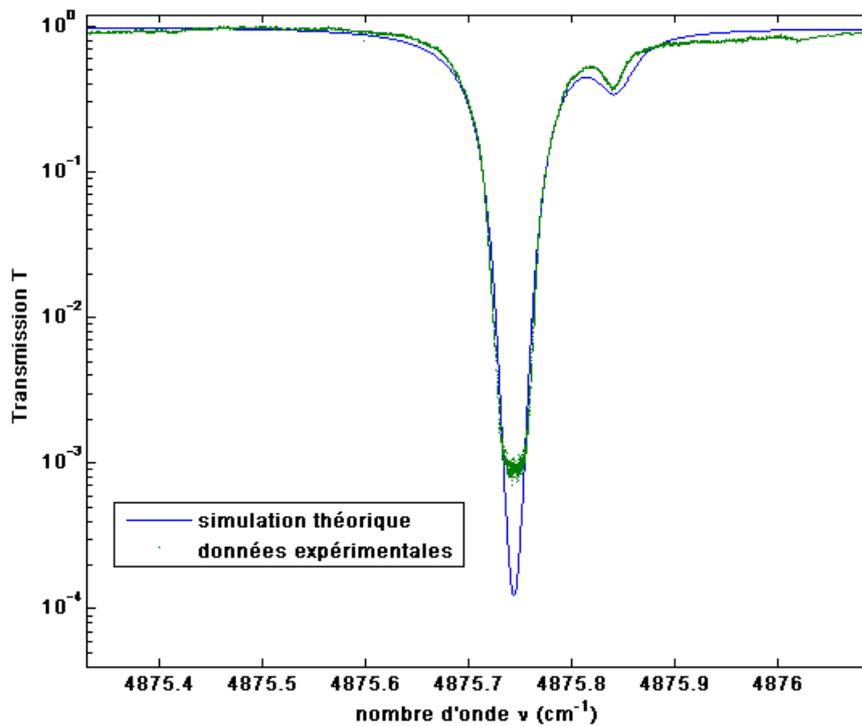


**Fig.3. 27 : Spectre de transmission théorique de l'étalon Fabry-Pérot Ge,  $e=25.072$  mm,  $T=298.5$  K**

Dans notre cas, la variable présentant des incertitudes est la température et donc l'indice de réfraction de l'étalon de Germanium. De même, la pression à l'intérieur de la cuve est contrôlée à 1 hPa près.

Le paramètre à déterminer lors de cette expérience est la largeur spectrale du filtre Notch (de la raie d'absorption). Celle-ci est à déterminer à une magnitude de transmission de  $2 \cdot 10^{-3}$  (comme l'on souhaite contrôler la pureté spectrale à 99,8%). Ce dispositif expérimental n'a pas pu permettre de caractériser une transmission de  $2 \cdot 10^{-4}$  afin de contrôler la pureté de la cuve à 99,98%. C'est pourquoi, au vu des considérations de [Ehret 2008], nous avons défini la longueur et la pression à l'intérieur de la cuve afin d'obtenir une transmission de  $2 \cdot 10^{-3}$  afin de contrôler la pureté à 99,8%. Cette valeur peut être suffisante pour un émetteur DIAL afin d'atteindre les précisions relatives escomptées sur le rapport de mélange en  $\text{CO}_2$ , à condition d'utiliser un filtre interférentiel de largeur 1 GHz sur le trajet optique.

La transmission de la raie est présentée ci-après (**Fig.3. 28**). Le dispositif expérimental ne permet pas de décrire la raie à une transmission inférieure à  $9 \cdot 10^{-4}$ . Cependant ceci est convenable dans notre cas car l'on souhaite décrire la largeur spectrale à une magnitude de  $2 \cdot 10^{-3}$ . Les simulations sont effectuées à partir de la base de données HITRAN 2004.



**Fig.3. 28 :** Transmissions, théorique simulée d'après les données de HITRAN 2004, et expérimentale étalonnée à l'aide d'un étalon Fabry-Perot, de la raie R30 après traversée de la cellule multi-passages avec  $p=160$  hPa et  $L=11.65$  m

Nous observons un biais entre la courbe expérimentale et la simulation effectuée à partir des données HITRAN. Cet écart pourrait s'expliquer premièrement par une légère impureté de l'émission provenant de la DFB. Néanmoins les franges du Fabry-Pérot dans cet intervalle spectral sont bien définies et l'émission est monomode. De plus la faible largeur de raie de la diode laser (*i.e.* <10 MHz FWHM) comparée à la largeur de la raie d'absorption n'a donc pas d'influence significative sur la mesure de celle-ci. Des convolutions entre une émission laser de largeur spectrale de 10 MHz et le profil simulé par les paramètres HITRAN ne montrent pas de déformations significatives du profil d'absorption.

Les paramètres comportant une incertitude dans cette expérience sont :

- la température
- l'indice de réfraction du Fabry-Pérot

La température de la pièce est réglée à  $\pm 1^\circ\text{K}$ , tandis que l'incertitude sur l'indice de réfraction du germanium est de  $1.21 \cdot 10^{-4} \cdot \text{K}^{-1}$ .

En partant de ces considérations, l'incertitude  $\sigma(ISL)=5.9 \cdot 10^{-3} \%$

Or, l'erreur relative entre la courbe simulée et l'acquisition expérimentale s'élève jusqu'à 8% dans les ailes de la raie. De manière évidente, cette différence de profil s'explique instinctivement au regard des nouvelles valeurs spectroscopiques fournies dans le Chapitre II, la force de raie étant grandement surestimée dans la base de données HITRAN tandis que le coefficient d'élargissement est légèrement sous-estimé.

Nous pouvons d'ailleurs noter depuis cette expérience que les paramètres spectroscopiques de la raie P14 de l'isotope  $C^{13}O_2$ , semblent mal référencés dans HITRAN, la force de raie et le coefficient d'auto-élargissement semblant largement surestimés.

L'étalonnage spectral du filtre qui sera utilisé pour caractériser la pureté spectrale, nous donne donc des résultats en accord avec le profil attendu aux incertitudes des paramètres de la base de données HITRAN près. L'étalonnage nous donne une largeur du « palier » à  $T=2.10^{-3}$  égale à 820 MHz.

Le filtre Notch utilisé pour le contrôle de la pureté spectrale aura donc une largeur plus faible que spécifiée (1GHz *c.f.* **Tab.3. 4**). Ceci implique donc un resserrement des spécifications sur la mesure de pureté.

### **7.2.2. Etalonnage spectral de la raie d'absorption à l'aide d'une cellule photo-acoustique**

Afin de vérifier nos résultats, la calibration du profil d'absorption dans la cellule a été effectuée selon un autre processus expérimental. Celui-ci utilise le signal provenant d'une cuve photoacoustique afin de calibrer la transmission de la cellule.

Cette expérience est envisagée afin de s'affranchir des éventuelles incertitudes notamment sur l'épaisseur de l'étalon Fabry-Perot.

La cuve photoacoustique est remplie de  $CO_2$  pur à une pression de 300 hPa. A cette pression, le comportement de la raie d'absorption peut être proprement modélisé en utilisant une distribution Lorentzienne.

Le signal photoacoustique est donc interpolé par une courbe Lorentzienne, ce qui permet de relier directement la valeur du signal à un décalage spectral. Les données présentées sont alors corrigées de la valeur de « pressure shift » existant entre les différentes cuves (*i.e.* 160 hPa et 300 hPa).

Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure suivante (**Fig.3. 29**).

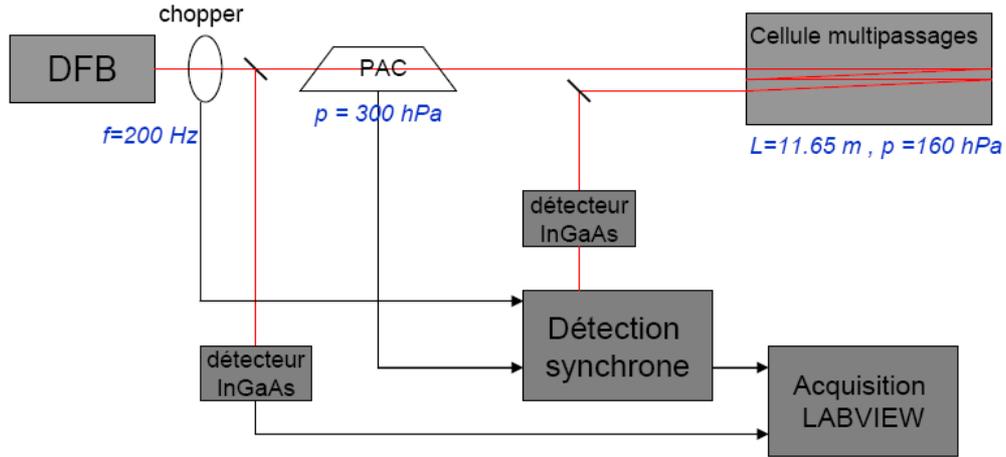


Fig.3. 29 : Schéma de l'expérience de calibration de la raie d'absorption de la cellule multipassages par signal photoacoustique

Sur la figure suivante (Fig.3. 30) est présenté l'ajustement effectué sur le signal photoacoustique. La correspondance entre le signal de PAC normalisé à sa valeur maximale et la courbe théorique nous donne l'écart spectral par rapport au centre de raie en chaque point :

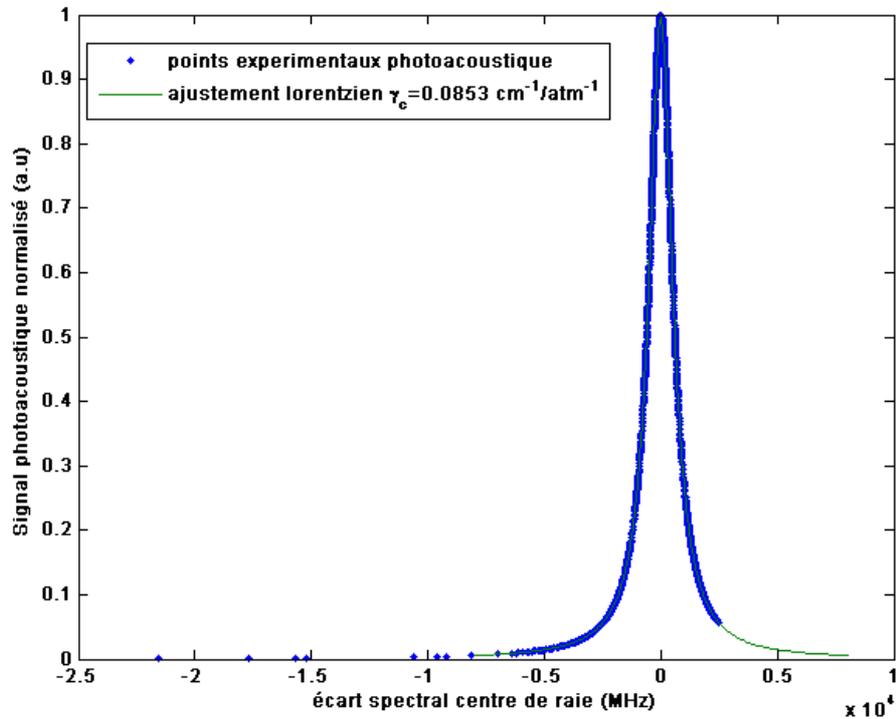


Fig.3. 30: Ajustement lorentzien du signal photoacoustique

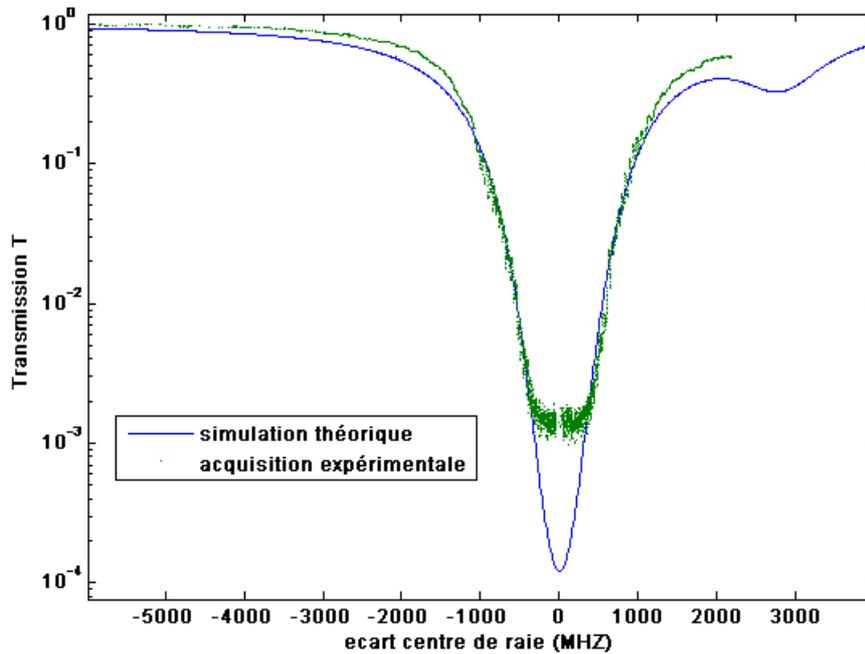


Fig.3. 31 : Transmissions expérimentale étalonnée à l'aide d'une cellule photoacoustique et simulée de la raie R 30 après traversée de la cellule multipassages

Nous observons donc les mêmes remarques que lors de la calibration avec le Fabry-Pérot.

La raie utilisée comme filtre Notch pour la mesure de la pureté spectrale de la source aura donc une largeur spectrale de 820 MHz à une magnitude de transmission de  $2.10^{-3}$ .

Cette deuxième expérience de calibration conforte donc les résultats déduits de la première, à savoir un coefficient d'élargissement plus important que celui fourni dans les tables et au final, un filtre d'une largeur de 820 MHz.

### 7.3. Contrôle de la pureté spectrale de la source DROPO

#### 7.3.1. Procédure expérimentale

Le dispositif de mesure de pureté a été couplé à l'unité de conversion de fréquence (DROPO) après intégration de l'électronique (contrôle de la stabilité spectrale).

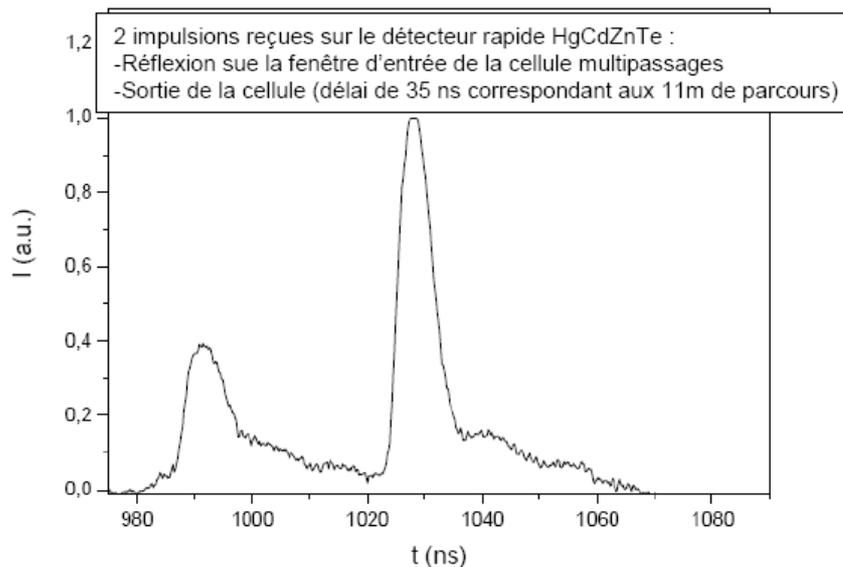
Cependant, du à des problèmes de compatibilité informatique (logiciel de contrôle), la mesure de pureté spectrale a été effectuée avec un DROPO asservi manuellement.

Un protocole expérimental a été défini afin d'effectuer cette mesure :

- L'alignement de la cellule multi-passages a été effectué en utilisant un photodétecteur en HgCdZnTe rapide mais de faible sensibilité. Celui-ci est utilisé pour vérifier que le faisceau signal provenant du DROPO est correctement injecté dans la cellule. Pour ce faire, nous

utilisons le signal réfléchi sur la fenêtre avant de la cellule comme référence temporelle. Le deuxième pic signal détecté, l'est après approximativement 35 ns (**Fig.3. 32**). Ceci correspond bien au délai temporel correspondant à un trajet de 11.65m, prouvant que le faisceau a bien été couplé dans la cellule et a parcouru le chemin optique attendu.

- Ensuite, afin d'effectuer une mesure de grande sensibilité, le détecteur précédemment utilisé est remplacé par une photodiode InGaAs, plus lente, mais beaucoup plus sensible de fréquence de coupure de 60 MHz. En utilisant ce détecteur, la discrimination temporelle des signaux réfléchis et transmis n'est plus possible. Ainsi, il faut bloquer mécaniquement la radiation réfléchie afin de ne pas perturber la mesure. Il est à noter que ce faisceau (i.e réfléchi) peut être très intense. En effet, la réflexion sur la face d'entrée est de 8% pour une fenêtre en BK7 à 2050 nm. La transmission off-line de la cellule (en ne prenant en compte que les pertes sur les miroirs) est de 6.8 % ( $T_{\text{cellule}}=0.975^{106}$ ).
- La mesure de pureté spectrale est ensuite calculée en effectuant le ratio du signal reçu par le détecteur off-line (en y incluant le facteur de transmission des densités optiques calibrées additionnelles) et du signal on-line.

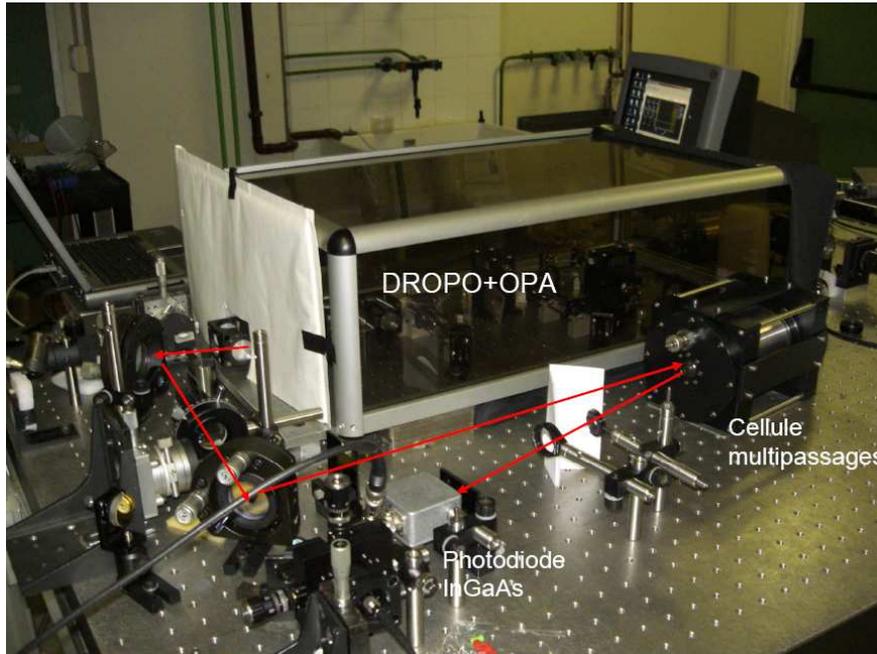


**Fig.3. 32 : Alignement de la cellule multipassages en utilisant un détecteur HgCdZnTe : le premier pulse correspond à la réflexion sur la face d'entrée et le second temporellement décalé est le pulse transmis par la cuve**

### 7.3.2. Mesure de la pureté spectrale

Les résultats de mesure de pureté spectrale de la source DROPO sont présentés sur les figures suivantes (**Fig.3. 33** et **Fig.3. 34**). Les profils temporels du signal mesurés à l'aide de la photodiode InGaAs lorsque le DROPO est accordé manuellement sur et hors de la raie d'absorption R30 sont représentés (**Fig.3. 34 gauche**) .

Durant cette expérience, la fréquence du signal est mesurée à l'aide du lambdamètre et est représentée (**Fig.3. 34 droite**).



**Fig.3. 33:** Photographie du couplage entre l'unité de conversion de fréquence et la cellule multipassages

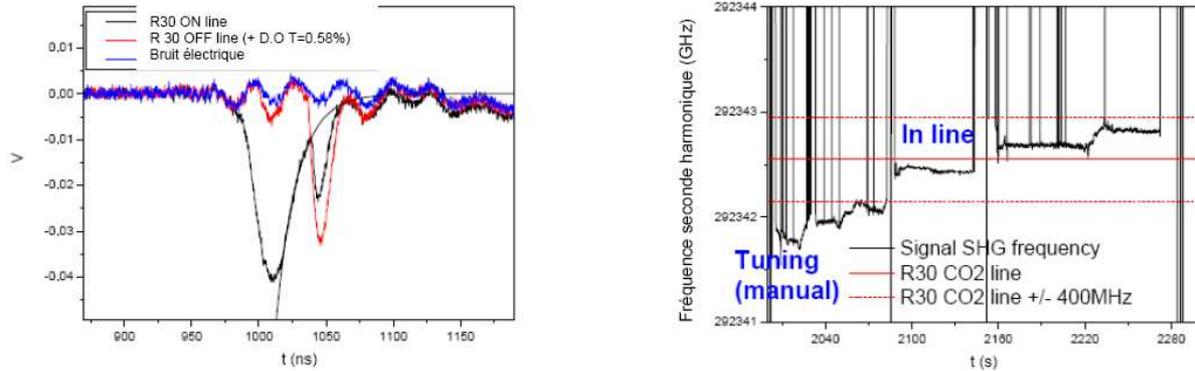
Il est à noter que, le réglage en fréquence du DROPO étant réalisé manuellement, la procédure de contrôle n'étant pas opérationnelle, il est difficile de trouver un mode émettant au centre de raie et stable temporellement. Ainsi, la mesure de pureté spectrale est difficile à réaliser à très long terme. Celle-ci est réalisée sur un intervalle de 30s soit 900 pulses. Cependant, le comportement spectral du faisceau émis, mesuré à court terme peut être extrapolé sur de plus grandes durées.

Expérimentalement, plusieurs facteurs ont rendu plus difficile la mesure de pureté :

- Un bruit électronique, présent sous forme de rebonds lors de la mesure. Ce bruit est observable lorsqu'aucun faisceau n'est dirigé à travers la cuve et est certainement dû à l'électronique du laser de pompe. Ce bruit est par la suite soustrait aux mesures.
- Lorsque nous effectuons la mesure dans la raie (on-line), et que les densités optiques sont retirées, un autre bruit apparaît. Ceci est dû à une portion du signal réfléchi sur la face d'entrée qui ne serait pas supprimé et qui est désormais mesurable à ces niveaux de détectivité (il était

auparavant éteint par les densités optiques). En effet, ceci est vérifié par le fait qu'il apparaît 35 ns avant le pic du signal provenant de la cellule.

- L'émission du DROPO est réglée manuellement. En fonctionnant ainsi l'émission monomode n'est pas garantie et certains modes parasites peuvent apparaître et perturber la mesure.



**Fig.3. 34 : Mesure de la pureté spectrale de la source : signal enregistré à la photodiode InGaAs hors de la raie d'absorption (avec densités optiques) et dans la raie (gauche) et mesure de fréquence du signal émis doublé en fréquence par le lambdamètre (le centre de raie est représenté par une ligne pleine et les pointillées représentent les limites du filtre Notch à  $\pm 400$  MHz du centre de raie) (droite)**

Nous pouvons d'ailleurs remarquer que l'émission du DROPO n'a jamais été effectuée exactement au centre de la raie d'absorption pendant cette expérience. La mesure on-line traitée ici correspond donc à une émission localisée approximativement à 80 MHz du centre de raie.

Après filtrage du bruit électronique et vérification de la stabilité de l'énergie, nous intégrons temporellement, l'énergie des signaux mesurés on-line et off-line et effectuons ainsi le rapport des puissances.

La pureté spectrale est alors mesurée supérieure à 99.8% (limite de sensibilité définie par le mode opératoire : largeur du filtre) sur l'intervalle spectral de 820 MHz.

## **8. Conclusion**

Après un bref état de l'art des sources développées dans le domaine spectral auquel nous nous intéressons pour de futures applications DIAL, nous avons en particulier présenté le développement d'une source paramétrique de puissance à 2 microns pour une future mesure DIAL directe du CO<sub>2</sub>. Le développement d'une unité de conversion de fréquence, comme une source DROPO, prend tout son intérêt dans son accordabilité et la possibilité de générer plusieurs longueurs d'onde (en pompant plusieurs OPO différents par la même pompe et en les couplant au même amplificateur). Ceci permet notamment d'envisager un sondage de plusieurs raies du même composé ou une mesure DIAL multi-espèces. Plus particulièrement, nous avons montré les conséquences importantes des propriétés spectrales sur la précision de mesure lors d'un sondage DIAL de la raie R 30.

L'architecture développée (OPO doublement résonant couplé à un OPA) est une architecture complexe. Le DROPO à cavités imbriquées, déjà mis en place pour d'autres applications à l'ONERA a été confronté à de nouveaux défis technologiques comme la mise en place d'un miroir directement déposé sur l'une des faces du cristal.

Ce développement mené à l'ONERA a permis la démonstration d'une source paramétrique présentant les caractéristiques suivantes : énergie : 12 mJ, efficacité de conversion optique-optique : 13 %, qualité de faisceau gaussien  $M^2 < 1.9$ , stabilité spectrale supérieure à 3 MHz sur 10 s et pureté spectrale supérieure à 99.8% sur intervalle de 1 GHz. Ainsi, les propriétés spécifiées pour une qualification comme source DIAL spatiale sont elles, presque atteintes. Le point crucial reste toutefois l'énergie et l'efficacité de conversion afin de bénéficier d'une source compatible avec une application spatiale. Divers points sont à améliorer pour atteindre les spécifications en termes d'énergie.

Plus particulièrement, en plus du suivi du développement de la source DROPO, je me suis intéressé à la stabilisation spectrale de celle-ci. Nous avons donc pu démontrer, qu'à de si faibles fréquences de répétition et pour une émission localisée spectralement à 3 GHz du centre de raie, la technique de spectroscopie photoacoustique utilisant une résonance de Helmholtz n'est pas envisageable. Cependant, la technique photoacoustique fournissant une référence spectrale absolue et pouvant être mise en place facilement peut être envisagée en utilisant la résonance du mode radial principal permettant d'atteindre les spécifications requise. En ce qui concerne la pureté spectrale, une procédure de mesure de celle-ci a été mise en place en utilisant un filtre Notch défini par une raie d'absorption du CO<sub>2</sub> contenu dans une cellule multipassages.

Les propriétés spectrales (instabilité  $< 1.5$  MHz sur 10 secondes atteignable avec de nouveaux PZT et pureté supérieure à 99.8% sur 1 GHz) de la source ont alors été caractérisées comme compatibles avec une mesure DIAL du CO<sub>2</sub> atmosphérique en colonne intégrée avec une erreur inférieure à 1 ppm.

## **Chapitre IV**

### **Etude de la canopée et erreurs associées sur une mesure DIAL spatiale**

Dans ce chapitre nous allons étudier la possibilité d'effectuer une mesure en contenu intégré de colonne de CO<sub>2</sub> depuis l'espace en utilisant l'écho de sol. Nous allons donc étudier de manière théorique et expérimentale les propriétés statistiques de signaux LIDAR sur cibles topographiques. En effet la canopée représente une part importante (environ 30 %) du sol terrestre. En vue d'une mesure spatiale, l'écho de sol sera utilisé pour évaluer le contenu intégré en CO<sub>2</sub> de la colonne atmosphérique. Les différentes propriétés optiques (comme la réflectivité) liée aux différents types de sol utilisés comme cibles influencent donc la nature des signaux LIDAR et éventuellement leur méthode de traitement. Nous allons plus particulièrement mettre en avant les diverses propriétés des signaux liées à des cibles topographiques (arbres) et envisager une méthode de traitement de ceux-ci.

Cette étude sera plus particulièrement menée dans le schéma de détection directe à l'aide de données aéroportées fournies par le DLR (Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt), ces vols ayant notamment survolé de nombreux types de surfaces différentes ainsi que des zones boisées mais aussi en détection hétérodyne à l'aide de mesures effectuées au LMD.

Dans un premier temps, la théorie des statistiques des signaux LIDAR introduite dans le Chapitre I est rappelée dans les deux modes de détection puis les résultats expérimentaux sont comparés à la théorie et nous permettent de conclure sur le mode de détection le plus approprié.

Nous évaluons ensuite l'influence des propriétés physiques des arbres (variation de hauteur et de réflectivité) dans une empreinte spatiale et leur implication en termes d'erreurs sur une mesure de CO<sub>2</sub> en colonne intégrée depuis l'espace.

## 1. Contexte et problème : variabilité des surfaces : sol, végétation et différentes cibles

Lors d'une mission DIAL spatiale, l'écho de sol diffère, notamment en termes de propriétés optiques pour le signal, selon le type de surface. Lors de ses révolutions, le satellite pourra effectuer un sondage de la colonne de CO<sub>2</sub> atmosphérique en utilisant l'écho de nombreux types de sol (océan, sol nu, végétation, zones urbaines...). La réflectivité de ces surfaces étant différentes, ceci influera sur l'intensité du signal réfléchi et rétrodiffusé (par l'équation (1.28)) et ainsi sur le rapport signal à bruit et la statistique. Il est donc nécessaire de posséder une calibration précise de la réflectivité des différents types de sol. Une telle mission spatiale pourrait d'ailleurs permettre la calibration de la réflectivité de ces différentes surfaces à 1.6 µm ou 2 µm selon le domaine spectral sélectionné.

Le Tableau suivant (Tab.4. 1) répertorie des valeurs de réflectance standards pour divers types de sols tirés de la base de données ASTER (Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflectance radiometer) [Baldrige 2008]. ASTER est un instrument d'imagerie de vol sur Terra, un satellite lancé en Décembre 1999 dans le cadre de la NASA Earth Observing System (EOS) qui capture des données à haute résolution spatiale dans 14 bandes, du visible à l'infrarouge thermique. Les valeurs de réflectance obtenues par le spectromètre satellite MODIS sont légèrement supérieures à celles-ci.

**Tab.4. 1 : Valeurs de réflectance standards à 1.6µm et 2µm tirées de la base de données ASTER**

Type de surface	Réflectance $\rho^*/sr^{-1}$	
	1.57 µm	2.051 µm
<i>Herbe sèche</i>	0.186	0.145
<i>Cible dure</i>	0.13	0.099
<i>Arbres feuillus</i>	0.086	0.039
<i>Herbe verte</i>	0.084	0.033
<i>Conifères</i>	0.065	0.029
<i>Asphalte</i>	0.048	0.049

En détection directe, le signal est directement lié à la réflectance ou réflectivité de la cible utilisée (plus 65 % de nuages la plupart du temps). Il apparaît alors de manière évidente que des cibles de forte réflectance favoriseront de grands rapports signal à bruit.

En plus de la réflectivité des différents sols, les différences de structures de celles-ci imposent de définir une méthode de traitement. En effet, les cibles topographiques peuvent être des cibles dures (sols nus, bâtiments), ou semi-dures (arbres). En effet en cas d'utilisation de la canopée comme cible, de multiples réflexions vont avoir lieu sur différentes feuilles. Ainsi, nous devons déterminer une méthode afin d'analyser le signal provenant de ce type de diffuseurs.

## 2. Théorie

### 2.1. Rapport signal à bruit

Nous allons nous intéresser ici à la statistique des signaux LIDAR rétrodiffusés en détection directe et en détection hétérodyne. En effet, que ce soit dans le cas de rétrodiffusion par les particules ou d'écho d'une cible, l'onde rétrodiffusée résulte de l'addition des ondes rétrodiffusées par chacun des volumes élémentaires diffusant. Ainsi la nature et la géométrie des diffuseurs influence la statistique des signaux. Dans le cas d'une cible dure homogène, il y a cohérence de l'onde lumineuse.

Cependant dans le cas de particules dans un volume diffusant, la position de chaque particule est aléatoire et il n'y pas de relation de phase entre les différentes ondes lumineuses diffusées. Nous nous trouvons dans le même cas en présence d'une cible non-homogène. Dans ce cas, la somme des ondes en un point du détecteur peut être constructive ou destructive, ce qui se traduit par des zones de cohérence distinctes sur le détecteur que l'on appelle tavelures. La somme de ces tavelures sur la surface du détecteur forme une figure nommée figure de chatoyement.

Dans le Chapitre I, nous avons établi la forme du courant provenant du détecteur dans le cas d'une détection directe (1.30) et hétérodyne (1.33).

Nous allons désormais nous attacher à décrire la statistique des signaux LIDAR dans les différents cas. Dans un premier temps, nous allons écrire le rapport signal à bruit pour les deux types de détection (directe ou hétérodyne).

#### 2.1.1 Rapport signal à bruit et CNR

Dans le cadre d'une télédétection LIDAR, nous allons considérer non pas un rapport signal à bruit (*SNR* : signal to noise ratio) mais un rapport signal à bruit en variance (*CNR* : Carrier to Noise Ratio ou rapport contraste à bruit) que nous allons écrire comme suit :

$$CNR = \frac{\langle i^2(t) \rangle}{\sum_p \langle i_b^2(t) \rangle} \quad (4.1)$$

Où  $i$  est le courant du signal et  $i_b$  est le courant de bruit  $b$ .

Le rapport signal à bruit (*SNR*) est lié au *CNR* par la relation suivante, déduite de l'équation (1.46) :

$$SNR = \sqrt{M} \left( 1 + \frac{1}{CNR} \right) \quad (4.2)$$

Avec  $M$  le nombre de tavelures.

## 2.1.2 Etablissement du CNR

### 2.1.2.1 Différentes sources de bruit

Les différentes sources de bruit affectant la mesure ne sont pas corrélées et suivent des lois mathématiques distinctes. Ces sources de bruit sont liées, soit au détecteur lui-même, soit à des processus atmosphériques.

La nature statistique du processus de génération des photo-électrons au niveau du détecteur crée un bruit quantique nommé bruit de grenaille ou « shot-noise » en anglais. Celui-ci obéit à la loi de Poisson :

$$\langle i_g^2(t) \rangle = 2eB \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) \langle P_{opt}(t) \rangle F \quad (4.3)$$

Où  $B$  est la bande passante de détection et  $F$  est le facteur de bruit.

Le bruit thermique, également appelé bruit de Johnson est dû aux fluctuations du signal électronique produit par l'agitation thermique des porteurs de charge dans le détecteur :

$$\langle i_T^2(t) \rangle = \frac{4kT}{R_C} B \quad (4.3)$$

Où  $T$  est la température et  $R_C$  la résistance de charge du détecteur.

Le bruit radiométrique ou bruit de fond de ciel est le signal généré par la luminance atmosphérique dû au rayonnement solaire diffusé et absorbé par les constituants atmosphériques. Il est aussi décrit par une loi de Poisson :

$$\langle i_r^2(t) \rangle = 2eB \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) \langle P_r(t) \rangle F \quad (4.4)$$

De manière générale, un photodétecteur est caractérisé par sa puissance équivalente de bruit (NEP : Noise Equivalent Power en anglais) ( $\text{W.Hz}^{-1/2}$ ).

En absence de tout courant lumineux, il délivre un courant minimum fluctuant autour d'une valeur moyenne que l'on appelle courant d'obscurité dont la puissance est :

$$\langle i_{obs}^2(t) \rangle = 2eB \frac{e}{2} \left( \frac{\eta \cdot NEP}{h\nu} \right)^2 \quad (4.5)$$

### 2.1.2.2 Détection directe

Dans le cadre d'une détection directe, le bruit pour un seul tir et une seule porte de mesure est donné par la somme des différentes contributions de bruit énoncées ci-dessus :

$$\langle i_b^2(t) \rangle = 2eB \left[ \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) \langle P_D(t) \rangle + \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) \langle P_r(t) \rangle + \frac{e}{2F} \left( \frac{\eta \cdot NEP}{h\nu} \right)^2 \right] F \quad (4.6)$$

En considérant le bruit de Johnson comme négligeable :

$$\langle i_b^2(t) \rangle = F \left( \frac{e}{\delta \alpha_R} \right)^2 (N + N_B) \quad (4.7)$$

Où  $N = \frac{\eta \langle P_D(t) \rangle}{2h\nu B}$  est le nombre de photoélectrons signal rétrodiffusé dans la porte de mesure

$$\delta \alpha_R = 1/2B$$

$N_B = \left[ \frac{\langle P_r(t) \rangle}{\eta h\nu} + \frac{1}{2F} \left( \frac{NEP}{h\nu} \right)^2 \right] \delta \alpha_R$  est le nombre de photoélectrons généralisé prenant en compte les

photons issus du fond de ciel et du courant d'obscurité.

Nous obtenons :

$$\langle i_D^2(t) \rangle = \left( \frac{eN}{\delta \alpha_R} \right)^2 \quad (4.8)$$

Et vient alors la formule du CNR en détection directe :

$$CNR = \frac{\langle i_D^2(t) \rangle}{\langle i_B^2(t) \rangle} = \frac{1}{F} \frac{N}{(1 + N_B/N)} \quad (4.9)$$

### 2.1.2.3 Détection hétérodyne

Les sources de bruit intervenant en détection hétérodyne sont les mêmes qu'en détection directe, à ceci près que le bruit de grenaille de l'oscillateur local vient s'ajouter à ceux-ci.

$$\langle i_b^2(t) \rangle = 2eB_H \left[ \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) (\langle P_H(t) \rangle + \langle P_r(t) \rangle + P_{OL}) + \frac{e}{2F} \left( \frac{\eta \cdot NEP}{h\nu} \right)^2 \right] F \quad (4.10)$$

Où  $B_H$  est la bande passante hétérodyne (*i.e.* largeur spectrale d'analyse du signal)

Ainsi, pour obtenir un fonctionnement optimal en détection hétérodyne, nous choisirons une puissance d'OL telle que le bruit de grenaille de l'OL soit prépondérant par rapport aux autres sources de bruit [Oh 1996] :

$$\langle i_b^2(t) \rangle = 2eB_H F \left( \frac{\eta e}{h\nu} \right) P_{OL} \quad (4.11)$$

Dans une porte de largeur temporelle  $\delta t_r$ , nous observons plusieurs tavelures temporelles de largeur  $\delta t_c$  qui correspondent à la largeur fréquentielle de l'impulsion émise. La bande passante  $B_H$  est supposée égale à la bande passante de l'impulsion émise.

Le CNR est alors donné par :

$$CNR = \frac{\langle i_H^2(t) \rangle}{\langle i_b^2(t) \rangle} = \frac{\gamma_H \eta \langle P_R(t) \rangle}{h\nu F} \delta t_c \quad (4.12)$$

Avec un nombre de tavelures temporelles  $M_t$  dans la porte :

$$CNR = \frac{\langle i_H^2(t) \rangle}{\langle i_b^2(t) \rangle} = \frac{1}{F} \frac{N}{M_t} \quad (4.13)$$

Avec  $N = \frac{\gamma_H \eta \langle P_R(t) \rangle}{h\nu} \delta t_r$ , le nombre de photoélectrons dans une porte de mesure.

## 2.2. Statistique du signal rétrodiffusé

Un élément essentiel du traitement de signaux LIDAR résulte dans la statistique du signal rétrodiffusé lors d'une mesure. Cette statistique est liée à la cohérence des signaux rétrodiffusés, d'un point de vue spatial, et d'un point de vue temporel.

### 2.2.1. Statistique spatiale

Intéressons nous dans un premier temps au comportement spatial.

En considérant le détecteur comme un élément ponctuel, l'onde électromagnétique arrivant en ce point est la résultante de l'addition d'un grand nombre d'ondes rétrodiffusées de manière incohérente. En effet, la nature des différents diffuseurs atmosphériques le long du trajet optique joue sur la cohérence des signaux rétrodiffusés.

Le champ électrique en un point du détecteur peut donc être représenté dans le plan complexe comme une somme de variables complexes aléatoires. Ceci résulte donc dans le plan du détecteur en une présence de tâches lumineuses, appelées tavelures spatiales ou « speckles » dont la taille est régie par la cohérence de l'onde.

La densité de probabilité associée à un champ électrique en un point du détecteur est régie par une loi gaussienne. La puissance optique étant proportionnelle au module du carré du champ, alors celle-ci obéit de même à une loi en exponentielle négative et alors :

$$P\left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) = \exp\left(-\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) \quad (4.14)$$

A l'intérieur d'une même tavelure, la puissance optique est corrélée.

Si nous considérons la somme de toutes ces tavelures spatiales  $M_S$  et leur intégration spatiale comme la surface totale du détecteur, alors la somme des puissances intégrées sur chacune de ces surfaces est égale à la puissance intégrée sur le détecteur. La statistique qui en résulte [Goodman 1985] correspond à la convolution de  $M_S$  lois exponentielles négatives :

$$P\left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) = \frac{M_S^{M_S}}{\Gamma(M_S)} \left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right)^{M_S-1} \exp\left(-M_S \frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) \quad (4.15)$$

Les tavelures spatiales  $M_S$  sont dues soit à la diffusion des ondes d'un faisceau de lumière cohérent spatialement, par une cible présentant des irrégularités à l'échelle de la longueur d'onde, soit à la propagation d'un faisceau cohérent dans une atmosphère caractérisée par des variations aléatoires d'indice de réfraction. Dans le cas d'une mesure DIAL, ces figures sont donc dues à l'architecture optique du système, au type de surface, ainsi qu'à la turbulence atmosphérique.

Le nombre de tavelures spatiales minimales attendues dans le cas d'un écho provenant d'une cible dure se déduit à partir de la formule suivante [Dabas 1994] :

$$M_S = 1 + \frac{r_t^2}{r_c^2} \quad (4.16)$$

Avec  $r_t$  : rayon du télescope et  $r_c$  : rayon de cohérence des cellules de cohérences induites par les effets atmosphériques (turbulence d'indice)

### 2.2.2. Statistique temporelle

Lorsque nous intégrons la puissance rétrodiffusée sur une porte temporelle, c'est la même loi statistique qui prévaut, si cette porte temporelle est supérieure au temps de cohérence de l'impulsion lumineuse. Dans ce cas nous observons un nombre  $M_T$  de tavelures temporelles qui répondent à la même densité de probabilité que les tavelures spatiales :

$$P\left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) = \frac{M_T^{M_T}}{\Gamma(M_T)} \left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right)^{M_T-1} \exp\left(-M_T \frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) \quad (4.17)$$

Ainsi, nous pouvons réécrire, de manière générale :

$$P\left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right)^{M-1} \exp\left(-M \frac{P_{opt}}{P_{opt}}\right) \quad (4.18)$$

Avec  $M$  le nombre de degrés de liberté  $M=M_T M_S$

### 2.2.3. Différents modes de détection

#### 2.2.3.1. Détection directe

Dans le cadre d'une détection directe, il y a proportionnalité entre le courant  $i_D(t)$  et la puissance optique rétrodiffusée intégrée sur la surface du détecteur. Ainsi, le courant obéit à la même loi statistique que la puissance :

$$P\left(\frac{i_D}{\bar{i}_D}\right) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{i_D}{\bar{i}_D}\right)^{M-1} \exp\left(-M \frac{i_D}{\bar{i}_D}\right) \quad (4.19)$$

La loi de probabilité du courant direct est donc une loi en exponentielle négative dans le cas où une seule tavelure serait présente. En cas de multiplication du nombre de tavelures, celle-ci tend vers un comportement en loi lognormale, puis vers une loi gaussienne de plus en plus étroite autour de sa valeur moyenne lorsque  $M$  augmente encore.

Nous pouvons encore exprimer la fonction de densité de probabilité du nombre de photoélectrons  $K$ , détectés dans une porte de mesure :

$$P(K) = \frac{\Gamma(K+M)}{\Gamma(K+1)\Gamma(M)} \left(1 + \frac{M}{\bar{K}}\right)^{-K} \left(1 + \frac{\bar{K}}{M}\right)^{-M} \quad (4.20)$$

En détection directe, dans l'approximation d'un signal gaussien et d'une porte d'analyse carrée, nous obtenons alors [Salamitou 1994] :

$$M_T = \sqrt{1 + \left(\frac{\sigma_R}{\tau_c}\right)^2} \quad (4.21)$$

Avec  $\tau_c$  le temps de cohérence de l'impulsion.

Dans le cas d'un écho provenant d'une cible dure, le nombre de tavelures temporelles  $M_T$  est toujours égal à 1. D'après l'équation (4.20), la PDF en détection directe a un écart type :

$$\sigma(\bar{K}) = \sqrt{\bar{K} \left(1 + \frac{\bar{K}}{M}\right)} \quad (4.22)$$

En introduisant  $N$  et  $N_B$  le nombre de photoélectrons en détection directe issus du signal rétrodiffusé et du bruit, l'écart type (4.7) sur le nombre de photoélectrons est donné par :

$$\sigma(N) = \sqrt{(N + N_B)F + \frac{N^2}{M}} \quad (4.23)$$

L'erreur relative sur une mesure de puissance en détection directe est alors :

$$\frac{\sigma(P)}{P} = SNR^{-1} = \sqrt{\frac{N/M + [1 + N_B/N]F}{N}} \quad (4.24)$$

### 2.2.3.2. Détection hétérodyne

En détection hétérodyne, la moyenne du carré du courant hétérodyne  $i_H^2$  à l'instant  $t$  est donnée par le mélange des ondelettes du signal rétrodiffusé avec l'OL intégré sur la surface du détecteur.

$$i_H^2 \propto \left| \int_D E(r) E_{OL}(r) dr \right|^2 \quad (4.25)$$

Le champ électrique suit une loi de probabilité gaussienne.  $i_H^2$  est donc le module au carré d'une variable gaussienne et suit par conséquent une loi de probabilité en exponentielle négative.

$$P\left(\frac{i_H^2}{i_H^2}\right) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{i_H^2}{i_H^2}\right)^{M-1} \exp\left(-M \frac{i_H^2}{i_H^2}\right) \quad (4.26)$$

Un point crucial à mettre en avant est le fait que, dans le cadre d'une détection hétérodyne, il n'y a par principe qu'une tavelure spatiale (la statistique ne dépend donc pas du nombre de tavelures spatiales). Seul le nombre de tavelures temporelles est critique pour la statistique.

Le nombre de tavelures spatiales apparaît néanmoins dans la valeur du rendement hétérodyne (ce qui se comprend aisément par l'influence du nombre de ces tavelures sur la qualité du mélange optique) et influence donc la valeur de  $i_H^2$ .

Le nombre de tavelures temporelles a été explicité par la formule (4.21) dans le paragraphe précédent. Le nombre de tavelures temporelles est donc directement lié au choix de la durée de la porte de mesure. Cependant, nous devons garder à l'esprit que le temps de cohérence du signal est toujours inférieur au temps de cohérence de l'impulsion. En effet, lors de la propagation dans l'atmosphère, l'influence de la turbulence atmosphérique diminue le temps de cohérence de l'onde lumineuse (*cf.* § 2.2.4).

De plus, dans le cas d'une cible dure, la statistique est en exponentielle négative, quelle que soit la durée de la porte de mesure.

En introduisant le nombre de photoélectrons issus du signal hétérodyne rétrodiffusé et en considérant le bruit de grenaille de l'oscillateur local comme prépondérant, l'écart type sur une mesure du nombre de photoélectrons est [Rye 1997] :

$$\frac{\sigma(P)}{P} = SNR^{-1} = \frac{1}{\sqrt{M}} \left(1 + \frac{1}{CNR}\right) = \frac{1}{\sqrt{M}} \left(1 + \frac{M_T}{N}\right) \quad (4.27)$$

#### 2.2.4. Effets de la turbulence d'indice de réfraction

Comme énoncé ci-haut, la turbulence d'indice de réfraction induit des effets additionnels concernant la statistique du signal. En effet ces turbulences localisées de l'indice de réfraction de l'air agissent comme des lentilles, en introduisant localement des retards de phase qui focalisent et défocalisent le faisceau au cours de sa propagation. Plus particulièrement, ces turbulences déforment le front d'onde et élargissent en moyenne le faisceau incident.

L'ampleur de l'élargissement du faisceau est reliée au rayon de cohérence transverse  $\rho_0$  de l'atmosphère. La formule le déterminant, en supposant une turbulence homogène le long du trajet optique  $L$ , s'écrit [Goodman 1975] :

$$\rho_0 = (0.42.k^2 C_n^2 L)^{\frac{3}{5}} \quad (4.28)$$

Avec  $k$  le vecteur d'onde et  $C_n$  le coefficient de structure de l'atmosphère

Le coefficient de structure de l'atmosphère caractérise l'intensité de la turbulence engendrant les fluctuations de température, de pression ou d'humidité causant le changement d'indice de réfraction.

Ce paramètre est défini comme :

$$C_n^2 = \frac{\overline{(n_1 - n_2)^2}}{L^{2/3}} \quad (4.29)$$

Où  $n_1$  et  $n_2$  sont les valeurs de l'indice de réfraction de l'air à deux points de mesure séparés par une distance  $L$ .

Nous voyons alors bien que la turbulence d'indice contribue à diminuer la cohérence spatiale de l'impulsion lumineuse.

La variance des signaux peut être comprise comme la somme de quatre contributions en analysant l'équation (1.28) : l'une liée aux variations d'intensité de l'impulsion émise par la source laser ( $\sigma_{laser}$ ), l'une liée aux variations de concentration atmosphérique et donc à la transmission effective le long du trajet optique ( $\sigma_{atmos}$ ).

Une autre contribution est celle de la variation de cellules de cohérence ( $\sigma_{speckle}$ ) et peut être liée notamment à la turbulence atmosphérique. Enfin la dernière contribution est liée à la réflectivité de la cible et est celle que nous étudierons en particulier ici ( $\sigma_\rho$ ).

En considérant contributions non-corrélées, nous pouvons écrire pour une série temporelle LIDAR, notée  $x$  :

$$\sigma_p^2(x) = \sigma_{laser}^2(x) + \sigma_{atmos}^2(x) + \sigma_{speckle}^2(x) + \sigma_\rho^2(x) \quad (4.30)$$

### 2.3. Corrélation des signaux – erreur sur une mesure DIAL

L'erreur statistique d'une mesure d'épaisseur optique sur une mesure d'épaisseur optique différentielle d'après les équations pour une mesure effectuée avec un nombre de tirs ON-OFF [Pelon 1985] :

$$\frac{\sigma(\tau)}{\tau} = \frac{1}{2\tau} \left[ \frac{\sigma^2(\langle P_{i,j} \rangle)}{\langle P_{i,j} \rangle^2} + 2 \sum_{\substack{i \neq k \\ j \neq l}} (-1)^{i+j} (-1)^{k+l} \rho(\langle P_{ij} \rangle, \langle P_{kl} \rangle) \frac{\sigma(\langle P_{ij} \rangle)}{\langle P_{ij} \rangle} \frac{\sigma(\langle P_{kl} \rangle)}{\langle P_{kl} \rangle} \right]^{1/2} \quad (4.31)$$

Où  $\langle P_{i,j} \rangle$  est la moyenne de la puissance rétrodiffusée sur les  $M_p$  paires de tirs dans une porte de mesure et  $\sigma(\langle P_{i,j} \rangle)$  l'écart type sur la mesure de puissance pour  $i, j = 1, 2$  et  $\lambda_1 = \lambda_{ON}$  et  $\lambda_2 = \lambda_{OFF}$  et  $R_1 = R - \delta R$  et  $R_2 = R$ .

$\rho(\langle P_{ij} \rangle, \langle P_{kl} \rangle)$  désigne le coefficient de corrélation entre  $\langle P_{ij} \rangle$  et  $\langle P_{kl} \rangle$  et s'écrit :

$$\rho(\langle P_{ij} \rangle, \langle P_{kl} \rangle) = \frac{\text{cov}(\langle P_{ij} \rangle, \langle P_{kl} \rangle)}{\sigma(\langle P_{ij} \rangle) \sigma(\langle P_{kl} \rangle)} \quad (4.32)$$

Dans le cas d'une mesure d'épaisseur optique intégrée, nous pouvons obtenir une forme simplifiée de l'équation (4.31).

$$\frac{\sigma(\tau)}{\tau} = \frac{1}{2\tau} \sqrt{\frac{\sigma^2(\langle P_{OFF} \rangle) + \sigma^2(\langle P_{ON} \rangle)}{(\langle P_{OFF} \rangle)^2 + (\langle P_{ON} \rangle)^2} - 2 \rho(\langle P_{ON} \rangle, \langle P_{OFF} \rangle) \frac{\sigma(\langle P_{ON} \rangle) \sigma(\langle P_{OFF} \rangle)}{\langle P_{ON} \rangle \langle P_{OFF} \rangle}} \quad (4.33)$$

Nous pouvons alors écrire l'écart type sur une mesure de puissance effectuée avec un nombre de  $M_p$  dans une porte de mesure :

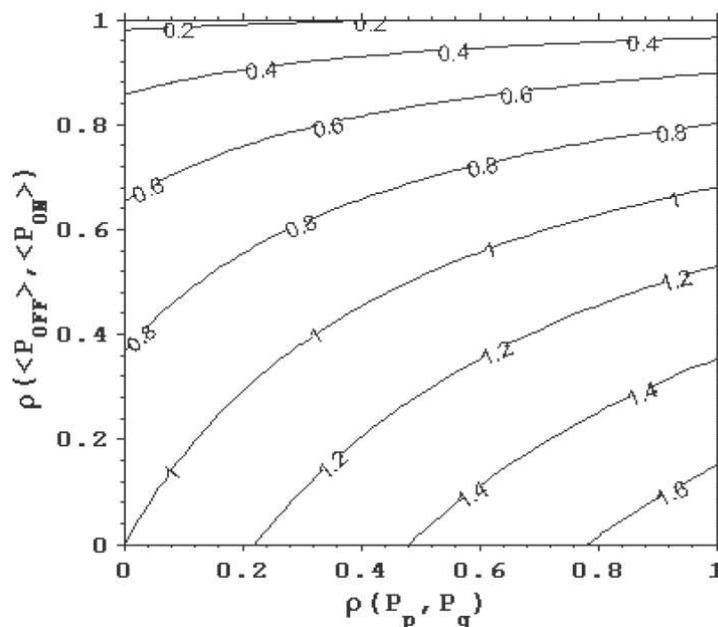
$$\sigma^2(\langle P \rangle) = \frac{\sum_{p=1}^{M_p} \sigma^2(P_p) + 2 \sum_{p=1}^{M_p-1} \sum_{q>p}^{M_p} \rho(P_p, P_q) \sigma(P_p) \sigma(P_q)}{M_p^2} \quad (4.34)$$

Nous voyons alors que l'influence de la corrélation des signaux tient compte de l'influence de deux termes différents : d'une part la corrélation des puissances ON et OFF  $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$  rétrodiffusés par une même cible par exemple, et de l'autre part la corrélation tir à tir  $\rho(P_p, P_q)$  lié à la structure de l'atmosphère et de la cible.

Dans le cas de signaux corrélés, nous déduisons de l'équation (4.33), une réduction de l'erreur DIAL en comparaison de signaux non-corrélés [Menyuk 1981]. Cependant, cette corrélation induit une augmentation de l'erreur statistique sur une mesure de puissance (équation (4.34)) qui ne décroît plus en  $\sqrt{M_p}$  comme pour le cas de signaux totalement décorrélés.

L'erreur statistique sur une mesure DIAL de contenu intégré est donc liée aux corrélations tir à tir à une même longueur d'onde ainsi qu'à une corrélation de puissance entre les différentes longueurs d'onde ON et OFF.

L'erreur statistique  $\sigma(\tau)/\tau$  sur une mesure d'épaisseur optique en fonction de ces deux quantités a été étudiée dans [Gibert 2005] et est représentée sur la figure suivante (**Fig.4. 1**), en valeur relative par rapport à la valeur des coefficients de corrélation. La valeur de la référence  $\sigma(\tau)/\tau = 1$  sur la figure suivante est prise pour des coefficients de corrélation nuls, à savoir  $\rho(P_p, P_q) = 0$  et  $\rho(P_{ON}, P_{OFF}) = 0$ .



**Fig.4. 1 :** Erreur statistique relative sur une mesure relative de l'épaisseur optique  $\sigma(\tau)/\tau$  en fonction de la corrélation des signaux tir à tir  $\rho(P_p, P_q)$  et de la corrélation entre les puissances ON et OFF  $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$  tiré de [Gibert 2005]

### **3. Etude expérimentale de cibles topographiques**

Ici, nous allons étudier expérimentalement les distributions statistiques sur différents types de cibles. L'intérêt de cette étude réside surtout dans l'analyse de signaux provenant de cibles diffuses et plus particulièrement de cibles topographiques végétales comme les arbres. En effet, pour une mesure spatiale, en l'absence de végétation, nous pouvons utiliser le signal provenant de l'écho de sol qui est une cible dure. Nous devons alors évaluer comment traiter le signal provenant de la canopée.

Nous allons effectuer cette étude en s'appuyant sur des mesures expérimentales réalisées au LMD avec le système HDIAL existant fonctionnant à 2.06  $\mu\text{m}$  [Gibert 2005] et à partir des données aéroportées du DLR à OPO en détection directe à 1.6  $\mu\text{m}$  [Amediek 2008].

#### **3.1. Détection directe**

Les signaux en détection directe sont étudiés à partir de données aéroportées réalisées par le DLR. Ces mesures sont effectuées par un système à 1.6  $\mu\text{m}$ . L'émetteur laser est un OPO émettant à une fréquence de répétition de 5 Hz et émettant des impulsions de durée de 5 ns (FWHM).

Du fait de la bande passante du détecteur qui est égale à 4 MHz, le signal provenant d'une cible dure aura pour durée 80 ns (FWHM).

Ces mesures sont effectuées à l'aide de ce système LIDAR aéroporté, volant à une altitude moyenne de 2 km.

##### **3.1.1 Analyse de la statistique des signaux des différentes cibles**

Dans le cas de la détection directe, les figures de speckle sont dépendantes, et du nombre de tavelures temporelles, et du nombre de tavelures spatiales.

Estimons tout d'abord le nombre minimal de tavelures spatiales attendues à partir de l'équation (4.16). Le rayon des cellules de cohérence transverses est donné par la relation suivante (4.35) et est égale à la distance entre deux maxima (ou deux minima) créés par les interférences. La différence des différences de marche des rayons lumineux provenant du centre et de la circonférence de la surface diffusante doit donc être égale à  $\lambda/4$  et nous obtenons :

$$r_c = \frac{\lambda R}{4r_d} \quad (4.35)$$

Avec  $r_c$  : rayon de cohérence des cellules de speckle,  $r_d$  : rayon de la surface diffusante et  $R$  : la distance de propagation de la cible au détecteur.

En prenant  $R = 2000$  m, altitude moyenne de vol de l'avion et  $r_d = 3.5$  m, rayon moyen de l'empreinte spatiale au sol, nous obtenons alors :  $r_c = 2.24.10^{-4}$  m.

Dans le cas du système aéroporté du DLR, le télescope ayant un rayon de 7 cm, nous trouvons alors :

$$M_S \sim 97650$$

La configuration du système engendre donc un nombre de tavelures spatiales  $M_S$  très important. En présence d'aucun autre facteur affectant la variabilité du signal, la variance normalisée de celui-ci sera donc très faible et la distribution des puissances rétrodiffusées sera donc très resserrée autour de sa valeur moyenne.

L'avion effectuant les mesures en évoluant à une altitude constante et les portions de sol étudiées provenant de la même acquisition, nous considérons les variances liés à la turbulence atmosphérique ou aux variations instrumentales négligeables. Ainsi les différences de variance observées seront considérées uniquement liées à la structure de la cible. Cependant, plus que la structure géométrique de la cible (porosité, rugosité...) c'est la couleur de celle-ci qui joue plus principalement sur la valeur de réflectance. En effet, le nombre de tavelures créées par la configuration de l'instrument étant constante (i.e. 97650), d'après l'équation (4.16), toute variabilité supplémentaire dans la distribution statistique du signal sera due à la contribution de la variation de réflectivité de la cible.

Dans un premier temps, nous évaluons la statistique des signaux réfléchis en traçant la variance normalisée du signal réfléchi pour divers types de surface. Ces variances sont estimées selon deux méthodes de traitement dans le domaine temporel : en ne conservant que le maximum du pic de réflexion du signal puis en l'estimant dans une porte temporelle de largeur  $\sigma$ .

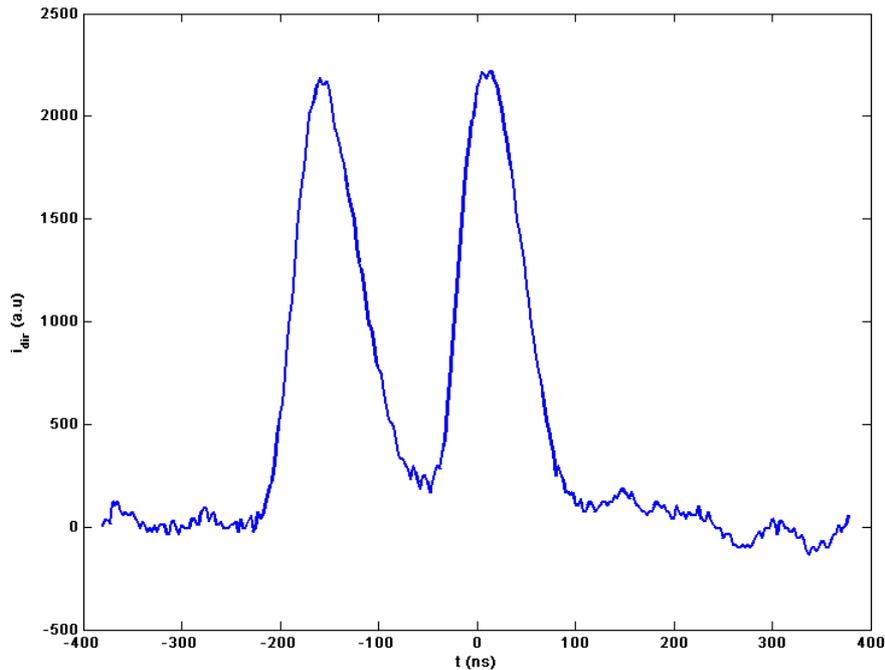
Nous allons étudier ces propriétés statistiques pour divers types de cibles topographiques : une portion de route, une étendue d'herbe et des zones boisées (mesure sur arbres).

Les signaux analysés dans cette étude sont composés de 300 points distribués autour de la valeur maximale du signal.

Ainsi, nous ne possédons pas de référence concernant la distance de la cible réfléchissante. Ceci est effectué pour des raisons de stockage de données.

Analysons alors le signal temporel provenant d'un arbre ayant été utilisé comme cible lors de tirs verticaux aéroportés sur la canopée (**Fig.4. 2**).

Nous pouvons alors voir ici deux signaux réfléchis à deux altitudes différentes et d'amplitudes quasi-identiques et de largeur à mi-hauteur de 80 ns. La référence temporelle est centrée sur le maximum du signal.



**Fig.4. 2 : Exemple de signal direct réfléchi sur arbres**

L'incertitude en distance est ici faible du fait de la faible durée de l'impulsion. Pour une impulsion de 8 ns, la résolution spatiale est alors de 1.2 m, suffisant pour discriminer la contribution de diverses couches de diffuseurs.

Comme dit précédemment, le manque de référence absolue en distance implique qu'il n'est pas possible, lorsque plusieurs pics de réflexion sont détectés, de déterminer de quelle cible le signal provient (à quelle altitude s'est effectuée la réflexion). Dans le cas, par exemple, de tirs sur arbres, nous ne pouvons savoir si le diffuseur est la cime de l'arbre, une couche de feuilles de hauteur moyenne ou bien alors le sol.

Ainsi pour étudier la statistique du signal diffusé par les arbres, nous ne traitons que les cas où plusieurs pics de réflexion sont détectés et nous effectuons la statistique sur le premier d'entre eux à partir d'une analyse tir à tir.

Le nombre de cellules de cohérence ou cellules de speckle est défini tel que :

$$M = \frac{1}{\sigma_N^2} \quad (4.36)$$

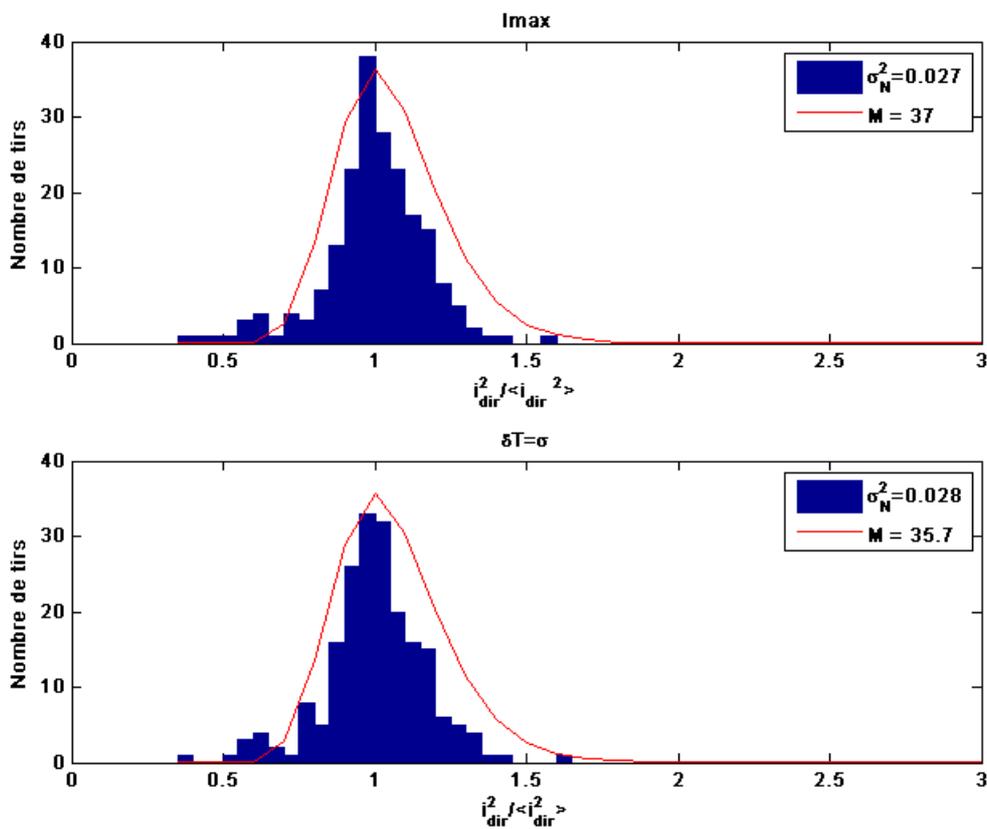
$\sigma_N^2$  étant la variance normalisée des puissances rétrodiffusées sur une série de  $N$  tirs. Ainsi, pour une seule tavelure le comportement attendu est une distribution en exponentielle négative, puis, le nombre de tavelures augmentant, cette distribution se rapproche d'une loi log-normale, puis d'une loi gaussienne centrée autour de la valeur moyenne (cf. équation (4.19)).

Pour chaque cas étudié, nous traçons l’histogramme de la variance normalisée :

$$\sigma_N^2 = \frac{\sigma^2(I)}{\langle I \rangle^2} \quad (4.37)$$

Sur chaque graphique, nous représentons aussi la fonction gamma correspondant au nombre de tavelures déterminé par la variance normalisée de la série. Nous nommerons cette quantité nombre de tavelures effectives car la variance normalisée prend en compte la variance liée au nombre de tavelures mais aussi celle liée aux variations de réflectivité. Ainsi nous vérifions la correspondance des deux.

Dans un premier temps, nous représentons la distribution des intensités réfléchies dans le cas d’une mesure sur une portion de route (**Fig.4. 3**).



**Fig.4. 3 : Distribution des intensités sur une portion de route.  $N = 200$  tirs**

Puis nous effectuons la même statistique sur une étendue d’herbe sèche dont l’histogramme est présenté sur la figure suivante (**Fig.4. 4**).

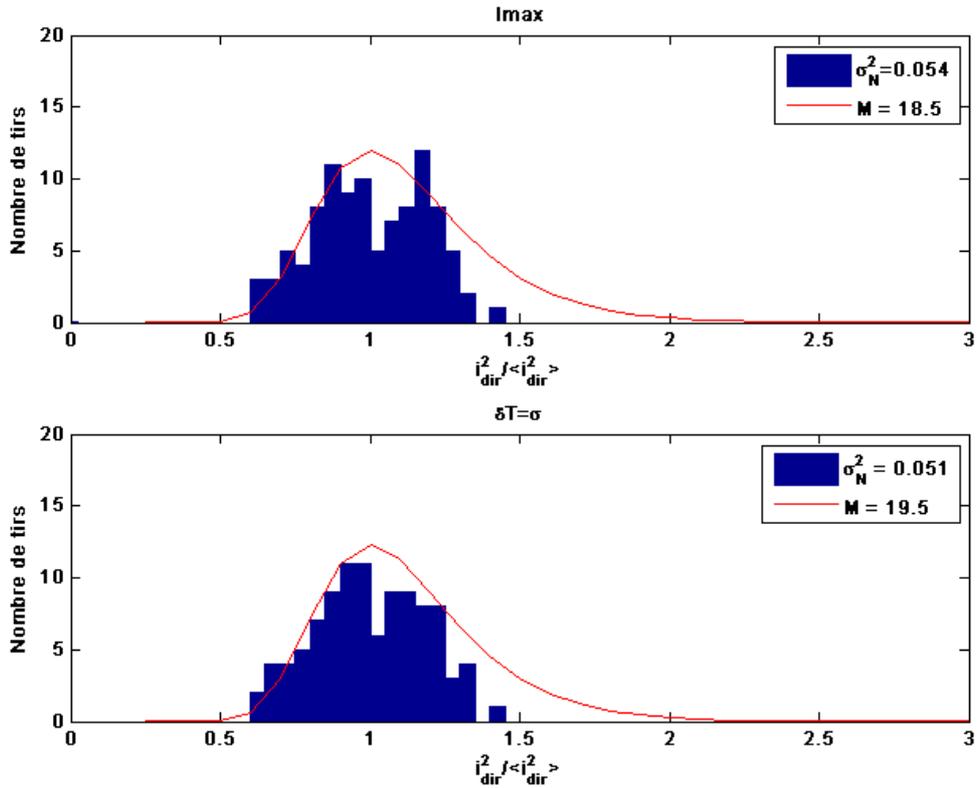


Fig.4. 4: Distribution des intensités sur herbe sèche  $N = 120$  tirs

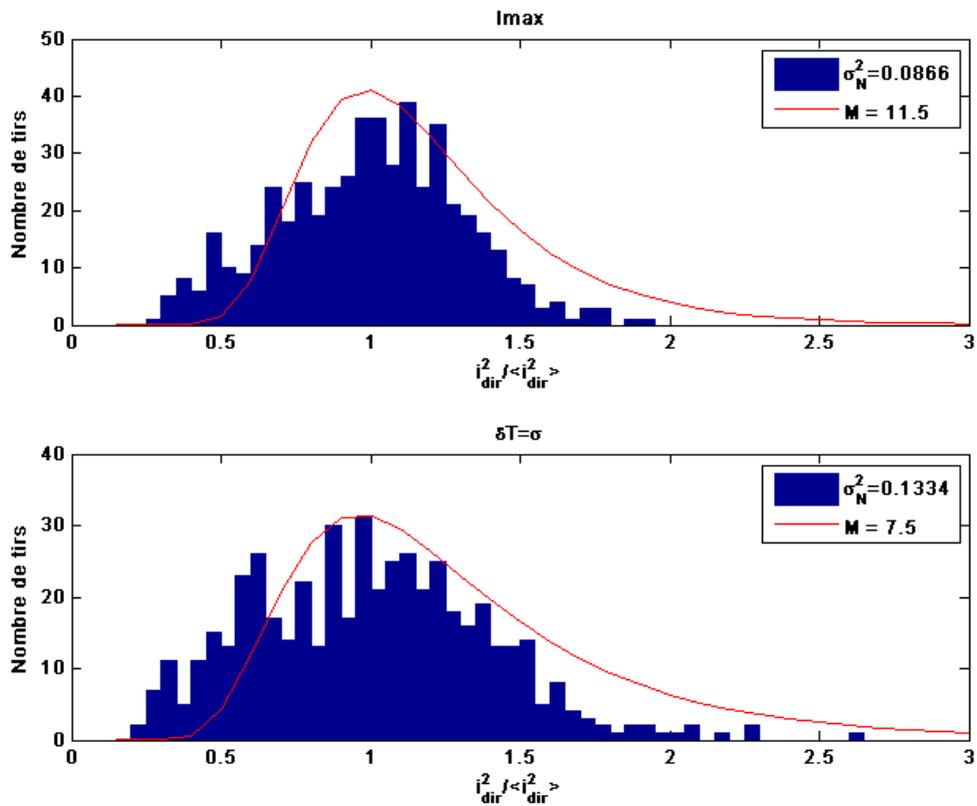


Fig.4. 5 : Distribution des intensités des signaux sur arbres ( $N=500$  tirs)

Nous présentons enfin les statistiques obtenues dans le cas d'acquisition sur les arbres (**Fig.4. 5**).

Analysons désormais la statistique de puissance obtenue dans le cas d'une portion de route. Les variances normalisées observées sont de l'ordre de 0.02. Nous obtenons alors un nombre de cellules de speckles de 50. Nous obtenons alors un grand nombre de tavelures (en comparaison aux autres types de surface) et une statistique favorable, cependant le nombre de tavelures effectives est très largement inférieure au nombre de tavelures attendues (i.e  $\sim 10^5$ ), montrant la contribution de la variabilité de la réflectivité de la cible.

Dans le cas d'un écho provenant d'une surface plane composée d'herbe, nous obtenons un nombre de cellules moins important avec une variance proche de 0.05 ce qui représente un nombre de tavelures d'approximativement 20.

Dans le cas des arbres, en effectuant la statistique sur le maximum seul du signal, alors la variance est autour de 0.1 selon les séries temporelles.

Lorsque nous étudions la puissance du signal réfléchi dans une porte de  $1\sigma$ , alors la variance est proche de 0.12 et de la limite inférieure en nombre de tavelures à savoir 1.5.

Cependant lorsque nous traitons le signal sur une porte de  $1\sigma$ , nous prenons parfois en compte la contribution de pics adjacents liés à une réflexion sur une couche inférieure du feuillage. La statistique effectuée sur le maximum seul du signal paraît donc plus adéquate et réaliste.

Le tableau suivant (**Tab.4. 2**) récapitule les résultats obtenus en termes de variance normalisée et de nombre de tavelures. Le  $\langle RSB \rangle$  est aussi évalué.

**Tab.4. 2 : Rapport signal à bruit, variance normalisée et nombre de tavelures pour les différents types de surface étudiées**

<i>Surface</i>	$\rho^*$	$\langle RSB \rangle$	$\sigma^2$	<i>M</i>
<i>Route</i>	0.048	180	0.02	50
<i>Herbe sèche</i>	0.084	340	0.05	20
<i>Arbres</i>	0.086	330	0.12	8.5

Le rapport signal à bruit en détection directe semble alors très largement directement influencé par la valeur de réflectivité naturelle de la cible, plutôt que par le nombre de tavelures. Une haute valeur de réflectivité naturelle conduira un RSB important.

Dans le cas particulier des arbres, une variance normalisée de 0.1 est obtenue. Ainsi, ils peuvent être considérés comme une cible diffuse et la statistique sur les arbres sera moins favorable que sur d'autres cibles topographiques.

Cependant, dans le cas d'une détection directe, la statistique des signaux est toujours favorable de par la création de tavelures spatiales sur le détecteur par les effets de la turbulence atmosphérique. Ainsi dans ce mode de détection, il apparaît que les propriétés structurales de la cible influenceront peu la statistique du signal.

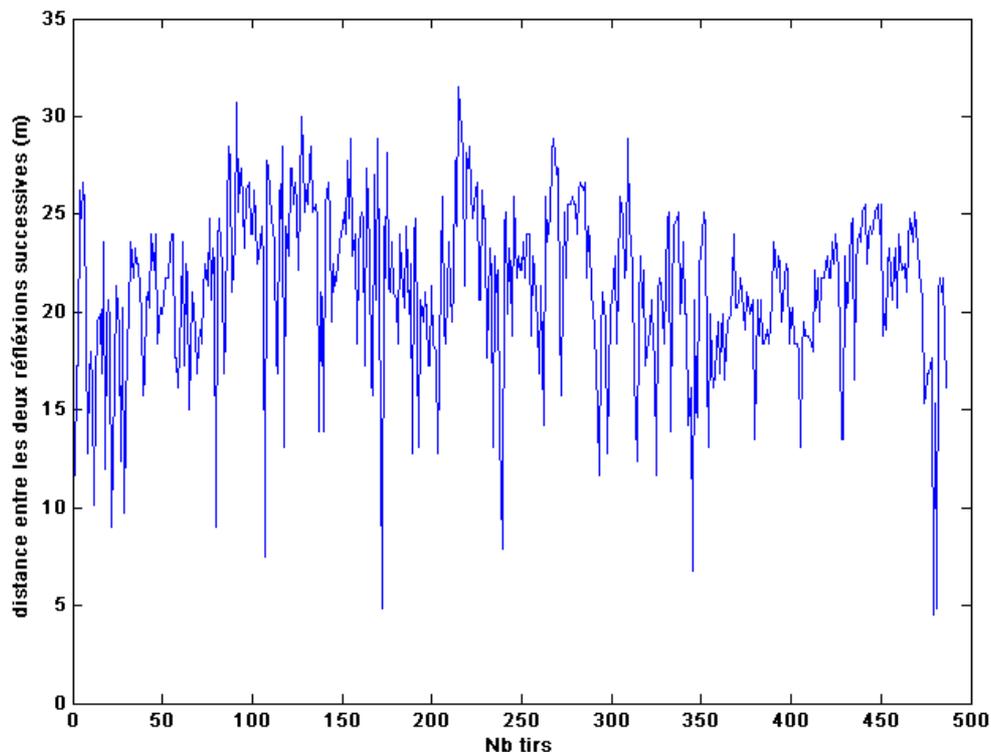
Cependant, la réflectivité de la cible étudiée sera le paramètre principal influençant le RSB.

### **3.1.2 Cas particulier de la canopée**

Un autre point à mettre en avant est la variation de la profondeur de pénétration du faisceau laser dans la cible. En effet, lors de mesures sur ce type de cible, le faisceau peut être réfléchi :

- totalement par une couche de feuillages
- par deux couches distinctes de feuillage
- par une ou plusieurs couches de feuillage et par le sol
- totalement par le sol.

Ne possédant pas de référence d'altitude pour le signal obtenu, nous avons donc décidé d'étudier la variation de distance entre deux réflexions successives dans le cas des échos obtenus avec pics multiples (Fig.4. 6) :



**Fig.4. 6 : Distance en mètre entre les différentes réflexions dans l'arbre**

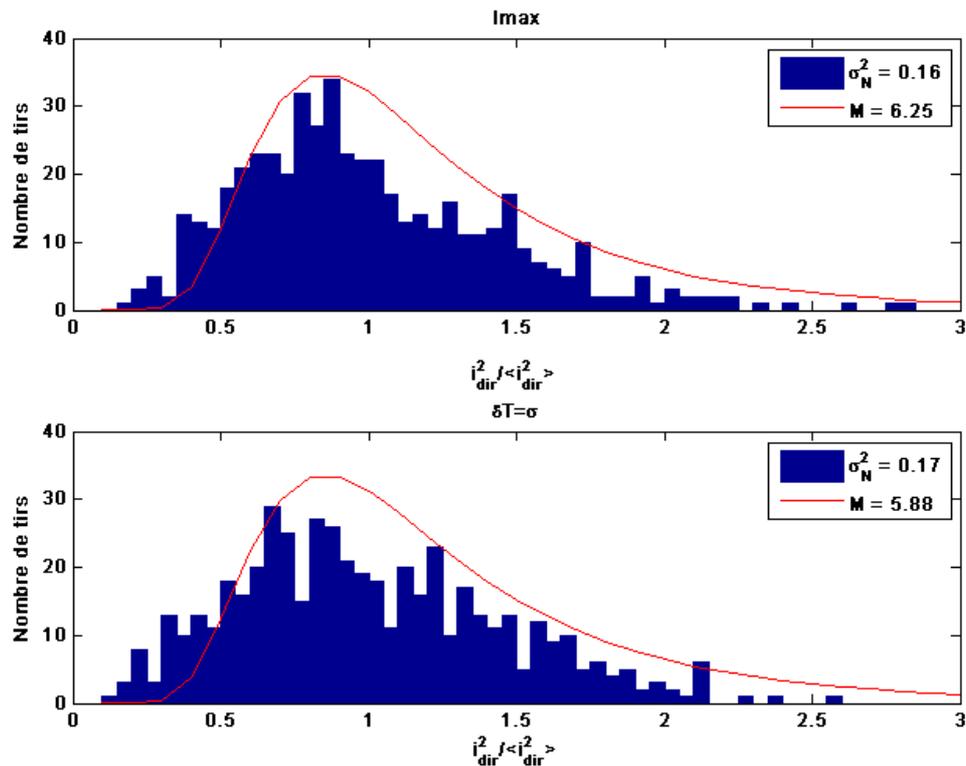
La distance moyenne entre les deux réflexions est de 21.3 m avec un écart type de 4.2 m et très peu de réflexions successives semblent se produire entre deux « couches » de feuillage. Cette mesure semble majoritairement donner l'écart entre les premières couches réfléchtrices (cime de l'arbre) et le sol.

Dans le cas d'une mesure spatiale, puisque nous connaissons à priori le positionnement (l'altitude) satellite/sol on ne devrait pas avoir d'erreur a priori apporté par cette variance. Ceci donne juste une idée de la variance de hauteur telle qu'elle peut être vue par un instrument spatial.

De même, l'information principale que nous pouvons tirer d'une telle mesure est la structure de la canopée en faisant la supposition que le premier pic provient de la cime de l'arbre, alors que le second atteint majoritairement le sol. Nous pouvons alors envisager de décrire la structure de la canopée avec de telles mesures.

Nous effectuons alors la statistique sur les tirs ayant été réfléchis par le sol lors de mesures à travers les arbres (Fig.4. 7). La variance normalisée est supérieure à celle obtenue dans tous les autres cas.

Ceci se comprend aisément en imaginant que la portion d'énergie réfléchié par une première couche d'arbres varie de tir à tir et le pourcentage d'énergie réfléchié par le sol n'est alors pas constant au cours d'une acquisition.

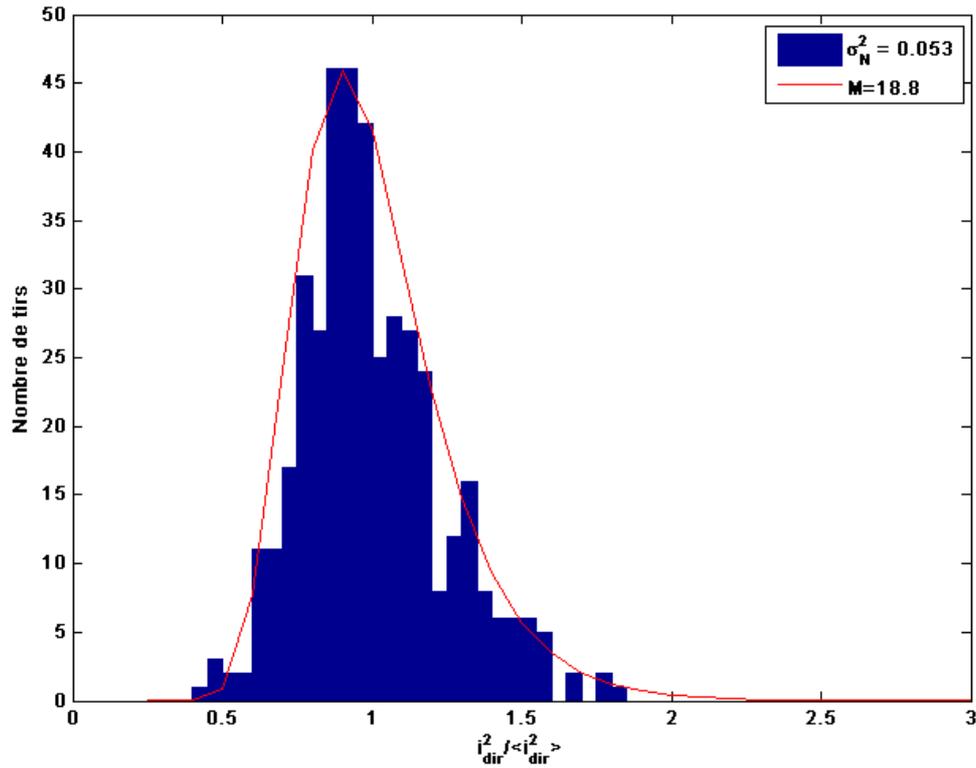


**Fig.4. 7 : Distribution des intensités des tirs atteignant le sol lors d'une mesure sur arbre**

Nous assistons alors à une dispersion des valeurs de puissance rétrodiffusées par le sol.

De même, utiliser ce signal pour une mesure de contenu intégré ne paraît pas prometteur car nous ne pourrions normaliser la mesure en énergie car il n'y a pas de possibilité de déterminer quelle portion de l'énergie laser émise a atteint le sol.

Nous proposons alors de traiter le signal en l'intégrant sur la totalité de la série temporelle (Fig.4. 8).



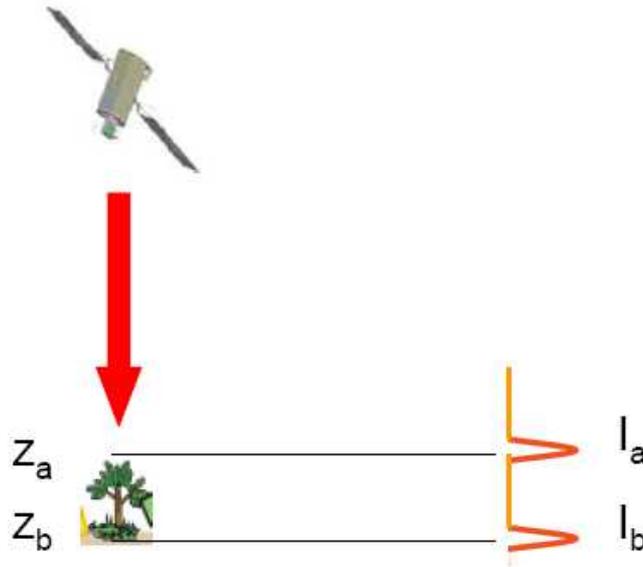
**Fig.4. 8 :** *Distribution des intensités réfléchies lors de tirs sur arbres estimé sur toute la série temporelle*

Nous voyons alors qu'en traitant l'ensemble des réflexions (qu'elles proviennent du sol ou bien de la canopée), nous obtenons une statistique bien plus favorable. Ainsi c'est le mode de traitement qui doit être envisagé pour une future mesure en contenu intégré sur arbre depuis l'espace.

Le cas étudié est schématiquement explicité sur la figure ci-après (Fig.4. 9).

Dans le cas de multiples réflexions, il faut alors estimer une altitude moyenne pondérée  $z_{moy}$  pour l'estimation du contenu intégré de la colonne de CO<sub>2</sub> que nous pouvons exprimer par :

$$z_{moy} = \frac{I_a Z_a + I_b Z_b}{I_a + I_b} \quad (4.38)$$



**Fig.4. 9 : Schéma de principe de tirs sur canopée à multiples réflexions**

De cette étude nous pouvons alors tirer plusieurs conclusions concernant de futures mesures en contenu intégré sur arbres :

- Lors d'une mesure en contenu intégré sur arbre depuis l'espace, la grande variation de structure de la cible tir à tir va introduire une variabilité supplémentaire en termes de puissance rétrodiffusée et ainsi dégrader la statistique du signal en comparaison à d'autres types de cibles topographiques comme une route. Cependant en détection directe le RSB sera majoritairement régi par la réflectance de la surface utilisée comme cible.
- De plus la portion de signal atteignant le sol ne peut être utilisée afin d'effectuer des mesures de rapport de mélange en  $CO_2$  en contenu intégré,  $X_{CO_2}$ , car la dispersion de la distribution des puissances réfléchies est la plus défavorable parmi celles étudiées.
- Environ la moitié des signaux émis lors du survol des zones boisées est réfléchi par le sol
- Le traitement du signal semble plus approprié en utilisant une porte temporelle intégrant tout le signal, du sol à la cime des arbres. Nous réduisons ainsi la variance globale. Cependant, il faut alors définir une hauteur moyenne pondérée pour le traitement de ces mesures.

### **3.1.3. Erreurs induites lors d'une mesure spatiale**

Lors d'une mesure spatiale telle qu'envisagée lors d'un concept de mission comme A-SCOPE, deux types d'erreur dues aux propriétés du sol (plus particulièrement de la cible utilisée comme surface réfléchissante) peuvent intervenir :

- en cas de désalignement de deux empreintes spatiales successives (ON et OFF), une variabilité de la valeur de réflectivité dans ces deux empreintes successives entrainera une erreur lors du calcul de l'épaisseur optique
- Dans une même empreinte au sol, les variations d'altitudes moyennes de réflexion effective induisent une erreur lors du calcul de la fonction de poids

Nous allons donc évaluer ces valeurs (variation de réflectivité et variation d'altitude moyenne) dans des empreintes spatiales et leur implication en termes d'erreurs sur une mesure DIAL spatiale du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

### **3.1.3.1. Variabilité de la réflectivité de surface entre deux impulsions successives**

Lors d'une mesure DIAL spatiale du CO<sub>2</sub> le principe de mesure suppose que lors d'une paire de tirs, les deux empreintes ON et OFF soient superposées au sol.

Si tel est le cas, nous devons évaluer les variations potentielles de réflectivité entre les deux empreintes ON et OFF.

Dans la configuration à 2 microns étudiée lors de cette thèse (raie d'absorption R 30 centrée à 2050.96 nm), les deux longueurs d'onde ON (2051.017 nm) et OFF (2051.24 nm). Ces deux longueurs d'onde sont donc séparées de 0.52 cm<sup>-1</sup>. Cette distance spectrale est donc très inférieure à la taille caractéristique de la structure spectrale de la matière condensée (plusieurs centaines de cm<sup>-1</sup>). Dans la région spectrale 2000 – 2200 cm<sup>-1</sup>, le coefficient d'absorption varie de 1% / cm<sup>-1</sup>. La réflectivité étant le complémentaire du coefficient d'absorption, celle-ci varie dans les mêmes proportions c'est-à-dire 0.5 % dans notre cas entre les longueurs d'onde ON et OFF. La variation de réflectivité du sol entre les longueurs d'onde ON et OFF (dans le cas d'empreintes au sol ON et OFF parfaitement superposées pour une paire de tirs) n'entraîne donc pas d'erreur notable sur la mesure DIAL de contenu intégré de CO<sub>2</sub>.

Cependant, nous devons évaluer quelle peut être l'influence de la variation de réflectivité entre deux empreintes spatiales d'une même paire de tirs lorsqu'elles ne sont pas parfaitement superposées. Ce désalignement peut provenir de deux raisons distinctes : la variation de vitesse du satellite, ou l'instabilité de pointage du laser.

Nous allons donc évaluer l'erreur induite par ces instabilités dans le cas de mesures utilisant l'écho provenant de la canopée à l'aide des données aéroportées du DLR à 1.6 μm.

Si  $\frac{\Delta\rho}{\rho}$  est la variation relative moyenne de réflectivité entre deux tirs non superposés, nous pouvons exprimer la différence de réflectivité relative entre deux tirs comme :

$$\frac{\delta\rho}{\rho} = \frac{\Delta\rho}{\rho} \left(1 - \frac{S_c}{S}\right) \quad (4.39)$$

Avec  $S$  l'aire d'une empreinte au sol et  $S_c$  l'aire commune aux deux empreintes. Pour des empreintes uniformes de rayon  $R$  et une distance entre leurs centres respectifs  $\delta x \ll R$  (cf. **Fig.4. 10**), nous avons alors :

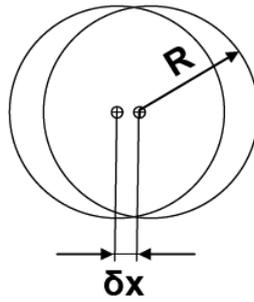
$$1 - S_c/S = 2\delta x/\pi R$$

et donc :

$$\frac{\delta\rho}{\rho} = \frac{2}{\pi} \frac{\delta x}{R} \frac{\Delta\rho}{\rho} \quad (4.40)$$

Et pour une paire de tirs ON et OFF, l'erreur sur la mesure du rapport de mélange en  $\text{CO}_2$ ,  $\rho_{\text{CO}_2}$ , est :

$$\frac{\delta\rho_{\text{CO}_2}}{\rho_{\text{CO}_2}} = \frac{1}{\pi\tau} \frac{\delta x}{R} \frac{\Delta\rho}{\rho} \quad (4.41)$$



**Fig.4. 10 : Représentation schématique de deux empreintes ON et OFF non superposées**

Dans le cas des mesures aéroportées réalisées par le DLR à une altitude moyenne de vol de 2 km, la taille caractéristique des empreintes au sol est un diamètre de 9m avec une distance entre les centres de chaque empreinte successive de 1.5 m.

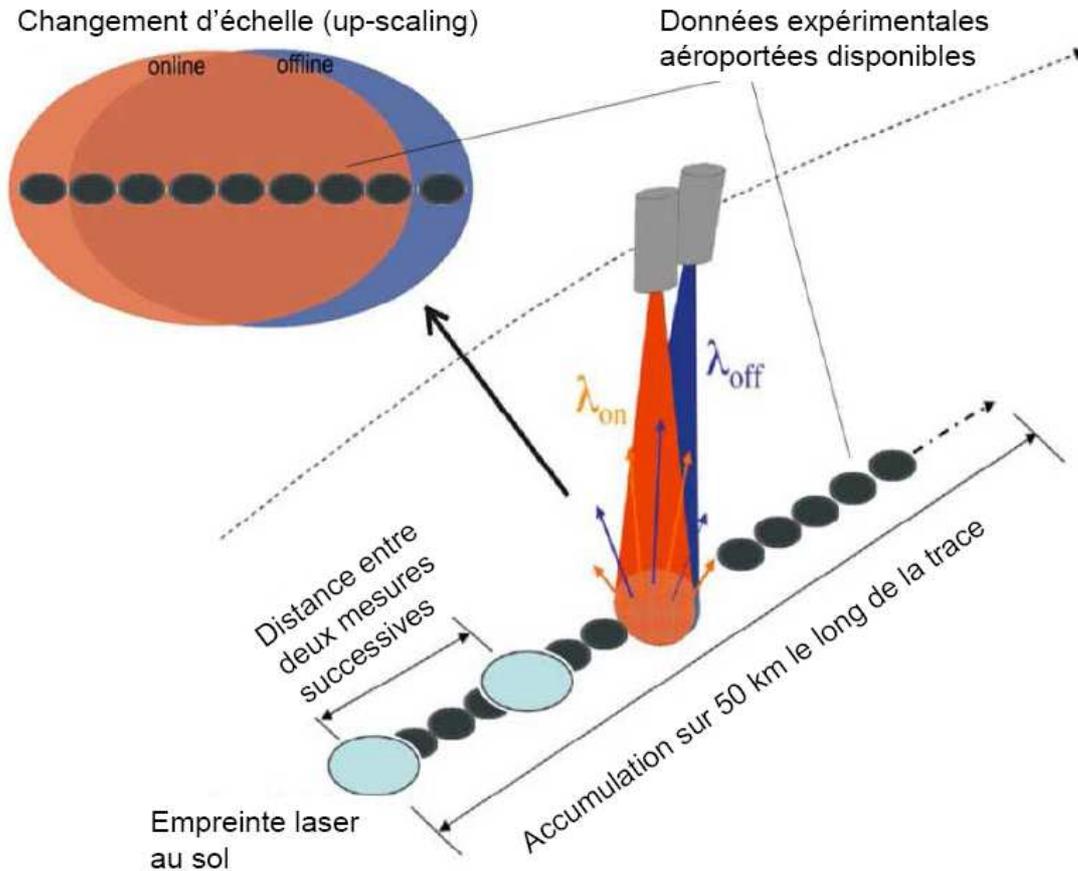
En se plaçant dans le cadre d'une mission de type A-SCOPE, pour une altitude de vol du satellite de 450 km et avec un demi-angle de divergence du laser de 100  $\mu\text{rad}$ , donne une taille caractéristique d'empreinte au sol de diamètre 90 m.

Afin de simuler une empreinte de 90 m, nous effectuons un simple changement d'échelle à une dimension (« up-scaling 1-D ») comme effectué dans [Amediek 2009] en moyennant la valeur de réflectivité sur  $n$  impulsions successives (ici  $n=10$  pour simuler une empreinte de 90 m de diamètre).

$$\rho_i^{\text{upsc}} = \frac{1}{n} \sum_{j=i}^{i+n-1} \rho_j$$

La dérive maximale d'un système laser peut être de 10 % du demi-angle de divergence du laser, donc 10  $\mu\text{rad}$  dans le cas d'une mission de type A-SCOPE.

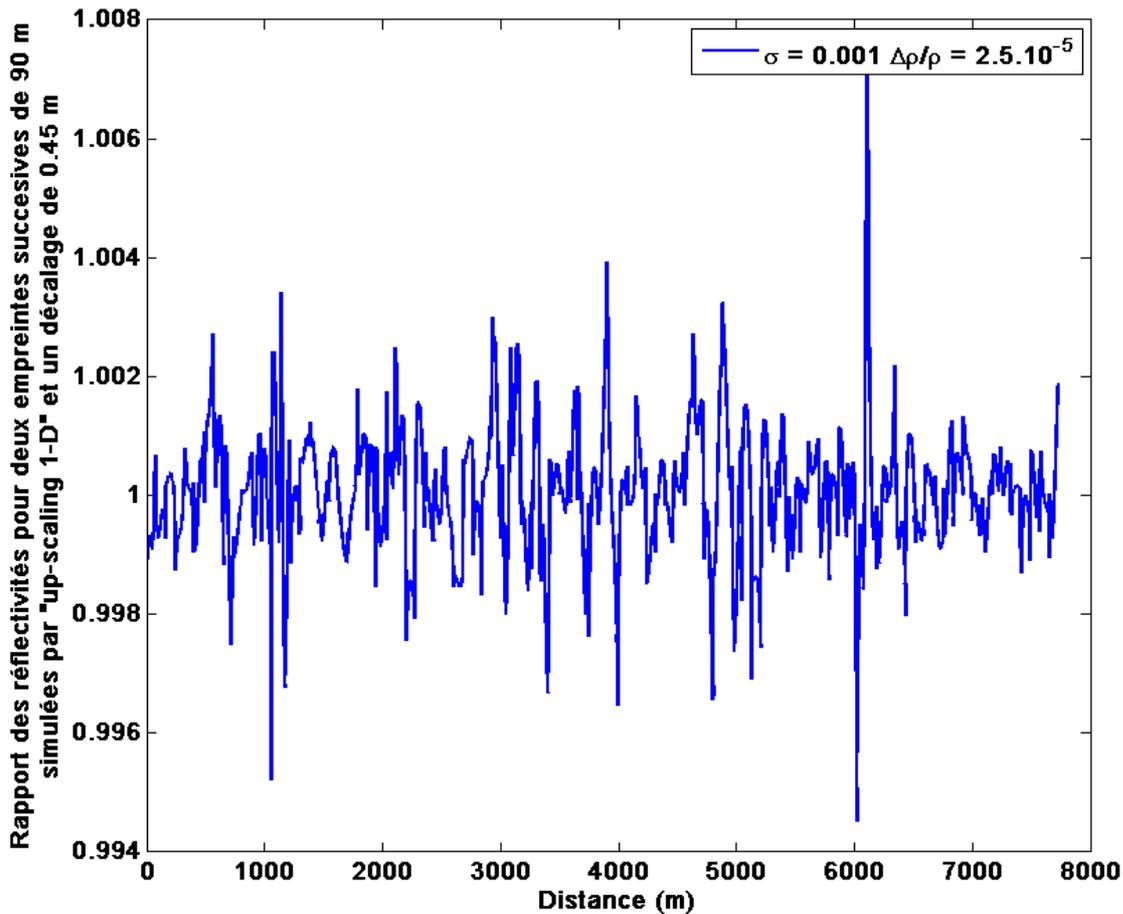
Le principe de mesure de la mission A-SCOPE ainsi que l'illustration du changement d'échelle 1D effectué sont rappelés sur la figure suivante (Fig.4. 11).



**Fig.4. 11 : Principe de mesure de la mission A-SCOPE et schéma du changement d'échelle effectué à partir des données aéroportées du DLR à 1.6  $\mu\text{m}$  [Amediak 2009]**

Nous observons sur la figure précédente que l'«up-scaling» 1D réalisé à partir des données du DLR est une approximation simpliste de la forme d'une empreinte provenant d'un LIDAR spatial. Une empreinte laser lors de mesure spatiale serait une empreinte à répartition gaussienne de l'énergie (99 % de l'énergie contenue dans un cercle de 90 m de diamètre). Cependant, il a été montré dans cette même publication [Amediak 2009], que l'utilisation d'une pondération gaussienne lors de l'«up-scaling» 1-D n'était pas une bonne approximation, car en amplifiant la contribution des empreintes centrales, ceci revient à une diminution de la taille de l'empreinte et amplifie les différences de réflectivité entre empreintes. Ces travaux montrent de même que l'«up-scaling» linéaire 1-D constitue une bonne approximation de l'empreinte gaussienne 2-D car la surestimation de variation de réflectivité est en partie compensée par le fait que sur de courtes échelles spatiales ( $\sim 10$  m), les valeurs de réflectivité du sol sont corrélées. Nous utiliserons donc cette technique de changement d'échelle, donnant une bonne approximation d'une empreinte laser 2-D.

Etudions désormais les variations de réflectivité sur une zone boisée de 8 km. Afin de simuler un décalage entre les deux empreintes, nous extrapolons à l'aide d'un polynôme d'ordre 3 les valeurs de réflectivité tous les 0.45 m pour simuler un dérive de 1  $\mu$ rad, puis tous les 4.5 m pour une dérive de 10  $\mu$ rad. Nous calculons alors le long de la série temporelle le rapport des réflectivités des empreintes successives dans les deux cas précités. Les résultats sont présentés sur les figures suivantes (Fig.4. 12 et Fig.4. 13).



**Fig.4. 12 :** Variabilité de la réflectivité d'empreinte à empreinte de 90 m pour une dérive du pointé de 1  $\mu$ rad (décalage de 0.45 m)

Nous calculons alors la réflectivité relative moyenne  $\Delta\rho/\rho$  d'un tir à l'autre sur l'ensemble de la série de mesures. La valeur moyenne de cette grandeur pour l'ensemble de la série est indiquée sur les figures (Fig.4. 12 et Fig.4. 13).

Nous pouvons alors à l'aide de l'équation (4.40) calculer l'erreur induite par ces variations sur une mesure de rapport de mélange en CO<sub>2</sub> en colonne totale intégrée.

Dans le cas d'un décalage des centres des empreintes ON et OFF de 0.45 m (dérive de 1  $\mu$ rad du pointé du laser), nous trouvons alors :  $\delta\rho_{CO_2}/\rho_{CO_2} = 7.96 \cdot 10^{-8}$  pour une paire de tirs ON/OFF.

En considérant un rapport de mélange moyen sur la colonne de 380 ppm, alors :  $\delta\rho_{CO_2} = 7.10^{-5} ppm$

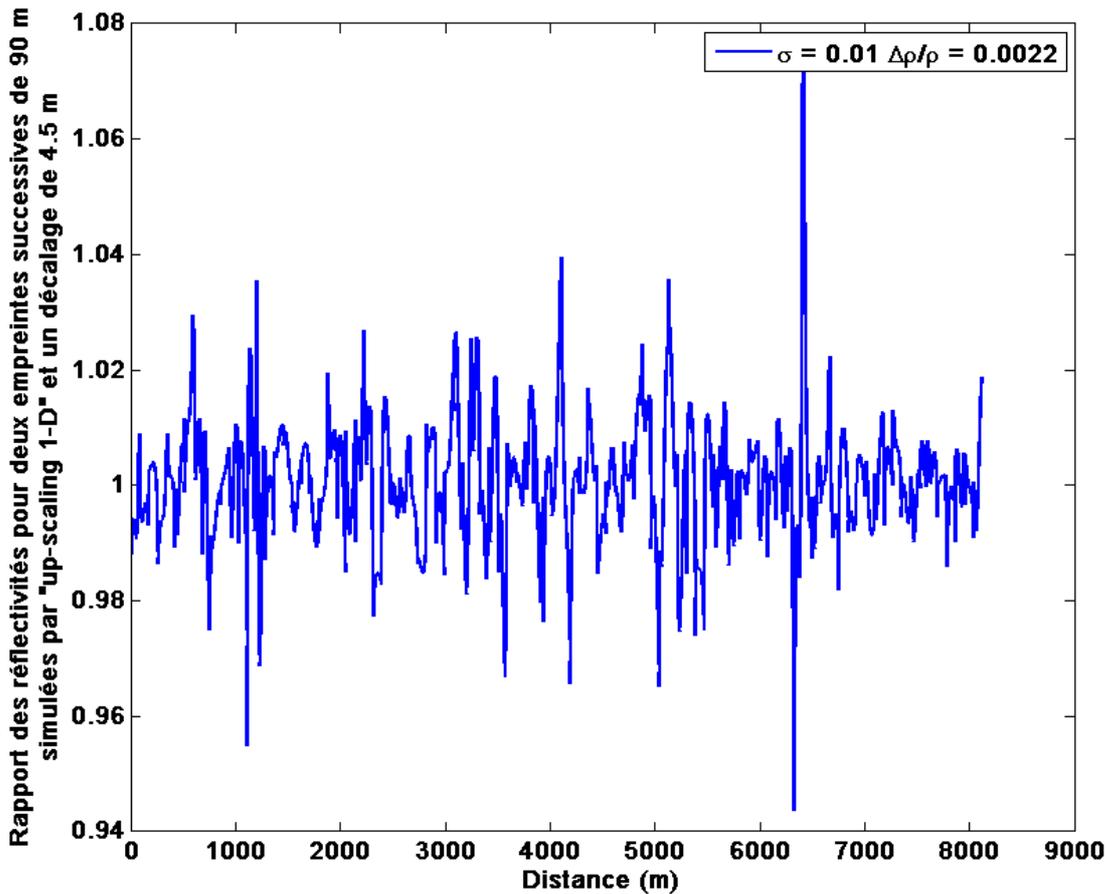


Fig.4. 13 : Variabilité de la réflectivité d'empreinte à empreinte de 90 m pour une dérive du pointé de 10 µrad (décalage de 4.5 m)

Ce résultat est donc l'erreur induite par un décalage des empreintes ON et OFF de 0.45 m sur la restitution du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> pour une paire de tirs. Cependant, dans un schéma de mesure tel que celui de A-SCOPE, ces valeurs seront moyennées le long d'une trace de 50 km.

Bien que  $\frac{\delta x}{R}$  ne soit pas une variable centrée aléatoire (dû au déplacement du satellite),  $\frac{\delta\rho}{\rho}$  l'est.

Ainsi, l'incertitude engendrée par la non-superposition des empreintes sera une erreur statistique et non un biais. Cette erreur statistique va donc décroître en  $\sqrt{N}$ ,  $N$  étant le nombre de tirs accumulés.

En considérant, par exemple la source DROPO présentée au Chapitre 3 de fréquence de répétition 30 Hz, alors 210 paires de tirs ON/OFF seront moyennées sur 50 km, et alors :  $\delta\rho_{CO_2} = 2.10^{-6} ppm$

En considérant le décalage, maximal entre les impulsions ON et OFF (4.5 m), le même calcul, conduit à  $\delta\rho_{CO_2} = 0.0018 ppm$ . Si nous considérons une fréquence de répétition de la source à 50 Hz (360 tirs), nous trouvons alors :  $\delta\rho_{CO_2} = 0.0014 ppm$ .

Cette étude ayant été réalisée à une longueur d'onde de 1.6  $\mu m$ , nous devons évaluer quelle est la pertinence de ces résultats. Bien que les valeurs de réflectivité absolues à 1.6  $\mu m$  et 2  $\mu m$  montrent des écarts significatifs, notamment dans le cas de la végétation (cf. **Tab.4. 1**) et plus particulièrement des arbres, les variations de réflectivité relative  $\delta\rho/\rho$  peuvent être considérées égales à ces deux longueurs d'onde.

### 3.1.3.2. Variabilité de l'altitude dans une empreinte spatiale au sol

Une autre source potentielle d'erreur liée aux cibles topographiques est la variation d'altitude de réflexion du faisceau laser. En effet, le calcul de la fonction de poids est dépendant de l'altitude de réflexion des signaux. Pour chaque empreinte spatiale au sol une altitude moyenne sera définie. La dispersion par rapport à cette valeur moyenne entrainera donc des erreurs sur le calcul de la fonction de poids et donc sur la restitution du rapport de mélange moyen en  $CO_2$ .

Lors d'une observation, le rapport de mélange moyen en  $CO_2$ , que nous dénommerons désormais  $X_{CO_2}$ , sera calculé comme suit :

$$\langle X_{CO_2} \rangle = \frac{\bar{\tau}}{\overline{SWF}} \quad (4.42)$$

Avec  $\bar{\tau} = \frac{\sum_{j=1}^N \tau_j}{N}$  et  $\overline{SWF} = SWF(\bar{z})$  au premier ordre et  $\bar{z} = \frac{\sum_{j=1}^N z_j}{N}$

Avec  $j$  étant une paire de tirs ON/OFF.

Une erreur statistique découle des variations d'altitude dans l'empreinte spatiale au sol. Afin d'évaluer celle-ci, nous introduisons le biais sur l'altitude dans le calcul de la fonction de poids  $SWF$ .

Nous évaluons alors les variations de hauteur moyenne pondérée comme définie par l'équation (4.37) dans une empreinte spatiale. Afin de reproduire l'aire d'une empreinte spatiale de 45 m de rayon, nous évaluons la variance de l'altitude moyenne pondérée pour 100 empreintes aéroportées (rayon : 4.5 m). Cette quantité est évaluée sur deux séries de mesures sur forêt d'approximativement 8 km. Les Figures suivantes (**Fig.4. 14** et **Fig.4. 15**) représentent la hauteur moyenne pondérée pour ces deux séries, ainsi que l'écart type et la valeur moyenne pour l'ensemble de la série. Afin d'évaluer, la valeur de l'écart type dans une empreinte spatiale, nous estimons ces valeurs sur des séries de 100 tirs successifs.

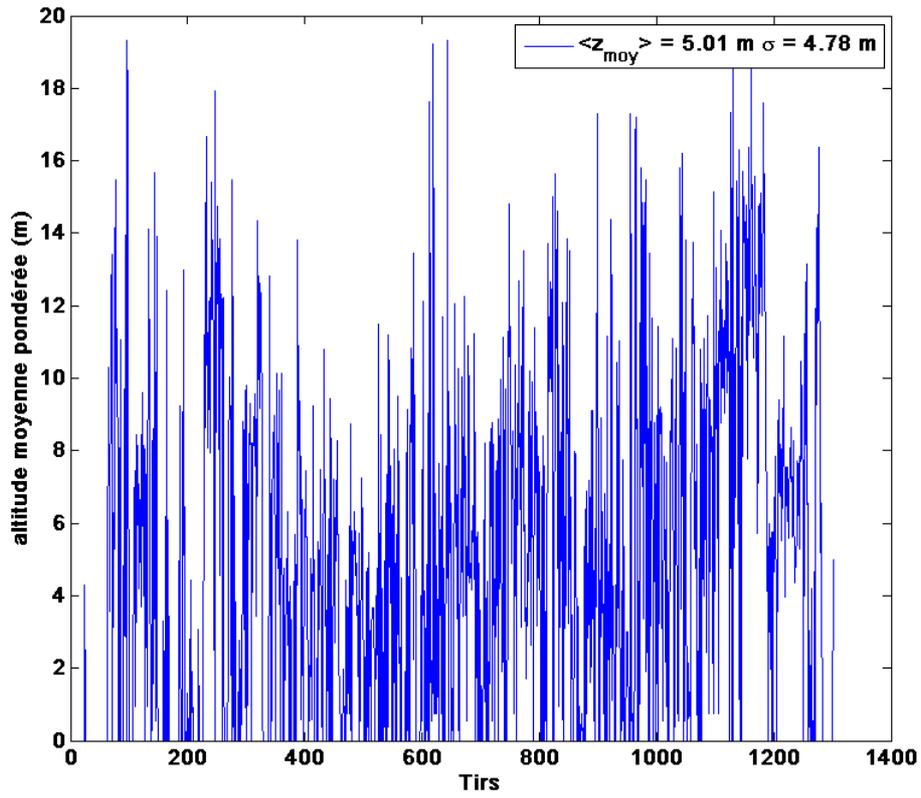


Fig.4. 14 : Altitude moyenne pondérée pour la 1<sup>ère</sup> série de mesures sur canopée étudiée

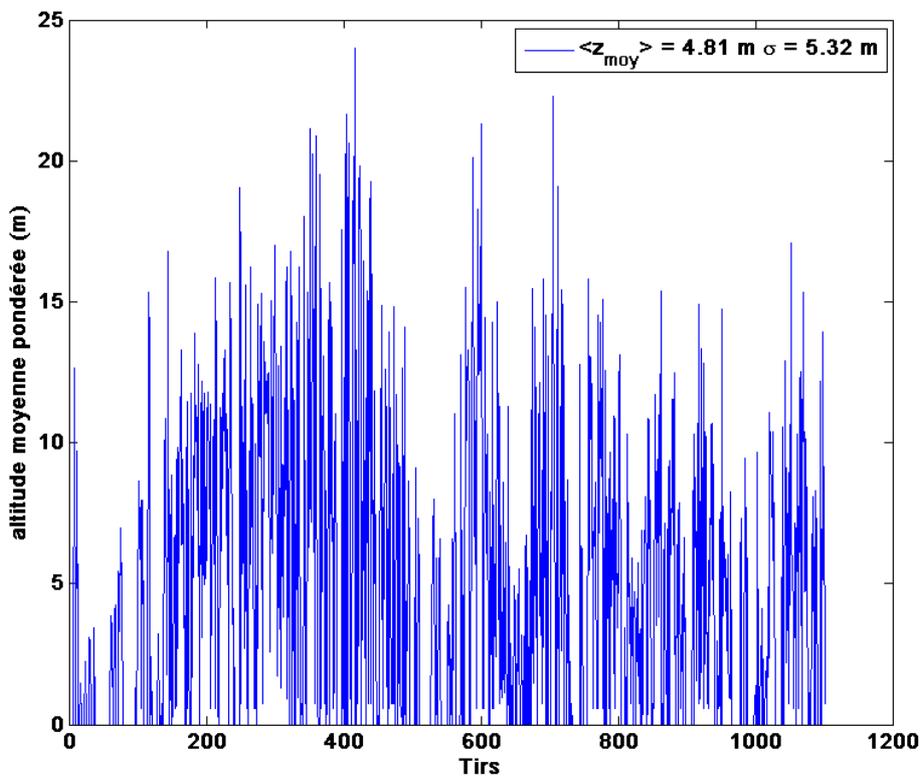
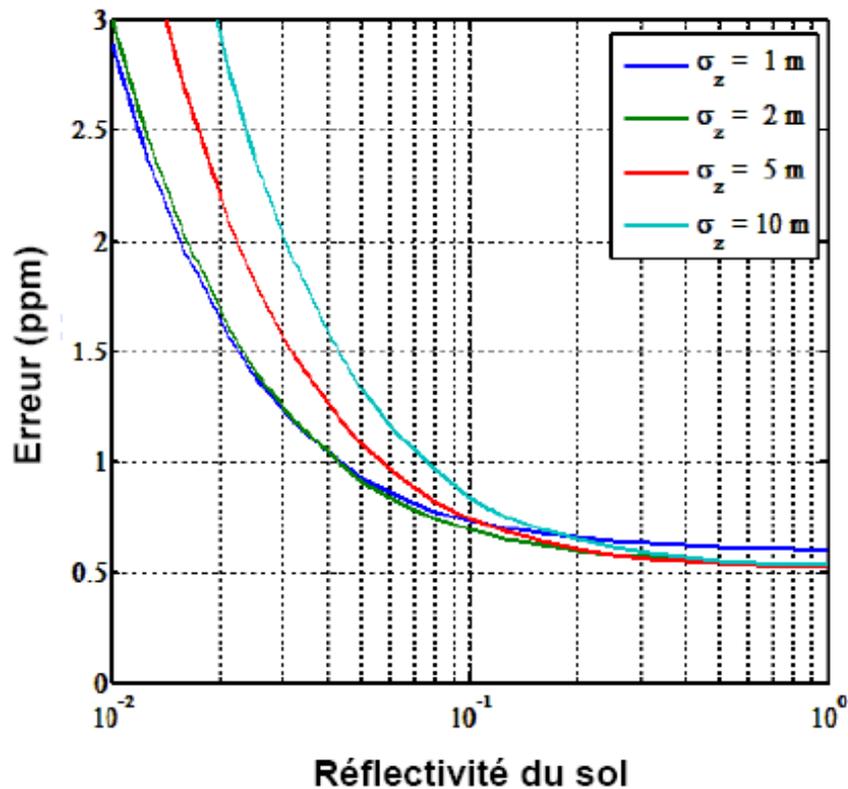


Fig.4. 15 : Altitude moyenne pondérée pour la 2<sup>nde</sup> série de mesures sur canopée étudiée

La valeur maximale de l'écart type d'altitude moyenne pondérée sur une série de 100 tirs pour ces deux séries de mesures est :  $\sigma_{zmoy} = 7.45$  m.

L'erreur systématique induite par ces variations pour la raie d'absorption R 30 du CO<sub>2</sub> atmosphérique a été modélisée et est représentée sur la figure suivante (**Fig.4. 16**) avec les spécifications d'un système spatial suivantes : puissance émise : 4W, fréquence de répétition (par paire de tirs) : 50 Hz, rapport des énergies E<sub>ON</sub>/E<sub>OFF</sub> : 7, durée de l'impulsion laser : 20 ns, diamètre du télescope : 1m, demi-angle de vue : 100 μrad, largeur du filtre optique : 1 nm, efficacité optique du système : 0.325.



**Fig.4. 16 :** Erreur sur la mesure de colonne totale intégrée de CO<sub>2</sub> atmosphérique induite par les variations d'altitude pondérée dans une empreinte spatiale en fonction de la réflectivité du sol

Pour une paire de tirs ON/OFF, l'erreur induite est donc de 0.8 ppm.

En effectuant le même raisonnement que précédemment, lors d'une observation sur 50 km, en considérant une fréquence de répétition des tirs de 50 Hz (*i.e.* 310 tirs), alors l'erreur maximale est alors :

$$\delta_{xCO_2} = \delta\rho_{CO_2} = 0.045 \text{ ppm}$$

Le tableau suivant (**Tab.4. 3**) récapitule donc les erreurs induites par les propriétés des cibles topographiques (variation d'altitude moyenne et variation de réflectivité).

**Tab.4. 3 : Erreurs induites par les propriétés des cibles topographiques (variation de réflectivité et d'altitude) sur une mesure de rapport de mélange en CO<sub>2</sub> en colonne totale intégrée**

<b>Paramètre</b>	<b>Erreur (ppm)</b>
<i>variation de réflectivité dans une paire de tirs ON/OFF (dépointé de 10 μrad)</i>	0.0014
<i>variation d'altitude moyenne pondérée dans une empreinte spatiale (rayon 45 m)</i>	0.045

### 3.2. Détection hétérodyne

#### 3.2.1. Analyse de la statistique des signaux utilisant des arbres comme cibles

Comme vu précédemment, dans le cadre d'une mesure DIAL hétérodyne, la statistique du signal dépend exclusivement du nombre de tavelures temporelles, les tavelures spatiales n'intervenant que dans la qualité du mélange hétérodyne  $\gamma_H$ .

Ici, nous analysons les propriétés du signal hétérodyne rétrodiffusé dans le domaine temporel à partir d'acquisitions LIDAR réalisées avec pour cible de mesure des arbres.

Afin de s'affranchir de l'instabilité fréquentielle potentielle de la source laser, nous effectuons les statistiques sur les signaux enregistrés à la longueur d'onde OFF. Ainsi, les dérives éventuelles de la source n'entraînent pas de changement d'absorption effective. De même, les signaux réfléchis sont normalisés par l'énergie émise tir à tir. Ainsi, nous pouvons négliger l'influence de la variance liée à la source laser lors de cette analyse :  $\sigma_{laser}^2(x) = 0$

De même, les mesures étant réalisées en visée horizontale sur une courte distance de propagation (les cibles topographiques sont situées à approximativement 1 km de l'émission laser), nous pouvons alors considérer les paramètres atmosphériques comme constants le long de la ligne de visée et négliger l'influence de la turbulence d'indice sur la variance du signal. D'après [Flamant 1984], en considérant une valeur moyenne de  $C_n^2 = 3 \cdot 10^{-14} \text{ m}^{-2/3}$  sur une distance de propagation de 1 km, la variance alors induite par la turbulence d'indice atmosphérique est égale à :  $\sigma_{atmos}^2 = 0.01$ .

Nous considérerons alors cette contribution comme négligeable au cours de cette expérience et considérerons que la variance observée sur la puissance réfléchie n'est due qu'à la seule influence de la cible.

Dans un premier temps, nous traitons le signal hétérodyne rétrodiffusé par les arbres dans le domaine temporel. Nous étudions alors la statistique de cette série d'acquisition.

Dans un premier temps, nous effectuons une détection d'enveloppe sur le signal hétérodyne temporel modulé élevé au carré. Nous étudions ainsi la statistique des puissances rétrodiffusées. Ainsi nous ne gardons que l'enveloppe gaussienne du signal.

Ensuite, trois portes temporelles différentes sont étudiées :

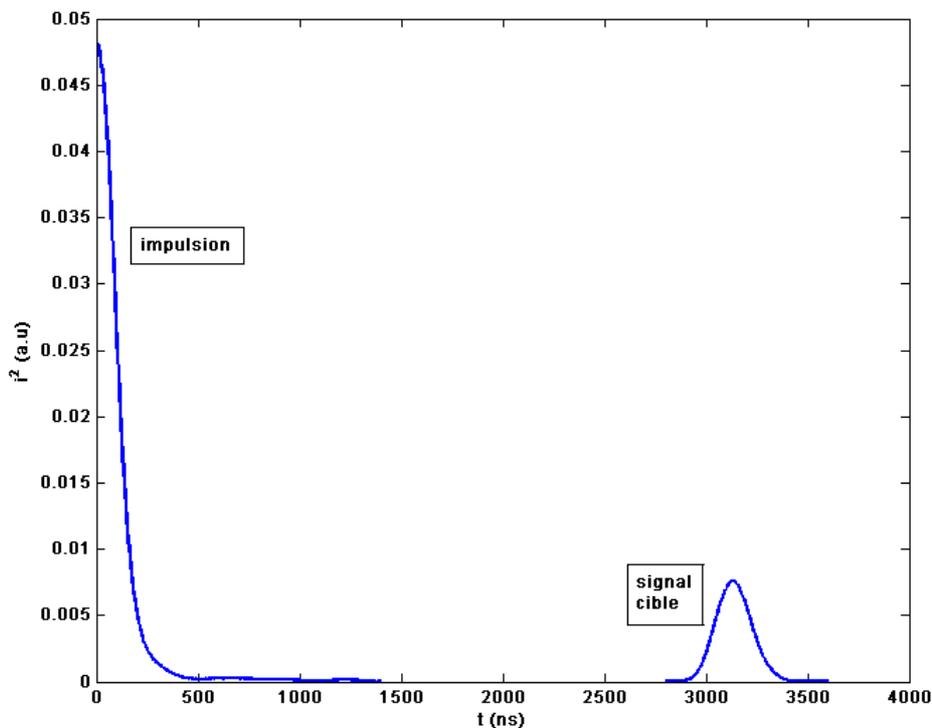
- le maximum seul de l'impulsion
- une porte de largeur  $1\sigma$  centrée autour de l'impulsion
- une porte de largeur  $3\sigma$  centrée autour de l'impulsion

avec  $FWHM = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma$  en considérant une impulsion gaussienne.

Lorsque des portes temporelles sont analysées, nous estimons alors la puissance temporelle intégrée sur toute cette porte. De même nous estimons alors la largeur temporelle du signal.

Comme représenté sur la figure ci-dessous (**Fig.4. 17**), la largeur HWHM de l'impulsion est de 106 ns (le post traitement ne garde l'impulsion qu'à partir de son maximum). Ceci représente donc une largeur FWHM de 212 ns, tandis que le signal provenant de la cible a une largeur de 210 ns. Nous ne constatons donc pas d'effet notable de la cible sur de la largeur temporelle du signal lors des deux séries temporelles. L'impulsion gaussienne diffusée par la cible est semblable à celle émise dans l'atmosphère.

Sur la figure ci-après (**Fig.4. 18**) sont représentées les statistiques effectuées sur les puissances signal rétrodiffusées pour les 3 portes temporelles précédemment citées pour une acquisition avec ligne de visée en direction d'arbres.



**Fig.4. 17 : Profil temporel moyen de l'impulsion et du signal rétrodiffusé lors d'une série d'acquisition sur arbres**

Dans les deux cas, les statistiques traduisent une distribution des puissances rétrodiffusées située entre un comportement en exponentielle négative et une loi lognormale. Ainsi, ce comportement traduit un nombre de cellules de speckle compris entre 1 et 3.

Sur chaque graphique, nous représentons aussi la fonction gamma correspondant au nombre de tavelures déterminé par la variance normalisée de la série. Ainsi nous vérifions la correspondance des deux.

Les tirs sur des arbres affichent une variance normalisée située entre 0.4 et 0.5, ce qui traduit un nombre de tavelures comprises entre 2 et 2.5.

Nous remarquons de même que la méthode de traitement (maximum du signal ou portes temporelles de 1 ou 3  $\sigma$ ) ne semble pas influencer le résultat en termes de variance. Ceci confirme qu'il n'y a pas de déformation temporelle de l'impulsion émise par l'interaction la cible.

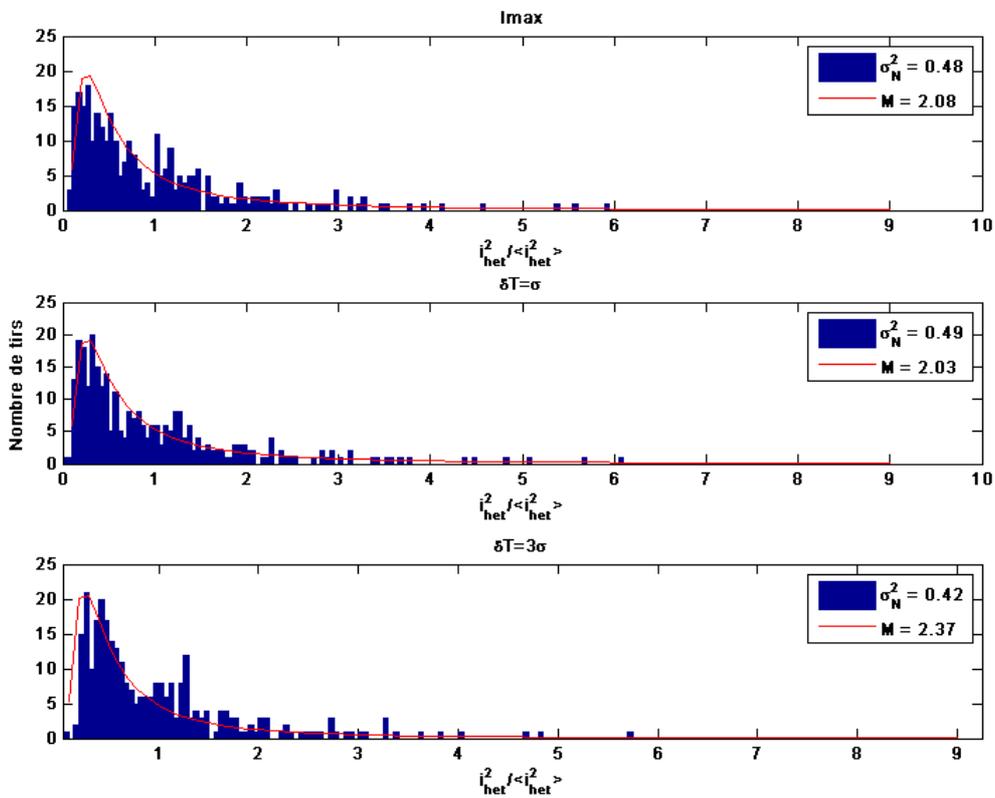
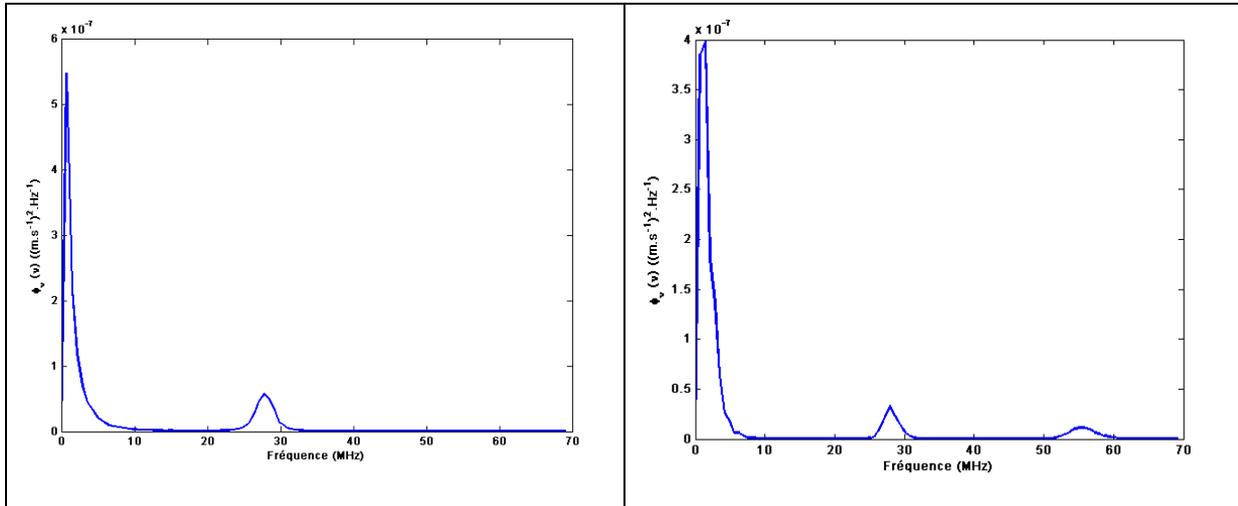


Fig.4. 18 : Histogrammes et variances normalisées de tirs sur arbres dans le domaine temporel.  $N=300$

L'allure générale de la distribution visualisée se rapproche de la théorie avec cependant un nombre de tavelures de 2 au lieu d'une seule tavelure attendue dans le cas d'une détection hétérodyne. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'impulsion étant large temporellement par rapport aux distances caractéristiques de la cible, la statistique étudiée est une potentiellement une contribution sur chaque impulsion des arbres, mais aussi des aérosols.

Afin de vérifier ces résultats, nous effectuons une transformée de Fourier des signaux afin de tracer leur spectre fréquentiel. Un tel exemple est présenté sur la figure suivante (**Fig.4. 19**). Nous pouvons remarquer un pic à approximativement 25 MHz correspondant au battement entre le signal atmosphérique et l'oscillateur local. Cependant, nous observons un deuxième pic à une fréquence double et apparaît comme étant dû à une réflexion parasite.



**Fig.4. 19 :** *Spectre fréquentiel de l'impulsion émise (gauche) et du signal réfléchi sur un arbre (droite)*

Afin de nous affranchir de la contribution potentiellement néfaste de la réflexion parasite, nous effectuons alors la même procédure de traitement que précédemment mais dans le domaine fréquentiel. Nous filtrons les autres composantes du signal en ne gardant que le pic situé à 25 MHz. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure ci-après (**Fig.4. 20**).

La variance normalisée est légèrement supérieure à celle obtenue dans le cas temporel, confirmant que la réflexion parasite de l'oscillateur continu doit introduire un fond continu constant réduisant la variance du signal réfléchi.

Ici, la variance normalisée est approximativement la même quelle que soit la porte utilisée pour le traitement du signal et est égale à 0.59. Ceci correspond à un nombre de tavelures temporelles de 1.7.

En se remémorant que, dans le cas d'une détection hétérodyne, seules les tavelures longitudinales sont présentes, les tavelures transverses n'intervenant pas, nous pouvons alors dire que le signal est composé de 1.7 tavelures temporelles.

Nous pouvons d'ailleurs remarquer ici, que le mode parasite détecté dans le cas temporel perturbait alors la mesure.

Le temps de cohérence du signal après réflexion par la cible est donc estimée à partir de la relation (4.21) et :

$$\tau_c = \frac{\delta\tau_R}{\sqrt{M_T^2 - 1}} \quad (4.43)$$

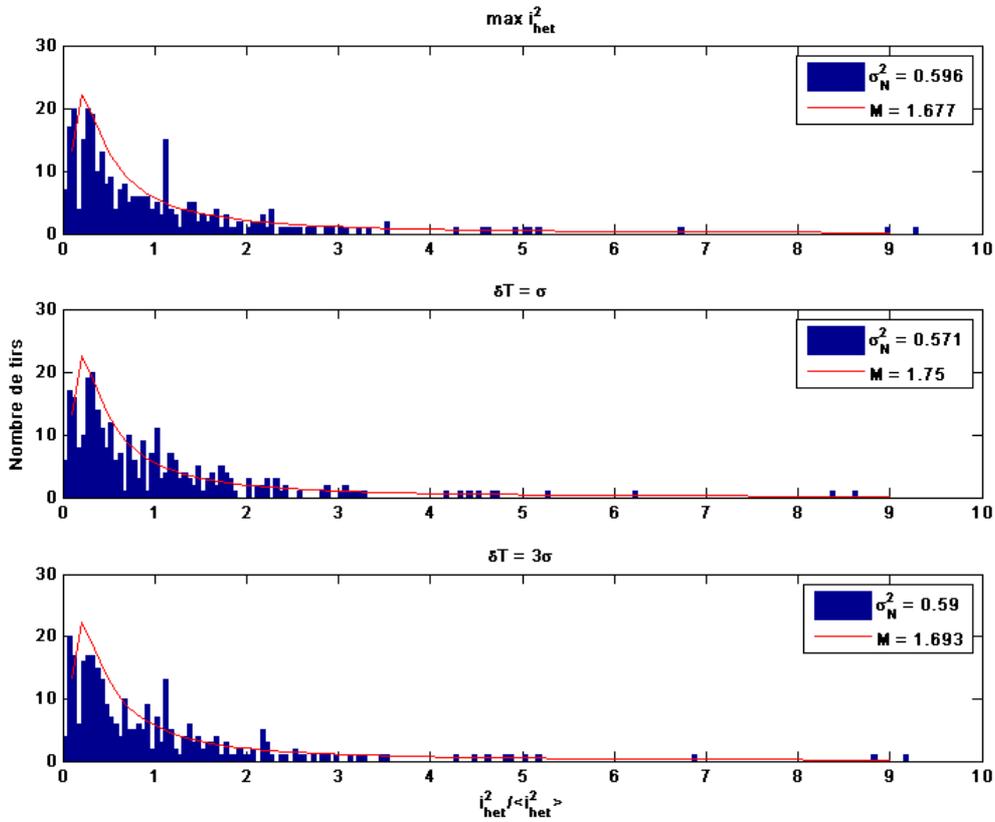


Fig.4. 20 : Histogrammes et variances normalisées de tirs sur arbres dans le domaine fréquentiel

Ici, la bande passante est de 50 MHz, la durée de la porte de mesure est donc de 40 ns, le nombre de tavelures temporelles comme exprimé précédemment est donc de 1.7 et alors on obtient  $\tau_c = 29$  ns.

L'arbre agit donc comme une cible diffuse atténuant la cohérence temporelle de l'onde. En considérant négligeable les effets de la turbulence d'indice atmosphérique, nous voyons alors que la cible réduit le temps de cohérence de la durée de l'impulsion lumineuse de 210 ns à 29 ns. Cependant cet effet peut éventuellement provenir d'autres contributions (turbulence + fluctuations instrumentales).

L'arbre possède donc les propriétés d'une cible diffuse atténuant la cohérence temporelle de l'impulsion lumineuse. Cependant nous n'observons pas ici de multiples pics de réflexion liés aux différentes couches réfléchissantes.

En effet, la durée de l'impulsion (210 ns) est telle que l'ambiguïté en distance défini au chapitre 1 est égale à  $\tau_p/2 = 31.5$  m. Ainsi la distance caractéristique entre les différentes feuilles n'est pas observable au vu de l'impulsion et celle-ci garde sa forme gaussienne caractéristique après réflexion. Ainsi il n'est pas possible de savoir quelle couche de feuillage effectif a réfléchi l'onde incidente.

Nous remarquons de même, que nous n’observons encore une fois pas d’influence de la taille de la porte de traitement dans le domaine fréquentiel.

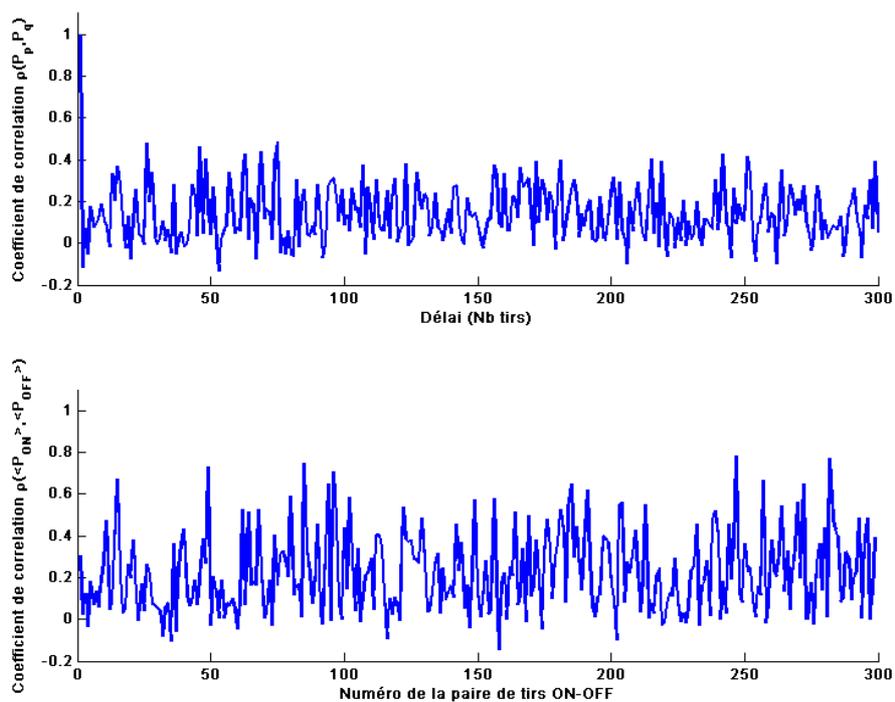
Nous pouvons en conclure que si la longueur caractéristique entre les différentes couches pour une cible diffuse est très inférieure devant l’incertitude en distance relative à la durée de l’impulsion, alors le traitement de l’impulsion réfléchie peut être effectué sur une porte de n’importe quelle longueur.

Par extension, on aura tendance à privilégier une petite largeur de porte afin de ne pas éventuellement être perturbé par le bruit systématique au pied de l’impulsion. Analyser la puissance temporelle ou spectrale sur une porte de  $1\sigma$  centrée autour du maximum de l’impulsion apparaît un bon compromis.

Ainsi dans le cas d’impulsions longues devant la profondeur de la cible (hauteur de la couche de feuillages de l’arbre) dans le cas d’une mesure aéroportée ou spatiale, la cible diffuse se comporte comme une cible dure, concernant la forme de l’impulsion temporelle et comme une cible diffuse concernant les propriétés de cohérence spectrale de l’impulsion.

### 3.2.2. Etude de la corrélation des signaux

Afin d’étudier l’impact sur une erreur de mesure DIAL, nous traçons la corrélation des signaux de la première série temporelle. Nous évaluons alors la corrélation tir à tir  $\rho(P_p, P_q)$  et la corrélation entre les puissances ON et OFF  $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$ . Nous représentons ces grandeurs pour toute la série sur la figure suivante (Fig.4. 20).



**Fig.4. 21:** Coefficients de corrélation tir à tir  $\rho(P_p, P_q)$  (haut) et entre les puissances ON et OFF  $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$  (bas)

Nous voyons alors de manière explicite sur la figure précédente que la corrélation entre les deux premiers tirs successifs OFF est nulle. Ainsi la cible topographique décorrèle complètement le signal dès le deuxième tir de la série.

En ce qui concerne la corrélation des puissances ON et OFF, aucune propriété de corrélation n'apparaît instinctivement. En effet, le coefficient de corrélation oscille autour de valeurs faibles tout au long de la série.

Si nous effectuons une mesure DIAL moyennée sur un grand nombre de tirs, nous obtenons alors des coefficients de corrélation moyens.

En moyennant ces coefficients sur l'ensemble de la série, nous obtenons alors  $\langle \rho(P_p, P_q) \rangle = 0.135$  et  $\langle \rho(P_{ON}, P_{OFF}) \rangle = 0.217$ .

En nous référant à la figure théorique (Fig.4. 12), nous pouvons alors remarquer que l'erreur relative induite sur la mesure de l'épaisseur optique est dans ce cas très importante avec  $\sigma(\tau)/\tau = 1$ . Ceci implique donc que dans le cas étudié ici (mesures hétérodynes avec des durées d'impulsion supérieures à la taille caractéristique des diverses couches de l'arbre), la statistique n'est pas favorable. L'erreur statistique sur une mesure d'épaisseur optique sur les cibles dans ce cas est alors donnée par la formule (4.33) où nous pouvons négliger le terme de corrélation croisée.

Ainsi, du au faible effet de la corrélation entre les puissances moyennes ON et OFF, l'erreur statistique décroît alors en  $\sqrt{M}$ . Le faible nombre de tavelures temporelles lors de ces mesures sur arbres implique alors d'effectuer une moyenne sur un grand nombre de tirs pour réduire l'erreur statistique sur une restitution de l'épaisseur optique.

Lorsque la durée d'impulsion est longue devant la taille caractéristique des diffuseurs étendus, un arbre doit alors être considéré comme une cible « pseudo-dure » avec un faible nombre de tavelures engendrant une grande dispersion des puissances réfléchies et donc une erreur statistique importante sur un seul tir.

Les puissances ON et OFF successives dans une paire de tirs sur arbres sont complètement décorrélées. Ainsi, d'après l'équation (4.33), l'erreur statistique est maximisée et est seulement dépendante de la somme quadratique des erreurs à chaque longueur d'onde ON et OFF. Ainsi, la configuration hétérodyne engendre une erreur importante lors de mesures sur arbres.

#### **4. Conclusion**

Nous avons mis en avant dans ce chapitre quelques propriétés de la canopée en vue d'une mesure spatiale en colonne totale intégrée utilisant l'écho de sol. En envisageant une future mesure spatiale de contenu intégré en rapport de mélange en CO<sub>2</sub>, tous types de cibles au sol seront utilisés pour effectuer la mesure et nous avons montré à l'aide des mesures aéroportées sur différents types de sol, que le rapport signal à bruit est directement influencé par la réflectivité naturelle de la cible. En vue d'une mesure utilisant la canopée, une détection directe sera privilégiée, la statistique du signal étant plus favorable.

Nous avons montré de plus, en étudiant les mesures en détection hétérodyne que les arbres agissent comme une cible diffuse, diminuant la cohérence temporelle de l'onde et décorrélant les signaux tirs à tirs ce qui augmente l'erreur statistique sur la mesure de puissance.

Dans le cas de l'utilisation d'une détection directe qui est la plus envisageable, la distribution statistique des intensités retour sera directement liée à la réflectivité de la cible utilisée. Ainsi de grandes variations potentielles de rapport signal à bruit seront à attendre lors du passage brusque d'une zone de forte réflectivité à une zone de faible réflectivité.

Nous avons mis en avant une méthodologie de traitement dans le cas particulier de mesure sur les arbres : il est nécessaire d'intégrer le signal du sol à la cime des arbres afin de réduire la variance normalisée du signal rétrodiffusé. Afin de calculer la fonction de poids, il est alors nécessaire d'utiliser une hauteur moyenne pondérée dans l'empreinte spatiale au sol que nous avons défini dans ce chapitre.

Nous avons alors étudié l'influence des propriétés des zones boisées en termes d'erreur sur la mesure du contenu intégré sur la colonne. Au sein d'une empreinte spatiale au sol (~ 90 m de diamètre), les variations d'altitude moyenne pondérée, n'engendre une erreur statistique que de 0.045 ppm pour une observation sur 50 km. La variation d'altitude des arbres ne causera donc pas d'erreur significative sur la mesure de rapport de mélange  $X_{CO_2}$ .

La variation de réflectivité de la surface réflectrice, en cas de décalage des empreintes spatiales ON et OFF engendrera une erreur maximale négligeable pour une observation de 50 km.

Nous avons donc mis en avant à l'aide de mesures aéroportées, quelques propriétés significatives de la canopée pour la mesure de CO<sub>2</sub> par LIDAR DIAL spatial. Nous privilégierons donc une détection directe avec des durées d'impulsions courtes afin d'obtenir un grand nombre de tavelures et une distribution statistique des puissances rétrodiffusées favorable.

## Conclusion

Le thème central de cette thèse est le potentiel de la mesure du CO<sub>2</sub> atmosphérique par LIDAR DIAL spatial. Il s'inscrit dans un thème global de compréhension des mécanismes climatiques et de prévision du réchauffement global. En effet, comme le montre cette thèse, ce gaz est le premier contributeur anthropique à l'effet de serre. Nous avons montré la corrélation entre le début de la révolution industrielle et l'augmentation de la production de CO<sub>2</sub> et l'élévation de la température de l'air à la surface terrestre.

Cependant, il subsiste une limitation majeure pour la compréhension du cycle du carbone et des rétroactions du climat sur le cycle du CO<sub>2</sub>. Pour ceci, des sondeurs spatiaux sont utilisés pour la caractérisation et le suivi de l'évolution des sources et puits de CO<sub>2</sub>.

Afin de caractériser ces sources et puits, des observations de concentration de CO<sub>2</sub> sont indispensables. Cependant, les stations de mesures au sol sont trop éparées et la densité du réseau de mesure bien trop faible pour restituer les flux à l'échelle régionale en utilisant un modèle de transport.

Une mesure globale précise de concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique, permettant d'estimer les flux de surface de dioxyde de carbone et donc de localiser et quantifier les puits et sources par contrainte des modèles numériques de transport, serait donc une étape essentielle pour la compréhension de ce problème.

Une mesure de télédétection active par méthode DIAL depuis l'espace a donc été envisagée afin de répondre aux incertitudes des mesures spatiales par des instruments passifs comme GOSAT lancé en 2009. En effet, ces derniers souffrent de limitations. De plus, la sensibilité aux basses couches de l'atmosphère est très faible dans le cas de sondages dans l'infrarouge thermique et les mesures passives ne permettent pas une couverture des hautes et moyennes latitudes.

Cette thèse s'inscrit donc dans la lignée des premières études réalisées sur ce thème au Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) (Thèse de doctorat de Fabien Gibert en 2005 et étude FACTS pour

l'Agence Spatiale Européenne en 2005) et s'appuie sur celles-ci afin de démontrer que l'objectif de restitution des puits et des sources de CO<sub>2</sub> atmosphérique peut être atteint par une mesure satellite DIAL. La sélection à l'étude par l'agence Spatiale européenne de la mission A-SCOPE montre tout l'intérêt porté par la communauté scientifique à un tel projet, et inspire aussi directement les études poursuivies durant ce travail de thèse.

Le premier chapitre a permis de cadrer le sujet dans son contexte et d'estimer la précision requise sur une mesure DIAL spatiale afin de pouvoir contraindre les modèles de transport. En s'appuyant sur les études précédentes, nous avons alors pu retenir une raie d'absorption d'intérêt pour un futur sondage spatial. Le domaine à 2 microns a été retenu pour la suite du travail, notamment de part l'intérêt de sa grande sensibilité dans les basses couches de l'atmosphère. En effet, la communauté scientifique considère deux bandes d'absorption à 1.6 μm et 2μm. Nous avons fait le choix de concentrer la suite de cette étude sur le domaine à 2 microns pour le grand intérêt que représente la fonction de poids piquant dans la couche limite atmosphérique.

Les résultats sont obtenus à l'aide d'un simulateur instrumental LIDAR ayant été développé durant l'étude FACTS. Après ces considérations, nous choisissons alors de concentrer la suite de cette étude sur la raie d'absorption du CO<sub>2</sub> R30 de la bande (20<sup>0</sup>1)<sub>II</sub> ← (000), candidate potentielle pour une future mission spatiale. Le centre de cette raie est localisé à 2050.967 nm (4875.749 cm<sup>-1</sup>). Les degrés de précision et de biais à atteindre sur cette raie pour une mesure spatiale en contenu intégré ont alors été spécifiés.

La prise en main de ce simulateur a notamment permis d'envisager et de comprendre la globalité des processus mis en jeu lors d'une mesure DIAL spatiale et d'envisager notamment les différents types de biais pouvant perturber la mesure. Ceci permet de définir les spécifications requises pour une source laser à visée de mesure spatiale comme définie au Chapitre III.

Ces simulations numériques ont été utilisées tout au long de la thèse et notamment avec les nouvelles valeurs de coefficients spectroscopiques obtenues lors du Chapitre II. Ceci a alors permis d'améliorer les spécifications obtenues.

Afin de pouvoir atteindre les précisions de mesure spécifiées dans ce Chapitre I, nous avons énoncé un besoin de mesures spectroscopiques très précises.

Dans le Chapitre II, l'étude se focalise alors sur la raie R30 (2051 nm). De nouvelles études mettent en cause la précision des bases de données spectroscopiques comme HITRAN 2004. Ainsi, afin de réduire les biais potentiels sur des mesures spatiales, il est indispensable d'améliorer la précision sur les paramètres spectroscopiques ainsi que de mesurer le paramètre de dépendance en température du coefficient d'élargissement par l'air qui n'a jamais été reporté au préalable.

J'ai alors initié une collaboration avec le Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique (GSMA) de l'université de Reims. Après avoir fait l'acquisition d'une diode laser DFB commerciale

accordable en fréquence autour de 2051 nm auprès de Nanoplus, nous avons alors implémenté celle-ci au spectromètre d'absorption à diode laser du GSMA.

L'étude des paramètres spectroscopiques tels que la force de raie  $S_0$ , l'élargissement par l'air  $\gamma_a$  et son coefficient de dépendance en température  $\eta$  ont donc été investigués pour la raie R30 et 4 raies alentours.

Le traitement de ces acquisitions a été effectué par le GSMA et montre des degrés de précision jamais atteints auparavant. Notamment dans le cas de la raie R30, nous intéressant particulièrement, les paramètres spectroscopiques sont donc répertoriés avec les précisions absolues suivantes :

- 0,4% pour  $S_0$
- 0,15% pour  $\gamma_a$
- 0,45% pour  $\eta$

En parallèle, j'ai mis en place un banc de spectroscopie photoacoustique au LMD, dans le but de mesurer le « pressure shift » pour ces raies. Ce dispositif, constitué d'une autre diode laser DFB de Nanoplus dont le thermo-élément Peltier est contrôlé par un programme d'acquisition Labview. Bien que les résultats n'aient pas été satisfaisants, j'ai mis en avant la nécessité de développer et utiliser des cuves photoacoustiques à leur fréquence de résonance pour poursuivre ce type de mesures au LMD.

Enfin, lors de ce chapitre, j'ai étudié l'impact des incertitudes spectroscopiques sur des biais absolus mais aussi des biais différentiels interrégionaux. Cette étude numérique, utilise le simulateur instrumental DIAL pour calculer les biais sur une mesure dans le cas d'erreurs sur les différents paramètres spectroscopiques en fonction des divers profils de température de la colonne de sondage.

J'ai alors mis en avant le fait qu'en termes de biais absolus, les précisions atteintes sur les paramètres spectroscopiques lors de l'étude précédente permettent d'atteindre les spécifications requises. En termes de biais différentiels inter-régionaux, j'ai montré que dans des cas extrêmes de différences de température ou de pression de surface de mesure entre ces régions, le biais différentiel dépasse à peine les spécifications requises. Dans le cas général, ces biais interrégionaux dus aux erreurs spectroscopiques sont inférieurs à 0.1ppm en mesure intégrée avec une fonction de poids constante. De même, cette étude a mis en avant le problème potentiel du aux reliefs de la surface terrestre dans le cas d'une mesure depuis l'espace.

Cependant, un gain en précision sur les valeurs spectroscopiques et notamment sur le « pressure shift » permettrait de réduire encore les biais absolus et différentiels sur une future mesure en colonne intégrée spatiale.

Le Chapitre III traite des sources lasers étudiées durant cette thèse. L'objectif est de posséder des sources de puissance à 2 microns. Ainsi, nous présentons dans un premier temps et de manière générale diverses technologies de laser solides.

J'ai travaillé à la transformation et l'optimisation du système HDIAL au LMD. J'ai alors effectué plusieurs modifications au système tel qu'il était au commencement de cette thèse :

- Le cristal laser YLF co-dopé aux ions Thulmium ( $Tm^{3+}$ ) et Holmium ( $Ho^{3+}$ ) a été remplacé
- La configuration de la cavité en anneau a été réadaptée pour favoriser une émission sur la bande à 2051 nm plutôt qu'à 2064 nm : une émission relaxée d'énergie 12 mJ a été obtenue
- Une tentative d'utilisation comme oscillateurs locaux et d'injection des diodes laser DFB a été effectuée
- L'émission laser de l'Oscillateur Local (OL)  $\lambda_{ON}$  a été spectralement déplacée sur la raie d'absorption R 30.
- L'injection a été réalisée et une émission déclenchée d'énergie  $\sim 10$  mJ a été obtenue

Ce travail expérimental m'a permis de prendre en main toutes les étapes de développement d'une source laser complexe et j'ai donc achevé la production d'une émission de puissance à 2051 nm.

Dans la suite de ce chapitre je montre ma contribution au développement d'une source paramétrique de puissance à 2051 nm pour le sondage de la raie R30. Le contrat PULSNIR (PULsed Laser Source in NIR for LIDAR applications) est un contrat initié par l'Agence Spatiale européenne visant au développement de sources LASER de puissance à conversion de fréquence à 2 microns pour applications DIAL pour le sondage du  $CO_2$ . Après avoir écarté la solution de génération de cette radiation par effet Raman, l'ONERA DMPH est devenu maître d'œuvre pour le développement d'une source OPO (Oscillateur Paramétrique Optique). L'architecture envisagée est une architecture originale à deux cavités imbriquées et intitulé DROPO. En plus du suivi du développement de l'instrument j'ai été chargé plus particulièrement de caractérisations spectrales de cette source :

- L'étude d'une possibilité de stabilisation spectrale de la source par méthode photoacoustique à  $\pm 1.5$  MHz
- La caractérisation de la pureté spectrale de cette source qui doit être supérieure à 99.98 %.

Concernant la stabilisation spectrale, l'étude d'une boucle de contre-réaction utilisant le signal provenant d'une cellule photoacoustique a été étudiée. Une cellule photoacoustique remplie de  $CO_2$  et traversée par la radiation du laser peut être envisagée comme un élément de contrôle spectral, le signal photoacoustique étant alors directement proportionnel à la section efficace et donc à l'absorption de la raie R30 à l'intérieur de la cuve, à la longueur d'onde incidente du laser. Afin de pouvoir mesurer les variations spectrales de la source laser, la cuve doit posséder une détectivité très haute pour pouvoir détecter de très faibles variations spectrales. Afin d'atteindre ces niveaux de précision nous avons envisagé d'utiliser la résonance de la cuve à la fréquence de répétition de la source DROPO (30 Hz). Les résonances longitudinales ou radiales ne pouvant être utilisés à une telle fréquence, il a été envisagé la solution d'utiliser la fréquence de résonance de Helmholtz. Une modélisation montre que le gain d'un tel système n'est pas significatif. Cependant nous montrons qu'il est possible, en utilisant le mode principal de résonance d'une cuve, d'atteindre la sensibilité nécessaire pour ce projet.

Pour le contrôle de la pureté spectrale, j'ai utilisé une cellule multipassages remplie de CO<sub>2</sub> pur. La raie d'absorption R30 dans cette cuve est alors utilisée comme un filtre à encoches, la part de la radiation transmise hors de la raie étant totalement transmise alors que celle émise sur la raie est pratiquement totalement absorbée.

L'étalonnage du filtre (*i.e.* de la transmission de la raie) est effectué par deux expériences. Cette caractérisation est effectuée à l'aide d'une source diode laser DFB progressivement accordée en fréquence le long de la raie d'absorption pendant les deux expériences, l'une utilisant une cellule photoacoustique comme référence spectrale, l'autre utilisant les franges d'interférence d'un Fabry-Perot. L'accord entre les deux expériences est très bon. La transmission de la cuve ayant pu être mesurée au moyen de ces techniques jusqu'à un niveau de transmission de  $2.10^{-3}$ . La pureté spectrale de la source peut alors être caractérisée à un niveau de 99.8 % qui est conforme aux attentes d'une telle source pour une application de mesures DIAL si on accepte un biais maximal de 1 ppm obtenu en utilisant un filtre interférentiel sur le trajet optique du faisceau.

Il est à noter qu'en parallèle de cette étude, nous avons, au sein du LMD, développé une méthode de correction à posteriori des erreurs d'une mesure DIAL induites par les fluctuations spectrales de la source laser en s'appuyant sur le signal provenant d'une cellule photoacoustique.

Dans ce Chapitre III, j'ai donc, après un rappel des principes de base de l'optique non-linéaire et des OPO, présenté le développement de la source réalisé à l'ONERA. Les principales caractéristiques obtenues en termes de puissance, de qualité de faisceau et de propriétés spectrales sont conformes aux spécifications.

Enfin je présente le couplage de cette source DROPO et de la cellule multipassages pour la mesure de la pureté spectrale de cette source, dont je présente les résultats. Le principe de la mesure que j'ai défini et le protocole expérimental suivi sont présentés. L'émission du DROPO est accordée au centre de la raie d'absorption (*i.e.* du filtre) pour la mesure. Celle-ci est en accord avec les spécifications puisque j'ai caractérisé cette pureté spectrale comme supérieure à 99.8%.

Enfin le Chapitre IV présente la dernière étude de cette thèse, à savoir l'étude de statistique des signaux et de la réflectivité lors d'utilisation de cibles topographiques pour effectuer la mesure. Cette étude est effectuée, d'une part sur des tirs en détection directe aéroportés à 1.6 microns, mesures réalisées par le DLR et d'autre part à partir de tirs réalisés avec le système HDIAL au sol au LMD.

Après un rappel de la théorie statistique des signaux, j'applique des codes numériques simples de traitement. Les propriétés des différentes cibles sont alors énoncées avec un intérêt particulier porté aux arbres.

J'ai alors pu montrer qu'en dépit d'une statistique moins favorable pour la mesure que certaines cibles dures, la mesure spatiale (ou aéroportée) utilisant la canopée comme cible est envisageable en intégrant tout le signal rétrodiffusé par les arbres des pieds à la cime. Dans ce cas précis nous améliorons la statistique par rapport au cas ne traitant que le signal réfléchi par la cime des arbres.

Pour déterminer un contenu intégré de la colonne de CO<sub>2</sub> atmosphérique, nous définissons alors une hauteur moyenne pondérée.

Nous avons alors montré que dans le cas de mesures sur la canopée, les variations d'altitude moyenne pondérée ainsi que la variation de réflectivité en cas de non-superposition des empreintes ON et OFF conduisent à des erreurs compatibles avec les objectifs sur la mesure du contenu intégré en colonne totale du CO<sub>2</sub> atmosphérique et qu'une détection directe plutôt qu'hétérodyne sera privilégiée pour un tel système.

Au cours de cette thèse, j'ai donc par le biais d'un travail, en grande partie expérimental, mais aussi à partir d'études numériques et de traitement de données, contribué à la préparation d'une future mission spatiale de mesure du rapport de mélange en CO<sub>2</sub> en colonne intégrée. Cette étude s'est notamment focalisée sur le domaine à 2 microns où la fonction de poids est avantageuse pour des mesures dans les basses couches de l'atmosphère bien que le domaine à 1.6 microns puisse toujours être envisagé. Les développements technologiques montrent que désormais des sources laser prometteuses et se rapprochant des caractéristiques très exigeantes d'une mission spatiale sont disponibles. L'amélioration de la précision des paramètres spectroscopiques permet elle aussi d'envisager une mesure avec des biais correspondants aux attentes pour une restitution précise des flux de CO<sub>2</sub> de surface. Nous avons de même étudié la potentialité d'une mesure en contenu intégré sur cibles topographiques et suggéré des méthodes de traitement. L'ensemble des erreurs associées aux divers chapitres étudiés ici (propriétés de la source laser, détermination des coefficients spectroscopiques, propriétés de la cible réfléchissante) sont récapitulées dans l'Annexe B et comparée aux objectifs. J'ai donc montré avec ce travail que la mesure du CO<sub>2</sub> atmosphérique par LIDAR DIAL spatial en colonne totale intégrée pourrait permettre de déterminer avec précision et de manière globale les flux de surface du CO<sub>2</sub> atmosphérique.

## **Annexe A : La spectroscopie photoacoustique**

L'effet photoacoustique est connu depuis le XIX<sup>ème</sup> siècle et les expériences de Bell en 1880. Un faisceau de lumière incident sur un milieu (solide ou fluide) est absorbé, en partie ou totalement, par celui-ci. S'ensuit alors un échauffement du milieu induit par cette absorption. Si le faisceau incident est modulé, c'est-à-dire si une variation périodique de son intensité est imposée, l'échauffement sera lui aussi périodique. Le milieu va alors se dilater sous l'effet de l'augmentation de température, et se contracter lorsqu'il n'est pas illuminé.

Dans un gaz nous aurons donc une variation périodique de la pression directement induite par l'absorption périodique de la lumière. Cette variation de pression peut alors être mesurée par un microphone. Nous verrons par la suite que l'amplitude de cette variation de pression, et donc du signal induit (dans le cas d'une réponse linéaire du microphone) est directement lié au coefficient d'absorption.

L'effet photoacoustique peut être utilisé pour la détection de gaz au même titre que la détection directe (spectroscopie d'absorption). La détection photoacoustique se distingue néanmoins des méthodes directes en plusieurs points. C'est une méthode intrinsèquement très sensible (utilisation de cuves acoustiques résonantes), et elle ne nécessite pas des parcours optiques importants. Les cuves photoacoustiques sont en général de petite taille, mais la pression du gaz dans la cuve doit être suffisante pour permettre un fonctionnement correct du microphone. La photoacoustique permet notamment la mesure de raies d'absorption à pression atmosphérique. Dans des schémas d'absorption directe, au contraire, on mesure généralement les raies avec des pressions de gaz très faibles et de longs parcours optiques pour augmenter la sensibilité. La largeur des raies des lasers est donc beaucoup moins critique que lors de sondages de raies à faible pression (i.e avec une largeur de raie très faible).

Nous allons désormais nous attacher à décrire le principe de base de l'effet photoacoustique. Lorsque les molécules gazeuses sont soumises à un faisceau lumineux incident, elles vont alors absorber

certaines longueurs d'onde, correspondant à l'excitation de ces molécules dans des niveaux électroniques, vibrationnels ou rotationnels. Ces molécules se désexcitent ensuite au travers de différents processus physiques : transferts radiatifs (émission spontanée), transfert d'énergie en énergie translationnelle, réaction photochimique. Dans le cas des niveaux vibrationnels, la désexcitation se fait principalement par transfert en énergie translationnelle car le temps caractéristique de cette désexcitation est très inférieur à la durée de vie radiative des niveaux et l'énergie des photons est trop faible pour induire des réactions photochimiques. L'augmentation de l'énergie cinétique du gaz va se traduire par des collisions entre molécules, d'où un transfert local de chaleur et une augmentation de la température du gaz. Il y a alors expansion du gaz, suivi par une contraction lorsque l'absorption cesse, et une onde acoustique est alors créée.

La spectroscopie photoacoustique consiste alors généralement à placer le gaz à analyser au sein d'une cellule fermée où l'onde acoustique créée sera mesurée par un microphone.

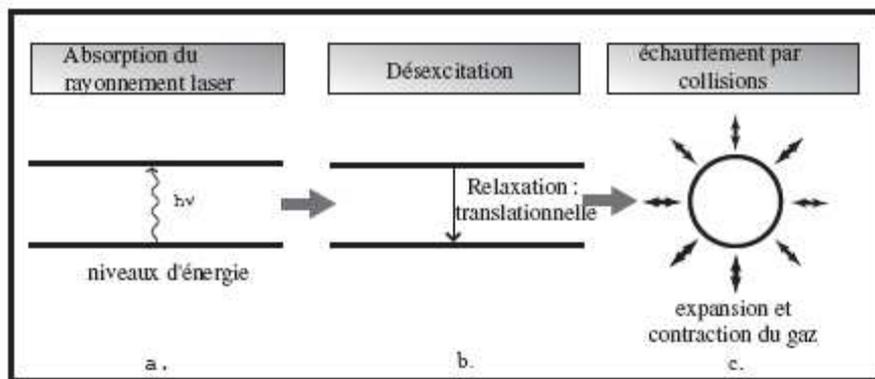


Fig.A. 1 : Génération du signal photoacoustique : a. absorption du rayonnement laser par les molécules et transition vers un état excité. b. : désexcitation des molécules majoritairement par collisions. c. : transfert de l'énergie cinétique sous forme de chaleur induisant une variation de température et donc une variation de pression

## A.1. Le signal acoustique en mode continu modulé

### A.1.1. Equations de base

Dans le cas de l'onde acoustique créée par absorption de lumière, l'équation d'onde ne peut pas prendre la forme classique d'une équation de Helmholtz puisqu'il faut tenir compte d'un terme source qui correspond à l'énergie absorbée par le gaz. Comme tout fluide, le gaz contenu dans la cuve obéit aux équations de Navier Stokes, c'est-à-dire :

- l'équation de conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{u}) = 0 \quad (\text{A.1})$$

- l'équation de conservation de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial (\rho \vec{u})}{\partial t} + \vec{\nabla} P = 0 \quad (\text{A.2})$$

Où  $\rho$  est la masse volumique du gaz,  $\vec{u}$  est sa vitesse et  $P$  le tenseur des contraintes visqueuses qui est composé d'une partie symétrique correspondant à la pression et une partie antisymétrique qui correspond aux contraintes de cisaillement :  $P = D - PI$

Où  $P$  est la pression et  $I$  le tenseur unité. Les composantes de  $D$  sont données par :  $D_{ij} = -\mu \frac{\partial u_i}{\partial x_j}$

Le terme  $D$  est nul si nous considérons que la viscosité du gaz est négligeable. Cependant, dans le cas de cellules photoacoustiques de faible volume ceci n'est généralement pas le cas et nous devons prendre en compte l'influence des parois.

Mais, dans le cas où cette supposition est valable, (A.2) peut se réécrire comme :

$$\frac{\partial(\rho\vec{u})}{\partial t} + \vec{\nabla}P = 0 \quad (\text{A.3})$$

A partir de cette équation et de l'équation (A.1), nous pouvons donc écrire l'équation de l'onde en photoacoustique [Morse 1986] :

$$\nabla^2 p - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = \frac{(\gamma-1)}{c^2} \frac{\partial H}{\partial t} \quad (\text{A.4})$$

Où  $H$  est la densité de chaleur générée dans la cuve et  $\gamma$  le coefficient adiabatique (rapport des capacités calorifiques à pression et volume constants).

### **A.1.2. Génération du signal photoacoustique**

L'apparition de l'onde acoustique suit l'absorption du faisceau lumineux.

Cependant, il est important de noter que deux schémas de génération de signal photoacoustique peuvent prendre place : la génération par un faisceau continu modulé ou la génération par un faisceau pulsé. C'est le temps d'illumination (et d'obscurité) de l'échantillon qui diffère dans les deux cas. Nous allons nous intéresser dans un premier temps au comportement photoacoustique modulé.

Le modèle le plus simple considère seulement deux niveaux d'énergie inférieure 1 et supérieure 2 peuplés par un nombre de molécules  $N_1$  et  $N_2$  avec  $N = N_1 + N_2$ .

Alors :

$$\frac{dN_2}{dt} = (N - N_2)\phi\sigma - N_2\left(\phi\sigma + \frac{1}{\tau}\right) \quad (\text{A.5})$$

$\Phi$  est le flux de photons incident dans la cuve ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) et  $\sigma$  est la section efficace de la transition (en  $\text{cm}^2$ ).  $\tau$  est la durée de vie totale de l'état excité. La relaxation peut se faire de façon radiative (durée de vie  $\tau_r$ ) ou non radiative (durée de vie  $\tau_{nr}$ ) essentiellement par transfert vibration-translation V-T. Nous pouvons donc écrire :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}}$$

Aux pressions typiques utilisées dans un schéma photoacoustique, la durée de vie V-T est de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-6}$  s alors que la durée de vie radiative est elle de  $10^{-1}$  à  $10^{-3}$  s. La désexcitation du niveau excité se fait donc en quasi-totalité par collisions et transfert d'énergie cinétique du gaz. L'absorption étant généralement faible et  $N \gg N_2$ , nous pouvons alors écrire :

$$\frac{dN_2}{dt} = N\phi\sigma - \frac{N_2}{\tau} \quad (\text{A.6})$$

Si le faisceau laser est modulé à la fréquence  $f = \frac{\omega}{2\pi}$

$$\phi(\vec{r}, t) = \phi_0(\vec{r}) \cdot \exp(i\omega t) \quad (\text{A.7})$$

La densité de population dans l'état excité s'exprime alors par :

$$N_2(\vec{r}, t) = \frac{N\phi_0(\vec{r})\sigma}{[1 + \exp(i\omega\tau)]^{1/2}} \cdot \exp(i\omega t - \theta) \quad (\text{A.8})$$

$$\theta = \arctan(\omega\tau)$$

La quantité de chaleur produite est donnée par :

$$H(\vec{r}, t) = N_2(\vec{r}, t) \cdot h\nu \quad (\text{A.9})$$

Avec  $h\nu$  la différence d'énergie entre le niveau fondamental et le niveau excité.

L'intensité du faisceau incident est :

$$I_0(\vec{r}) = \phi_0(\vec{r}) \cdot h\nu \quad (\text{A.10})$$

Nous pouvons donc écrire :

$$H(\vec{r}, t) = H_0(\vec{r}) \exp(i\omega t - \theta) \quad (\text{A.11})$$

Avec :

$$H_0(\vec{r}) = \frac{N\sigma I_0(\vec{r})}{[1 + (\omega\tau)^2]^{1/2}} \quad (\text{A.12})$$

Si la fréquence de modulation est suffisamment faible pour que  $\omega\tau \ll 10^{-6}\text{s}^{-1}$ , alors cette relation se résout en :  $H(\vec{r}, t) = H_0(\vec{r}) \exp(i\omega t)$

Avec :

$$H_0(\vec{r}) = N\sigma I_0(\vec{r}) = \alpha(\nu) I_0(\vec{r}) \quad (\text{A.13})$$

Où  $\alpha(\nu)$  est le coefficient d'absorption à la fréquence  $\nu$ .

## A.2. Les cuves résonnantes

La plupart des cuves utilisées en spectroscopie photoacoustique sont des cuves résonnantes, où le signal acoustique est amplifié par la géométrie de la cavité. Très souvent, cette cavité est cylindrique. Dans une telle cavité, un certain nombre de modes de résonance apparaissent ; ce sont les modes propres de l'équation d'onde homogène définie en (A.4).

$$\nabla^2 p - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{A.14})$$

En tenant compte des conditions aux limites (vitesse acoustique nulle sur les parois du résonateur), le n-ième mode propre d'un cylindre de rayon  $r$  et de longueur  $L$  peut s'exprimer par :

$$p_n(\vec{r}) = p_{j,m,q}(r, \phi, z) = J_m(\pi \alpha_{j,m}) \cos(m\phi) \cos\left(q\pi \frac{z}{L}\right) \quad (\text{A.15})$$

Ici  $r$ ,  $\Phi$ , et  $z$  représentent les coordonnées cylindriques avec  $z$  la coordonnée selon l'axe du cylindre,  $r$  la coordonnée radiale et  $\Phi$  la coordonnée azimuthale.  $J_m$  est la fonction de Bessel d'ordre  $m$  et  $\alpha_{jm}$  sa j-ième racine. Si on considère que les pertes dans la cuve photoacoustique sont faibles, on peut développer la pression en une série des fonctions propres  $p_n(\vec{r})$ .

$$p(\vec{r}, t) = A_0(t) + \sum_n A_n(t) p_n(\vec{r}) \quad (\text{A.16})$$

Où  $p_n(\vec{r})$  est la solution de l'équation d'onde. On peut d'ailleurs considérer une dépendance en temps de la forme  $(i\omega t)$ .

$$-\omega^2 A_0 + \sum_n (\omega_n^2 - \omega^2) A_n p_n(\vec{r}) = i\omega(\gamma-1)H(\vec{r}) \quad (\text{A.17})$$

La valeur de  $A_0$  est calculée en intégrant cette équation sur le volume du résonateur et en tenant compte que l'intégrale sur ce volume de tous les modes propres  $p_n$  vaut zéro.

$$A_0 = \frac{(\gamma-1) \int H(\vec{r}) dV}{i\omega V_{cuve}} \quad (\text{A.18})$$

On peut également calculer l'amplitude des modes  $p_n$  en multipliant l'équation (A.18) puis en intégrant sur le volume de la cuve. Comme les modes propres sont orthogonaux, on obtient :

$$A_n = \frac{i\omega(\gamma-1) \int H(\vec{r}) p_n(\vec{r}) dV}{\left( \omega_n^2 - \omega^2 + i \frac{\omega \omega_n}{Q_n} \right) \int p_n(\vec{r})^2 dV} \quad (\text{A.19})$$

Le facteur de qualité  $Q_n$  du mode  $n$  est introduit pour tenir compte des pertes.

La densité de chaleur  $H(\vec{r})$  dépend de l'intensité lumineuse et du coefficient d'absorption des molécules présentes dans la cuve selon l'équation (A.13).

L'intensité lumineuse elle-même peut s'exprimer comme le produit de la puissance moyenne dans la cuve  $W_L$  multiplié par une fonction représentant sa dépendance spatiale.

$$H(\vec{r}) = \alpha(\nu)I_0(\vec{r}) = W_L g(\vec{r})\alpha(\nu) \quad (\text{A.20})$$

Où  $g(\vec{r})$  est la distribution spatiale normalisée de l'intensité du faisceau incident (l'intégrale de  $g(\vec{r})$  sur la section de cuve vaut 1).

$$A_0 = \frac{(\gamma-1)\alpha(\nu)LW_L}{i\omega V_{cuve}} \quad (\text{A.21})$$

$$A_n = \frac{i\omega}{\left(\omega_n^2 - \omega^2 + \frac{i\omega\omega_n}{Q_n}\right)} \frac{(\gamma-1)\alpha(\nu)LW_L}{V_{cuve}} F_n \quad (\text{A.22})$$

$$\text{Avec } F_n = \frac{\frac{1}{L} \int g(\vec{r}) p_n(\vec{r}) dV}{\frac{1}{V_{cuve}} \int p_n(\vec{r})^2 dV}$$

Le terme  $F_n$  est un terme géométrique qui traduit le recouvrement spatial entre les modes acoustiques de la cuve et le faisceau lumineux. Par exemple un mode azimutal ne peut être excité par un faisceau dirigé selon l'axe de la cuve.

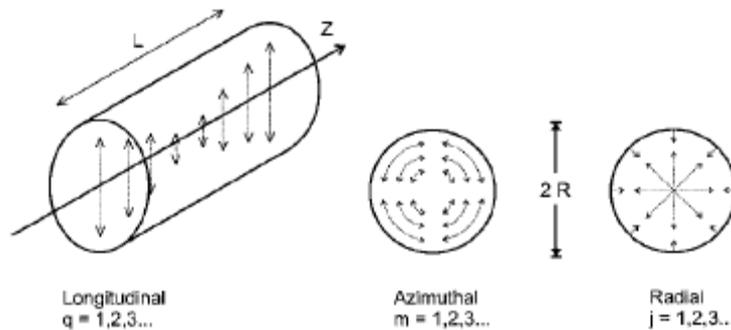


Fig.A. 2 : Schéma des trois types de résonance existants dans le cas d'une cavité cylindrique, tiré de [Miklos 2001]

Il est d'ailleurs à noter qu'il n'existe pas à proprement parler de cellules résonantes ou non-résonantes, chaque cellule possède des fréquences de résonance propres définies par la géométrie de la cellule. Ainsi si une cellule est utilisée à une fréquence de modulation inférieure à sa fréquence de résonance propre, alors celle-ci est utilisée en mode non-résonant.

## Annexe B : Erreurs associées lors d'une mesure DIAL spatiale

Le Tableau suivant récapitule les différentes erreurs pouvant intervenir lors d'une mesure DIAL spatiale du CO<sub>2</sub> en colonne totale intégrée sur la raie R30 étudiée lors de cette thèse. Les paramètres étudiés dans cette thèse figurent en rouge dans le tableau. L'erreur et le biais totaux sont déduits de sommes quadratiques.

**Tab.B. 1 : Erreurs associées à une mesure DIAL sur la raie R30 du CO<sub>2</sub> atmosphérique**

<b>Paramètres instrumentaux</b>	Pureté spectrale $p$	Biais	0.1 ppm
	Largeur de raie laser $\Delta\nu$	Biais	<0.001 ppm
	Stabilité spectrale	Erreur statistique	0.25 ppm
	Bruit de détection	Erreur statistique	0.7 ppm
<b>Paramètres météorologiques</b>	Température $T$	Erreur statistique	0.34 ppm
	Pression de surface $p_{surf}$	Biais global	0.55 ppm
	Humidité spécifique $\rho_w$	Biais / différentiel	0.13 ppm
<b>Paramètres spectroscopiques</b>	Force de raie $S$	Biais / différentiel	1.47 ppm
	Elargissement par l'air $\gamma_a$	Biais / différentiel	0.37 ppm / 0.032 ppm
	Dépendance en température $\eta$	Biais / différentiel	0.1 ppm / 0.066 ppm
	Energie du niveau fondamental $E''$	Biais / différentiel	Négligeable
	Pressure shift $p_{shift}$	Biais / différentiel	0.5 ppm / 0.037 ppm
<b>Paramètres liés aux cibles (canopée)</b>	Variation d'altitude $\Delta z$	Erreur statistique	0.045 ppm
	Variation relative de réflectivité $\Delta\rho/\rho$	Erreur statistique	0.0014 ppm
	<b>Total (objectif : biais : 1.64 ppm / biais différentiel : 0.164 ppm)</b>		<b>1.18 ppm / 0.073 ppm</b>

## Liste des illustrations

Fig.1. 1 : Implication et importance du dioxyde de carbone ( $CO_2$ ) dans le changement climatique global.....	16
Fig.1. 2 : Cycle global du carbone : en noir sont représentés les processus naturels et en rouge les processus anthropiques [Sarmiento 2002].....	17
Fig.1. 3 : Evolution de la concentration de $CO_2$ lors du dernier millénaire [Sarmiento 2002] .....	18
Fig.1. 4 : Evolution temporelle de la couche limite atmosphérique.....	21
Fig.1. 5 : Variation spatiale de la hauteur de CLA en fonction des conditions synoptiques. (-) : hauteur de la CLA, (- -) : hauteur maximale d'air influencée par la surface .....	21
Fig.1. 6 : Cartographie du réseau de mesure GLOBALVIEW- $CO_2$ .....	24
Fig.1. 7 : Schéma de principe des mesures spatiales passives : sondage dans l'infrarouge thermique (gauche) et absorption différentielle dans l'IR (droite).....	26
Fig.1. 8 : Différents régimes de diffusion optique en fonction du rapport : taille caractéristique de la particule / longueur d'onde .....	30
Fig.1. 9 : Schéma de principe de base d'un LIDAR.....	32
Fig.1. 10 : Diagramme temporel d'un LIDAR impulsionnel.....	32
Fig.1. 11 : Principe de la mesure DIAL .....	34
Fig.1. 12 : Transmissions atmosphériques dans les domaines à $1.6 \mu m$ (a) et $2 \mu m$ (b) .....	41
Fig.1. 13 : Optimisation du niveau d'énergie fondamental pour minimiser la dépendance à la température en fonction de différents déplacements en fréquence par rapport au centre de raie pour différentes pressions atmosphériques caractéristiques.....	43
Fig.1. 14 : Erreur DIAL hétérodyne en fonction de l'épaisseur optique et du rapport d'énergie $E_{on}/E_{off}$ .....	45
Fig.1. 15 : Erreur DIAL directe (limite de bruit de grenaille) en fonction de l'épaisseur optique et du rapport d'énergie $E_{on}/E_{off}$ .....	46
Fig.1. 16 : Epaisseur optique $\tau$ pour 3 positions spectrales différentes sur la raie R 30.....	47
Fig.1. 17 : Fonction de poids pour les trois raies présélectionnées .....	49
Fig.1. 18 : Fonction de poids cumulée pour les trois raies présélectionnées .....	49
Fig.1. 19 : Fonction de poids à pression constante pour les trois raies présélectionnées .....	50
Fig.1. 20 : Fonction de poids à pression constante cumulée pour les trois raies présélectionnées .....	50
Fig.2. 1 : Représentation de la molécule de $CO_2$ .....	57
Fig.2. 2 : Schéma bloc expérimental du spectromètre .....	64
Fig.2. 3 : Transmission des raies d'absorption du $CO_2$ modélisée avec un profil de Voigt d'après les paramètres spectroscopiques de HITRAN et situées dans le domaine	

<i>d'accordabilité de la diode entre 4872 et 4878 cm<sup>-1</sup>. L=203.8 cm, p=39.5 mbar et T= 293 K</i>	65
.....	
Fig.2. 4 : Spectromètre à diode laser du GSMA	67
Fig.2. 5 : Exemple de spectres d'absorption enregistrés pour la transition R30 du CO <sub>2</sub> à 4875.75 cm <sup>-1</sup> . Les profils expérimentaux et les ajustements par profil de Voigt sont représentés. Les résidus calculés sont présentés sur les figures du bas. Les conditions expérimentales sont : (a) p = 3.71 mbar, T = 293 K, L = 203.8 cm. (b) p = 166.1 mbar, T = 295 K, L = 1003.8 cm et ρ <sub>CO2</sub> = 0.009.	69
Fig.2. 6 : Largeur à mi hauteur de la transition R 30 déterminée par un profil de Voigt en fonction de la pression et leurs régressions linéaires pour différentes températures	71
Fig.2. 7 : ln(γ) en fonction de -ln(T) pour déterminer η	73
Fig.2. 8 : Signal photoacoustique et franges d'interférence du Fabry-Pérot en fonction de la résistance du Peltier pour une acquisition avec CO <sub>2</sub> pur (p=50 mbar)	77
Fig.2. 9 : Ajustements gaussiens des spectres photoacoustiques obtenus pour du CO <sub>2</sub> pur et un mélange CO <sub>2</sub> +air, et leurs calibrations relatives pour la raie R28	79
Fig.2. 10 : Ajustements gaussiens des spectres photoacoustiques obtenus pour du CO <sub>2</sub> pur et un mélange CO <sub>2</sub> +air, et leurs calibrations relatives pour la raie 30	80
Fig.2. 11: Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil STA de l'ESA	83
Fig.2. 12: Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil SAW de l'ESA	83
Fig.2. 13 : Profils de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau pour le profil SAW de l'ESA	84
Fig.2. 14 : Biais induits par une erreur de +0.01 cm <sup>-1</sup> sur E''	85
Fig.2. 15 : Biais induits par une erreur de +0.15 % sur γ <sub>0</sub>	85
Fig.2. 16 : Biais induits par une erreur de +0.45% sur η	86
Fig.2. 17 : Biais induits par une erreur de +2.6% sur p <sub>shift</sub>	86
Fig.3. 1 : Schéma bloc du LIDAR HDIAL du LMD tiré de [Gibert 2005]	93
Fig.3. 2 : Biais induit par un décalage spectral de l'émission laser monomode par rapport à la fréquence centrale d'émission visée : 2051.017 nm (146.167 THz)	97
Fig.3. 3 : Erreur induite par une erreur de 10% sur la largeur spectrale de l'émission laser en fonction de la largeur de raie d'émission pour une fréquence centrale d'émission à 2051.017 nm.	98
Fig.3. 4 : Erreur induite en fonction de la pureté spectrale de la source pour une émission à 2051.017 nm	100
Fig.3. 5 : Erreur en % sur le rapport de mélange en CO <sub>2</sub> en fonction de la pureté spectrale en utilisant des filtres de diverses largeurs spectrales tiré de [Ehret 2008]	101
Fig.3. 6 : Schéma général de la configuration Raman envisageable (tiré de [PULSNIR 2008])	102
.....	
Fig.3. 7 : Conservation de l'énergie et du moment dans un processus optique paramétrique	104
.....	
Fig.3. 8 : Emission multimode d'un OPO comprise sous la bande de gain paramétrique	104
Fig.3. 9 : Représentation de la puissance générée en fonction de la longueur de pénétration dans le matériau par rapport à la longueur de cohérence dans le cas d'accord de phase, de non-accord de phase et de quasi-accord de phase	105
Fig.3. 10. : SROPO avec un coupleur de sortie VBG [Jacobsson 2005]	108
Fig.3. 11 : OPO doublement résonant à cavité simple	110

Fig.3. 12 : Diagramme de Giordmaine et Miller : mise en évidence de cluster de modes dans un OPO doublement résonant .....	111
Fig.3. 13 : Emission multimode sous la courbe de gain paramétrique d'un DROPO à cavité simple .....	111
Fig.3. 14 : OPO doublement résonant à cavités séparées .....	111
Fig.3. 15 : Diagramme de Giordmaine-Miller : émission monomode dans un DROPO.....	112
Fig.3. 16 : Design préliminaire du DROPO .....	113
Fig.3. 17 : Design préliminaire de l'unité de conversion de fréquence.....	115
Fig.3. 18 : Architecture optique (gauche) et architecture mécanique (droite) du DROPO...	116
Fig.3. 19 : Energie de sortie du DROPO en fonction de l'énergie de l'onde pompe incidente (gauche) et profils temporels du signal complémentaire du DROPO et de la pompe .....	117
Fig.3. 20: Profil spatial de sortie du préamplificateur et profil temporel du signal complémentaire sans et avec préamplification .....	117
Fig.3. 21 : Faisceau de sortie de l'amplificateur (gauche) et profil temporel du signal complémentaire sans et avec amplification et pompe incidente (droite).....	118
Fig.3. 22 : Mesure du facteur de qualité $M^2$ du faisceau déduit des waists vertical (gauche) et horizontal (droite) .....	118
Fig.3. 23 : Section efficace (haut), dérivée de la section efficace par rapport à la fréquence (milieu) et dérivée relative de section efficace (bas) pour la raie R30 et les raies avoisinantes pour trois pressions .....	121
Fig.3. 24 : Facteur de qualité acoustique dans le cas d'une cellule DDHR modélisée par la théorie EHR pour 3 pressions différentes .....	122
Fig.3. 25 : Comportement spectral à court terme du DROPO en utilisant la procédure PULSNIR et enregistré à l'aide du lambdamètre .....	124
Fig.3. 26 : Schéma de l'expérience d'étalonnage de la raie d'absorption de la cellule multipassages .....	126
Fig.3. 27 : Spectre de transmission théorique de l'étalon Fabry-Pérot Ge, $e=25.072$ mm, $T=298.5$ K .....	127
Fig.3. 28 : Transmissions, théorique simulée d'après les données de HITRAN 2004, et expérimentale étalonnée à l'aide d'un étalon Fabry-Perot, de la raie R30 après traversée de la cellule multi-passages avec $p=160$ hPa et $L=11.65$ m .....	128
Fig.3. 29 : Schéma de l'expérience de calibration de la raie d'absorption de la cellule multipassages par signal photoacoustique .....	130
Fig.3. 30: Ajustement lorentzien du signal photoacoustique .....	130
Fig.3. 31 : Transmissions expérimentale étalonnée à l'aide d'une cellule photoacoustique et simulée de la raie R 30 après traversée de la cellule multipassages .....	131
Fig.3. 32 : Alignement de la cellule multipassages en utilisant un détecteur HgCdZnTe : le premier pulse correspond à la réflexion sur la face d'entrée et le second temporellement décalé est le pulse transmis par la cuve .....	132
Fig.3. 33: Photographie du couplage entre l'unité de conversion de fréquence et la cellule multipassages .....	133
Fig.3. 34 : Mesure de la pureté spectrale de la source : signal enregistré à la photodiode InGaAs hors de la raie d'absorption (avec densités optiques) et dans la raie (gauche) et mesure de fréquence du signal émis doublé en fréquence par le lambdamètre (le centre de raie est représenté par une ligne pleine et les pointillées représentent les limites du filtre Notch à $\pm 400$ MHz du centre de raie) (droite).....	134

Fig.4. 1 : Erreur statistique relative sur une mesure relative de l'épaisseur optique $\sigma(\tau)/\tau$ en fonction de la corrélation des signaux tir à tir $\rho(P_p, P_q)$ et de la corrélation entre les puissances ON et OFF $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$ tiré de [Gibert 2005] .....	147
Fig.4. 2 : Exemple de signal direct réfléchi sur arbres .....	150
Fig.4. 3 : Distribution des intensités sur une portion de route. $N = 200$ tirs.....	151
Fig.4. 4: Distribution des intensités sur herbe sèche $N = 120$ tirs .....	152
Fig.4. 5 : Distribution des intensités des signaux sur arbres ( $N=500$ tirs).....	152
Fig.4. 6 : Distance en mètre entre les différentes réflexions dans l'arbre .....	154
Fig.4. 7 : Distribution des intensités des tirs atteignant le sol lors d'une mesure sur arbre. ....	155
Fig.4. 8 : Distribution des intensités réfléchies lors de tirs sur arbres estimé sur toute la série temporelle.....	156
Fig.4. 9 : Schéma de principe de tirs sur canopée a multiples réflexions.....	157
Fig.4. 10 : Représentation schématique de deux empreintes ON et OFF non superposées ..	159
Fig.4. 11 : Principe de mesure de la mission A-SCOPE et schéma du changement d'échelle effectué à partir des données aéroportées du DLR à $1.6 \mu\text{m}$ [Amediek 2009] .....	160
Fig.4. 12 : Variabilité de la réflectivité d'empreinte à empreinte de 90 m pour une dérive du pointé de $1 \mu\text{rad}$ (décalage de 0.45 m).....	161
Fig.4. 13 : Variabilité de la réflectivité d'empreinte à empreinte de 90 m pour une dérive du pointé de $10 \mu\text{rad}$ (décalage de 4.5 m).....	162
Fig.4. 14 : Altitude moyenne pondérée pour la 1 <sup>ère</sup> série de mesures sur canopée étudiée ...	164
Fig.4. 15 : Altitude moyenne pondérée pour la 2 <sup>nd</sup> e série de mesures sur canopée étudiée ...	164
Fig.4. 16 : Erreur sur la mesure de colonne totale intégrée de $\text{CO}_2$ atmosphérique induite par les variations d'altitude pondérée dans une empreinte spatiale en fonction de la réflectivité du sol .....	165
Fig.4. 17 : Profil temporel moyen de l'impulsion et du signal rétrodiffusé lors d'une série d'acquisition sur arbres .....	167
Fig.4. 18 : Histogrammes et variances normalisées de tirs sur arbres dans le domaine temporel. $N=300$ .....	168
Fig.4. 19 : Spectre fréquentiel de l'impulsion émise (gauche) et du signal réfléchi sur un arbre (droite).....	169
Fig.4. 20 : Histogrammes et variances normalisées de tirs sur arbres dans le domaine fréquentiel.....	170
Fig.4. 21: Coefficients de corrélation tir à tir $\rho(P_p, P_q)$ (haut) et entre les puissances ON et OFF $\rho(P_{ON}, P_{OFF})$ (bas).....	171
Fig.A. 1 : Génération du signal photoacoustique : a. absorption du rayonnement laser par les molécules et transition vers un état excité. b. : désexcitation des molécules majoritairement par collisions. c. : transfert de l'énergie cinétique sous forme de chaleur induisant une variation de température et donc une variation de pression .....	181
Fig.A. 2 : Schéma des trois types de résonance existants dans le cas d'une cavité cylindrique, tiré de [Miklos 2001].....	185

## Liste des tableaux

Tab.1. 1 : Analyse d'échelle [Stull 1988].....	20
Tab.1. 2 : Bandes d'absorption du CO <sub>2</sub> atmosphérique et sections efficaces des raies correspondantes .....	31
Tab.1. 3 : Schéma du processus de sélection de la raie pour une mesure DIAL CO <sub>2</sub> spatiale .....	39
Tab.1. 4 : Raies d'absorption présélectionnées pour une mesure DIAL spatiale.....	46
Tab.1. 5 : Pourcentage de la fonction de poids cumulée dans la couche limite pour les configurations DIAL présélectionnées .....	51
Tab.2. 1 : Caractéristiques de la diode laser .....	65
Tab.2. 2 : Raies du dioxyde de carbone situées dans le domaine d'accordabilité de la diode laser .....	66
Tab.2. 3 : Intensité de raie à 296 K dans la région spectrale 2.05 µm pour les raies R26 à R 34 du CO <sub>2</sub> et comparaison avec les études précédentes. Les nombres entre parenthèses correspondent à l'incertitude sur la dernière décimale .....	70
Tab.2. 4 : Incertitude en % sur la détermination de S <sub>0</sub> lors de cette étude et des précédentes	70
Tab.2. 5 : Coefficient d'élargissement par l'air γ <sub>air</sub> dans la région spectrale 2.05 µm pour les raies R26 à R 34 du CO <sub>2</sub> et comparaison avec les études précédentes. Les nombres entre parenthèses correspondent à l'incertitude sur la dernière décimale.....	72
Tab.2. 6 : Incertitude en % sur la détermination de γ <sub>air</sub> lors de cette étude .....	72
Tab.2. 7 : Coefficients d'élargissements par l'air déterminés et incertitudes déterminées à plusieurs températures et coefficient de dépendance en température et comparaison avec les études précédentes.....	74
Tab.2. 8 : Caractéristiques de la diode laser DFB Nanoplus.....	76
Tab.2. 9 : Valeurs mesurées de « pressure shift » et incertitudes et comparaison aux valeurs obtenues.....	80
Tab.2. 10 : Biais absolus induits par des erreurs sur les paramètres spectroscopiques de la raie R30 dans le cas d'un profil de température standard .....	88
Tab.2. 11 : Biais différentiels induits par des erreurs sur les paramètres spectroscopiques de la raie R30 et par des différences de température (TRO-SAW) ou de pression (HP-BP) interrégionales .....	88
Tab.3. 1 : Développements de sources laser pour applications LIDAR de mesure de CO <sub>2</sub> à 2 µm .....	92

Tab.3. 2 : <i>Spécifications expérimentales pour la source LASER du projet PULSNIR</i> .....	96
Tab.3. 3 : <i>Biais induits par les paramètres météorologiques et les spécifications visées pour la source</i> .....	101
Tab.3. 4 : <i>Performances atteignables par conversion de fréquence Raman</i> .....	103
Tab.3. 5 : <i>Performances théoriques attendues et performances expérimentales pour chaque étage du MOPA</i> .....	119
Tab.4. 1 : <i>Valeurs de réflectance standards à 1.6<math>\mu</math>m et 2<math>\mu</math>m tirées de la base de données ASTER</i> .....	137
Tab.4. 2 : <i>Rapport signal à bruit, variance normalisée et nombre de tavelures pour les différents types de surface étudiées</i> .....	153
Tab.4. 3 : <i>Erreurs induites par les propriétés des cibles topographiques (variation de réflectivité et d'altitude) sur une mesure de rapport de mélange en CO<sub>2</sub> en colonne totale intégrée</i> .....	166
Tab.B. 1 : <i>Erreurs associées à une mesure DIAL sur la raie R30 du CO<sub>2</sub> atmosphérique</i> ...	186

## Références bibliographiques

[Amediek 2008] A. Amediek, A. Fix, M. Wirth, G. Ehret, “Development of an OPO system at 1.57  $\mu\text{m}$  for integrated path DIAL measurement of atmospheric carbon dioxide”, *Appl. Physics B*, **92**, 295-302 (2008)

[Amediek 2009] A. Amediek, A. Fix, G. Ehret, J. Caron, Y. Durand, “Airborne lidar reflectance measurements at 1.57  $\mu\text{m}$  in support of the A-SCOPE mission for atmospheric  $\text{CO}_2$ ” *Atmos. Meas. Tech*, **2**, 755–772, (2009)

[Armstrong 1962] J.A Armstrong et al., “Interactions between Light waves in a nonlinear Dielectric”, *Phys.Rev*, **127**, (1962)

[A-SCOPE 2008] P.H. Flamant et al., “A-SCOPE report for assessment (2008)”, [http://www.esa.int/esaLP/SEMUE0AWYNF\\_LPearthexp\\_0.html](http://www.esa.int/esaLP/SEMUE0AWYNF_LPearthexp_0.html)

[Baldrige 2008] A.M Baldrige, S.J. Hook, C.I. Grove, G. Rivera “The ASTER Spectral Library Version 2.0”, *Remote Sensing of Environment*, vol 113, 711

[Berrou 2007] A.Berrou et al., “Specific architectures for optical parametric oscillator”, *C.R Physique*, **8**, (2007)

[Bosenberg 1985] J.Bosenberg, “Measurement of the pressure shift of water vapour absorption lines by simultaneous photoacoustic spectroscopy”, *Appl. Opt*, **24**, 21 (1985)

[Brand 1995] C. Brand, A. Winkler, P.Hess, A.Miklos, Z. Bozoki, J.Sneider, “Pulsed-laser excitation of acoustic modes in gas high-Q photoacoustic resonators for trace gas monitoring : results for  $\text{C}_2\text{H}_4$ ”, *Appl. Opt.*, **34**, 18 (1995)

- [Bruneau 2006] D. Bruneau, F.Gibert, P.H. Flamant, J.Pelon, “Complementary study of differential absorption lidar optimization in direct and heterodyne detection”, et al., *Appl. Opt.*, **45**, 4898-4906, (2006)
- [Bufton 1983] J.L. Bufton, T.Itabe, L.L.Strow, C.L. Korb, B.M.Gentry, C.Y.Weng, “Frequency-doubled CO<sub>2</sub> lidar measurement and diode laser spectroscopy of atmospheric CO<sub>2</sub>”, *Appl. Opt.*, **22**, 2593-2602 (1983)
- [Cahen 1982] C. Cahen et G.Mégie, “A spectral limitation of the range resolved differential absorption lidar technique”, *JQSRT*, **25**, 151-157 (1981)
- [Dabas 1994] A.Dabas, P.H.Flamant, P. Salamitou, “Characterization of pulsed coherent Doppler LIDAR with the speckle effect”, *Appl.Opt.*, **33**, 27 (1994)
- [Ehret 2008] G. Ehret, C. Kiemle, M. Wirth, A. Amediek, A. Fix, S. Houweling, “Space-borne remote sensing of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and N<sub>2</sub>O by integrated path differential absorption lidar: a sensitivity analysis”, *Appl. Phys. B.*, **90**, 593-608 (2008)
- [FACTS 2005] P.H Flamant, C. Loth, D.Bruneau, A.Dabas, F.M. Bréon, P. Brunet, A. Quesney, P. Desmet, T. Pain, A. Chédin, F.Gibert, “FACTS : Future Atmospheric Carbon Testing from Space”, ESA study, final Report (2005)
- [Fejer 1992] M. Fejer et al., “Quasi-phase-matched second harmonic generation tuning and tolerances”, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **28**, 11, (1992)
- [Flamant 1984] P.H.Flamant, R.T.Menzies, M. Kavaya, “Evidence for speckle effects on pulsed CO<sub>2</sub> lidar signal returns from remote targets”, *Appl.Opt.*, **33**, 27 (1984)
- [Frey 2006] B.J. Frey, D.B. Leviton, T.J. Madison, “Temperature-dependent refractive index of silicon and germanium”, Proceedings of SPIE Astronomical Telescopes and Instruments Conference, 24-31 may 2006, Orlando, Florida, USA
- [Gamache 2003] R. R. Gamache, J. Fischer, *JQSRT*, **78**, 289-304, (2003)
- [Gibert 2005] F.Gibert, “Télé-détection du CO<sub>2</sub> atmosphérique par LIDAR DIAL doppler hétérodyne à 2 μm”, thèse de doctorat de l’Ecole Polytechnique, (2005)

- [Gibert 2006] F. Gibert, P.H. Flamant, D. Bruneau., C. Loth, “Two micrometer heterodyne differential absorption lidar measurements of the atmospheric CO<sub>2</sub> mixing ratio in the boundary layer”, *Appl. Opt.*, **45**, 4448, (2006)
- [Gibert 2007] F. Gibert, F. Marnas, D. Edouart, P.H. Flamant, “An a posteriori method based on Photo-acoustic cell information to correct for laser Transmitter spectral shift during atmospheric CO<sub>2</sub> measurements by 2 μm heterodyne differential absorption Lidar technique”, *Appl. Spectroscopy*, **61**, 10, (2007)
- [Giordmaine-Miller 1965] J.A. Giordmaine et R.C. Miller, “Tunable coherent parametric oscillation Optical at optical frequencies”, *Phys.Rev.Lett*, **14**, 1965
- [Goodman 1975] J.W Goodman, “Statistical properties of laser speckle patterns”, in J. C Dainty, *Laser Speckle and Related Phenomena*, springer-verlag, berlin (1975)
- [Goodman 1985] J.W Goodman, “Statistical Optics”, Wiley Intersciences, New York (1985)
- [Henriksson 2006] M.Henriksson et al., “ZnGeP<sub>2</sub> parametric oscillator pumped by a linewidth-narrowed parametric 2 μm source”, *Opt.Lett.*, **31**, (2006)
- [Herbert 1974] F. Herbert, “Spectral line profile : a generalized Voigt function including collisional narrowing” , *JQSRT*, **14**, 943, (1974)
- [Humlicek 1978] J. Humlicek, An efficient method for evaluation of the complex probability function. The Voigt function and its derivative, *JQSRT*, **21**, 309-313 (1978)
- [IPCC 2007] Intergovernmental Panel on Climate Control (IPCC), “Climate Change 2007, the Fourth Assessment Report of the IPCC ”, Cambridge Univ. Press, New York, (2007)
- [Ishii 2008] S. Ishii et al., “Development of 2 micron coherent differential absorption lidar, reviewed and revised papers, 24<sup>th</sup> International Laser Radar Conference (ILRC), 23-28 June, Boulder, Colorado, USA, 689-692.
- [Jacobson 2005] B. Jacobson.et.al, “Narrowband bulk Bragg grating optical parametric oscillator”, *Opt. Lett*, **30**, (2005)

- [Jacquinet-Husson 1999] N. Jacquinet et al., “The 1997 spectroscopic GEISA databank“, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, **62**, 205-224 (1999)
- [Kasyutich 2007] V.Kasyutich et P.A Martin, “Multipass optical cell based upon two cylindrical mirrors for tunable diode laser absorption spectroscopy”, *Appl.Phys.B*, **88**, (2007)
- [Koch 2008] G.J. Koch, J.Y. Beyond, F. Gibert, B.W. Barnes, S. Ismail, M. Petros, P.J. Petzar, J. Yu, E.A. Modlin, K.J. Davisand U.N. Singh, “Side-line tunable laser transmitter for differential absorption lidar measurements of CO<sub>2</sub>: design and application to atmospheric measurements”, *Applied Optics*, **47**, 944-956 (2008)
- [London 1930] F. London, *Z Phys. Chem. B*, **II**, 22, 1930
- [Megie 1977] G. Megie, J.Y. Allain, M.L Chanin, J.E. Blamont, “Vertical profile of stratospheric ozone by lidar sounding from the ground”, *Nature*, **270**, (1977)
- [Menyuk 1981] N.Menyuk et D.K. Killinger., “Temporal correlation measurements of pulsed dual CO<sub>2</sub> lidar returns”, *Opt.Lett.*, **6**, (1981)
- [Menzies 2003] R.T. Menzies and D.M. Tratt, “Differential laser absorption spectrometry for global profiling of tropospheric carbon dioxide : selection of optimum sounding frequencies for high precision measurements”. *Appl. Opt*, **42**, 33, 6569-6577, (2003)
- [Menzies 2008] R.T. Menzies and G.D. Spiers “Airborne laser absorption spectrometer for IPDA measurement of atmospheric effects on attainable precision and a technique for cloud and aerosol filtering”, 24<sup>th</sup> Intenational Laser Radar Conference (ILRC), 23-28 June, Bouldder, Colorado, USA, 689-692.
- [Miklos 2001] A. Miklos, P. Hess, Z. Bozoki, “Application of acoustic resonantors in photoacoustic trace gas analysis and metrology”, *Rev. Sci. Instrum.*, **72**, 4, (2001)
- [Miller 2007] C.E. Miller et al., “Precision requirements for space-based X<sub>CO<sub>2</sub></sub> data”, *J. Geophys. Res*, **112**, D10314 (2007) doi:10.1029/2006JD007659
- [Nordhaus 1981] O. Nordhaus, J. Pelzl, “Frequency dependence of resonant photoacoustic cells : the extended Helmholtz resonator”, *Applied Physics*, **25** (1981)

[Oh 1996] D.Oh, P.Drobinski, P. Salamitou, P.H. Flamant, “Optimal local oscillator power for CMT photovoltaic detector in heterodyne mode”, *Inf.Phys et Tech*, **37**, (1996)

[PULSNIR 2008] A. Mohamed, M. Lefebvre, A.Godard, T.Schmid, P. Kaspersen, A. Bohman, P. Geiser, P. Flamant, F. Marnas, D. Bermejo “PULSNIR : Pulsed Laser Source in NIR for LADAR applications”, ESA study, final Report (2008)

[Rautian 1967] S.G. Rautian, I. Sobelman, “Effect of collisions on the Doppler broadening of spectral lines”, *Sov. Phys. Usp.*, **9**, 701, (1967)

[Raybaut 2009] M. Raybaut, A. Berrou, A. Godard, A. Mohamed, M. Lefebvre, F. Marnas, D. Edouart; P. Flamant, A. Bohman, P. Geiser, P. Kaspersen, “High brightness 2  $\mu\text{m}$  source based on a type II doubly resonant ECOPO”, Advances Solid state Photonics 2009, 1-4 Feb. 2009, Denver, COLORADO (USA)

[Regalia-Jarlot 2006] L. Regalia-Jarlot, V. Zéninari, B. Parvitte, A. Grossel, X. Thomas, P. Von Dr Heydden, G. Durry, “A complete study of the line intensities of four bands of CO<sub>2</sub> around 1.6 and 2.0  $\mu\text{m}$ : A comparison between Fourier transform and diode laser measurements”, *JQSRT*, **101**, 325-336 (2006)

[Rothman 2005] L.S. Rothman, D. Jacquemart, A. Barbe, D. Chris Benner, M. Birk, L.R. Brown, M.R. Carleer, C. Chackerian Jr., K. Chance, L.H. Coudert, V. Dana, V.M. Devi, J.-M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, J.-M. Hartmann, K.W. Jucks, A.G. Maki, J.-Y. Mandin, S.T. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C.P. Rinsland, M.A.H. Smith, J. Tennyson, R.N. Tolchenov, R.A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi, G. Wagner, “The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database”, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, **96**, 139-204, (2005)

[Rye 1997] B.J Rye et R.M. Hardesty, “Detection techniques for validating Doppler estimates in heterodyne lidar”, *Appl.Opt.*, **36**, (1997)

[Sakaizawa 2009] D. Sakaizawa, C. Nagasawa, T. Nagai, M. Abo, Y. Shibata, M. Nakazato, T. Sakai, “Development of a 1.6  $\mu\text{m}$  differential absorption lidar with a quasi phase-matching optical parametric oscillator and photon-counting detector for the vertical CO<sub>2</sub> profile” , *Appl. Opt.*, **48**, 748-757, (2009)

- [Salamitou 1994] P.Salamitou, “Etude comparée des performances d’un LIDAR Doppler cohérent pulsé pour la mesure du vent aux longueurs d’onde  $2\mu$  et  $10\mu\text{m}$ ”, Thèse de doctorat de l’université Paris VI, (1994)
- [Sarmiento 2002] Sarmiento, J.L. and N. Gruber. “Sinks for anthropogenic carbon”, *Physics Today*, **55**(8), 30-36, (2002).
- [Scherrer 2000] B.Scherrer et al., “Dual cavity doubly resonant optical parametric oscillator : demonstration of pulsed single-mode operation“, *J.of Opt.Soc.Am.B*, **17**, (2000)
- [Schmid 2006] Schmid T., “Photoacoustic spectroscopy for process analysis”, *Analytical and bionalytical chemistry*, 384 (2006)
- [SNLO] A. Smith, “SNLO software”, <http://www.sandia.gov/imrl/XWEB1128/xxtal.htm>
- [Stull 1988] R.B. Stull, “An introduction to boundary layer meteorology”, *Kluwer academic Publishers* (Reidel), (1988)
- [Sugimoto 1993] N. Sugimoto, A.Minato, “Long-path absorption measurements  $\text{CO}_2$  with a Raman shifted tunable dye laser”, *Appl.Opt.*, **32**, 33 (1993)
- [Toth 2006] R.A. Toth, L.R. Brown, C.E. Miller, V.M. Devi, D.C. Benner, “Line strengths of  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ : 4550-7000  $\text{cm}^{-1}$ ”, *Journal of molecular spectroscopy*, **239**, 229-242 (2006)
- [Toth 2007] R.A. Toth, L.R. Brown, C.E. Miller, V.M. Devi, D.C. Benner, “Air broadened halfwidth and pressure shift coefficients of  $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  bands: 4550-7000  $\text{cm}^{-1}$ ”, *JQSRT*, **246**, 133-157, (2007)
- [Yu 2006] J. Yu., B.C Trieu, E.A. Modlin, U.N. Singh, M.J. Kavaya, S. Chen, Y. Bai, P.J. Petzar, M. Petros, “1 J/pulse Q-switched  $2\mu\text{m}$  solid state laser”, *Optics Letters*, **31**, 4, 462-464 (2006)
- [Zeninari 2003] V. Zeninari, B. Parvitte, D. Courtois, V.A. Kapitanov, Y.N Ponomarev, “Methane detection on the sub-ppm level with a near-infrared diode laser photoacoustic sensor”, *Infrared physics and technology*, 44 (2003)