

**THESE**

présentée

devant l'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD – LYON I

pour l'obtention

du DIPLOME DE DOCTORAT

(arrêté du 30 mars 1992)

présentée et soutenue publiquement le 30 novembre 2001

par

**Didier MONDELAIN**

**LIDAR LINEAIRE ET NON LINEAIRE DANS  
L'INFRAROUGE MOYEN**

Jury:    **F. SALIN, Président**  
              **D. BOUCHER, Rapporteur**  
              **L. WÖSTE, Rapporteur**  
              **J.P. POCHOLLE**  
              **P. RAIROUX**  
              **J.P. WOLF, Directeur de thèse**

## Merci à tous

Je désire tout d'abord remercier Jean-Pierre pour sa disponibilité durant ces trois années de thèse. Merci aussi pour tes conseils et tes idées qui m'ont permis de faire avancer certaines expériences.

Merci à D. Boucher, L. Woeste, F. Salin et J.P. Pocholle, d'avoir accepté d'être membre de mon jury, malgré leurs nombreuses occupations. Un merci tout particulier à Ludger Woeste pour avoir réservé de longue date le 26 octobre dans son agenda et à Patrick Rairoux avec qui je vais enfin pouvoir travailler.

Je souhaite aussi remercier Michel Broyer pour m'avoir accueilli au LASIM pour ma thèse mais aussi lors de mes différents stages de magistère.

Merci à Jérôme, qui, il y a très longtemps de cela m'avait pris comme stagiaire de magistère pour piéger des aérosols dans une balle de ping-pong puis, évolution oblige, dans une boule de pétanque en plastique. Merci aussi de m'avoir fourni gratuitement "Libé" lors des semaines de Manip à Palaiseaux et à Iéna.

Merci à Jin, pour son enthousiasme lors des manips; à Véronique pour avoir accepté de jouer de la flûte traversière pour l'un des moments les plus importants de ma vie. Merci aussi à Catherine et à Nicolas qui ont désespérément essayé de me mettre à l'alcool. Merci à Estelle pour ses nombreux commentaires sur mon manuscrit et à Marie-Ange pour ses bons conseils pour les dossiers d'ATER notamment.

De grands merci à Alexandre, parti travaillé à la COPARLY et qui s'est rappelé à notre bon souvenir en plaçant un sodar à un endroit stratégique du campus pour que tout le monde puisse bien l'entendre. Merci à Emeric pour sa bonne humeur et pour ses blagues, le plus souvent très drôles et à Brigitte qui m'a initié au réglage des OPO pendant les premiers mois de ma thèse. Merci aussi à Sylvain pour son aide le jour de la soutenance et bon courage pour la suite...

Je tiens aussi à remercier Marc N., qui a toujours réalisé à la perfection les pièces que je lui demandais. Merci de nouveau à Marc N., à Michel et à Marc B. pour s'être investi dans la construction d'un magnifique laboratoire mobile d'analyse trop tôt parti en fumée.

Merci enfin aux différents stagiaires: Romain, Bénédicte, Guillaume et Gaëlle avec qui j'ai travaillé durant cette thèse et aux membres du projet Teramobile: Miguel, Holger, Stelios...

### Résumé en français :

Les aérosols sont une composante essentielle de la pollution urbaine et de la physico-chimie de l'atmosphère. Il est primordial de disposer de cartographies 3D de leur concentration par méthode lidar.

Une méthode originale, à une longueur d'onde, a été développée. Elle est basée sur l'impaction et l'étude de filtres permettant d'obtenir des informations complémentaires sur la distribution de taille des aérosols et sur leur composition. Les résultats, obtenus dans l'UV montrent que la distribution a un mode pour les petites tailles (~100 nm) et un mode pour les particules plus grosses (~1 µm). Notre lidar a aussi permis de mesurer la concentration en aérosols, l'évolution et la stratification de la couche limite. Mais cette méthode reste lourde à cause de l'étude des filtres et utilise comme hypothèse forte que l'atmosphère est homogène verticalement.

Pour distinguer entre les modes des particules et obtenir un diagnostic « tout-optique », nous avons étendu dans l'IR, plus sensible aux aérosols de la taille du micron, le système lidar UV existant, plus sensible aux petites tailles.

Cette extension est basée sur des oscillateurs paramétriques optiques (OPO). Les différents cristaux susceptibles de produire efficacement de l'IR moyen ont été testés. Ces cristaux sont le  $\text{KTiOPO}_4$ , le  $\text{KTiAsO}_4$  et le  $\text{KNbO}_3$ . Puis, un de ces OPO a été implanté dans notre système lidar. Les mesures lidar préliminaires de concentration dans l'IR, ont été obtenues pour des gouttelettes d'eau lors d'un épisode de brume.

Parallèlement aux systèmes lidar linéaires précédents, un projet de lidar non-linéaire (projet Teramobile), a vu le jour. Une source de lumière blanche provenant des filaments, générés dans l'air lors de la propagation d'un faisceau laser térawatt, est utilisée pour faire du lidar aérosols multispectral. Avec cette source allant de l'UV à l'IR moyen, des mesures de concentration en aérosols seront possibles sans aucune hypothèse *a priori* contrairement aux méthodes précédentes.

Titre en anglais : Linear and non-linear lidar in the mid-infrared.

### Résumé en anglais :

The aerosols are an essential component of the urban pollution and of physico-chemistry of the atmosphere. It's of the first interest to dispose of three-dimensions concentration maps with lidar method.

An original method, with one wavelength, has been developed. It's based on the impacting and study of filters and their composition. In particular, the distribution is bimodal with one mode at 20 nm and the other one around 1 µm. With our lidar, we have measured the aerosol concentration, the evolution and the stratification of the boundary layer. But, this method is heavy because of the filters study, and use as a strong hypothesis that the atmosphere is homogeneous vertically.

To distinguish between the modes of the distribution and obtain an "all-optical" diagnostic, we have extend in the infrared, more sensitive to micrometer sized aerosols, the existing UV lidar system, more sensitive to the small sizes.

This extension is based on optical parametric oscillators (OPO). The different crystals, capable of producing efficiently mid-infrared wavelengths, have been tested. These crystals are the  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP), the  $\text{KTiAsO}_4$  (KTA) and the  $\text{KNbO}_3$ . After that, one of these OPO has been implemented in our lidar system. Preliminary infrared lidar concentration measurements have been obtained for water droplets during a haze episode.

Concurrently to the preceding linear lidar systems, a non-linear lidar project (Teramobile project) is born. A white light source, due to generated filaments in the air during terawatt laser beam propagation, is used to do multispectral aerosol lidar. With this source, from UV to mid-IR, aerosol concentration measurements will be possible without any *a priori* hypothesis, contrary to the preceding methods.

Discipline: Physique

Mots clés : lidar, OPO, infrarouge, aérosols, KTP, KTA,  $\text{KNbO}_3$ , Teramobile, filament.

### Adresse du laboratoire:

Laboratoire de Spectrométrie Ionique et moléculaire (UMR 5579 CNRS / UCB Lyon I)  
Domaine Scientifique de la Doua - Université Claude Bernard Lyon I  
Bâtiment Alfred Kastler  
43, bd du 11 Novembre 1918  
69622 VILLEURBANNE

# Table des matières

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I : MÉTHODES LIDAR.....</b>	<b>4</b>
<b>I. L'ATMOSPHERE.....</b>	<b>4</b>
<b>II. DIFFUSION DE LA LUMIÈRE PAR LES AÉROSOLS ET LES GAZ.....</b>	<b>5</b>
A. DIFFUSION DE LA LUMIÈRE PAR UNE PARTICULE QUELCONQUE.....	5
B. LA THÉORIE DE MIE.....	7
C. DIFFUSION RAYLEIGH.....	9
D. DIFFUSION DE LA LUMIÈRE PAR DES PARTICULES FRACTALES.....	11
E. COEFFICIENTS D'EXTINCTION ET DE RÉTRODIFFUSION.....	12
<b>III. PRINCIPE DU LIDAR.....</b>	<b>13</b>
A. L'ÉQUATION LIDAR.....	13
B. INVERSION DE L'ÉQUATION LIDAR.....	14
1. <i>Approximation de l'atmosphère homogène par zone</i> .....	15
2. <i>Méthode d'inversion de Klett</i> .....	15
<b>IV. MESURE DE CONCENTRATION D'AÉROSOLS PAR LIDAR : LIDAR MULTISPECTRAL... 19</b>	
A. MÉTHODE DES DISTRIBUTIONS PRÉDÉFINIES.....	19
B. MÉTHODE UTILISANT DE NOMBREUSES LONGUEURS D'ONDE.....	23
<b>CHAPITRE II : CAMPAGNE DE MESURE LIDAR DES AÉROSOLS DANS L'ULTRAVIOLET ... 27</b>	
<b>I. MÉTHODE UTILISANT UN LIDAR MONO-FRÉQUENCE COUPLÉ À LA MICRO-ANALYSE DE FILTRES IMPACTÉS.....</b>	<b>28</b>
<b>II. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....</b>	<b>32</b>
A. LE LASER TITANE:SAPHIR.....	32
B. LE SYSTÈME LIDAR.....	33
<b>III. RÉSULTATS DES MESURES SUR LES AÉROSOLS À 399 nm.....</b>	<b>34</b>
A. EXEMPLE D'UN PROFIL DE CONCENTRATION OBTENU DURANT LA CAMPAGNE ELO.....	34
B. ÉVOLUTION TEMPORELLE DE LA CONCENTRATION EN AÉROSOLS.....	35
C. DÉTERMINATION DE LA HAUTEUR DE LA COUCHE LIMITE.....	39
D. VERS UN LIDAR MULTISPECTRAL UV-IR.....	40
<b>CHAPITRE III : OSCILLATEURS ET AMPLIFICATEURS PARAMÉTRIQUES OPTIQUES (OPA).....</b>	<b>43</b>
<b>I. THÉORIE DES OSCILLATEURS ET DES AMPLIFICATEURS PARAMÉTRIQUES.....</b>	<b>43</b>
A. OPTIQUE NON LINÉAIRE ET THÉORIE ÉLECTROMAGNÉTIQUE DES MILIEUX ANISOTROPES.....	43
1. <i>Polarisation linéaire et non linéaire</i> .....	44
2. <i>Structure d'une onde plane dans un milieu anisotrope : cas d'un milieu biaxial</i> .....	46
3. <i>Calcul de la valeur de la susceptibilité effective d'ordre deux</i> .....	47
4. <i>Equations de Maxwell dans un milieu diélectrique</i> .....	48
5. <i>Processus à trois ondes</i> .....	49
B. GÉNÉRATION PARAMÉTRIQUE.....	50

C. OSCILLATEURS PARAMÉTRIQUES OPTIQUES.....	52
1. Introduction .....	52
2. Le seuil.....	52
3. Efficacité de conversion.....	53
4. Accord de phase.....	53
a) Accord de phase en longueur d'onde.....	54
b) Polarisation en accord de phase : type I et type II.....	55
5. Angle de walk-off.....	55
6. Acceptance spectrale et angulaire.....	56
a) Acceptance spectrale.....	56
b) Acceptance angulaire.....	56
D. LES DIFFÉRENTS CRISTAUX UTILISÉS.....	56
1. Choix des cristaux.....	56
2. Le KTP ( $KTiOPO_4$ ).....	57
a) Structure et croissance cristalline.....	57
b) Propriétés physiques et mécaniques .....	58
c) Domaine de transmission .....	58
3. Le $KTiAsO_4$ (KTA) .....	59
a) Propriétés physiques et mécaniques .....	59
b) Domaine de transmission.....	59
4. Le niobate de potassium : $KNbO_3$ .....	60
a) Structure et propriétés physiques et mécaniques .....	60
b) Domaine de transmission.....	60
5. Dispersion en longueur d'onde de l'indice de réfraction.....	61
<b>II. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET RÉSULTATS .....</b>	<b>62</b>
A. LA CAVITÉ PARAMÉTRIQUE OPTIQUE .....	63
B. LE KTP ( $KTiOPO_4$ ).....	63
1. Accord de phase non critique ( $\theta = 90^\circ$ , $\varphi = 0^\circ$ ).....	63
a) Influence de la longueur effective de la cavité résonante .....	64
b) OPO monolithiques et semi-monolithiques .....	65
c) Courbes d'accord de phase .....	66
2. Génération de longueurs d'ondes supérieures à 3 $\mu m$ avec un KTP ( $\theta = 41^\circ$ , $\varphi = 0^\circ$ ).....	67
a) Courbes d'accord de phase .....	67
b) Energie et efficacité de conversion.....	68
3. Conclusion .....	69
C. LE $KTiAsO_4$ (KTA).....	69
1. Accord de phase non critique ( $\theta = 90^\circ$ , $\varphi = 0^\circ$ ).....	69
a) Comparaison KTA/KTP .....	70
b) Accordabilité.....	70
2. Génération de longueurs d'ondes supérieures à 3 $\mu m$ .....	71
D. LE NIOBATE DE POTASSIUM : $KNbO_3$ .....	72
1. $KNbO_3$ coupé à $q = 41^\circ$ , $j = 0^\circ$ .....	72
2. Résultats .....	73
E. CONCLUSION.....	75
<b>CHAPITRE IV : MESURES LIDAR D'AÉROSOLS À 3,5 <math>\mu m</math> LORS D'UN ÉPISODE DE BRUME</b>	<b>77</b>
<b>I. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....</b>	<b>78</b>
<b>II. RÉSULTATS ET DISCUSSION.....</b>	<b>79</b>
A. RÉSULTATS QUALITATIFS TIRÉS DES MESURES LIDAR.....	79
B. RÉSULTATS QUANTITATIFS : INVERSION DES SIGNAUX LIDAR.....	81
<b>III. CONCLUSION.....</b>	<b>85</b>

**CHAPITRE V : LE PROJET TERAMOBILE : PROPAGATION D'IMPULSIONS TÉRAWATTS  
ET LIDAR NON LINÉAIRE..... 88**

**I. THÉORIE DE LA PROPAGATION D'IMPULSIONS TÉRAWATTS DANS L'ATMOSPHÈRE... 88**

A. LES MÉCANISMES DE BASE .....	89
1. Les processus linéaires : diffraction, dispersion de la vitesse de groupe .....	89
a) Effet de la diffraction .....	89
b) Dispersion de la vitesse de groupe .....	90
2. Effet Kerr, auto-focalisation, raccourcissement de l'impulsion .....	90
3. Ionisation multiphotonique .....	92
4. La filamentation : processus de réapprovisionnement.....	95
5. L'automodulation de phase.....	98
6. L'émission conique.....	100
7. L'équation de propagation.....	101

**II. LE SYSTÈME TERAMOBILE.....103**

A. LA CHAÎNE LASER.....	104
1. L'oscillateur FemtoSource Compact Pro .....	105
2. L'étireur.....	108
3. Amplificateur régénératif.....	108
4. Amplificateur multipassages.....	109
5. Le compresseur.....	110
B. LE LABORATOIRE MOBILE.....	112
C. LABORATOIRE MOBILE D'ANALYSE .....	114

**III. CARACTÉRISATION DES FILAMENTS DE LUMIÈRE BLANCHE SE PROPAGEANT DANS  
L'AIR.....115**

A. EXPÉRIENCES SUR LE SPECTRE DU CONTINUUM GÉNÉRÉ PAR UN LASER TÉRAWATT FEMTOSECONDE FOCALISÉ DANS L'ATMOSPHÈRE .....	115
1. Introduction .....	115
2. Dispositif expérimental.....	116
3. Résultats .....	117
4. Discussion .....	118
B. ÉVOLUTION DU SPECTRE D'UN FILAMENT EN FONCTION DE LA DISTANCE DE PROPAGATION.....	119
1. Dispositif expérimental.....	119
2. Résultats et interprétation .....	120
C. LONGUEUR DES FILAMENTS ET DISTANCE DE FILAMENTATION.....	121
D. DÉPENDANCE ANGULAIRE DU CONTINUUM GÉNÉRÉ DANS L'AIR PAR UN LASER TÉRAWATT ULTRACOURT 123	
1. Introduction .....	123
2. Dispositif expérimental.....	123
3. Résultats .....	124
a) Calibration.....	124
b) Distribution angulaire de la diffusion de la lumière blanche.....	125
4. Interprétation.....	127
E. CONCLUSION.....	128

**IV. EXPÉRIENCES LIDAR TÉRAWATT.....128**

A. INTRODUCTION.....	128
B. PREMIERS RÉSULTATS LIDAR OBTENUS AVEC LE SYSTÈME TERAMOBILE.....	129

**V. CONCLUSION.....130**

**CONCLUSION GÉNÉRALE.....134**

<b>ANNEXES .....</b>	<b>135</b>
<b>ANNEXE A : MESURE DES CONCENTRATIONS DE POLLUANTS GAZEUX : LA MÉTHODE DIAL.....</b>	<b>136</b>
<b>ANNEXE B : PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES CRISTAUX DE KTP, KTA ET KNbO<sub>3</sub> .....</b>	<b>139</b>
<b>I. DÉPENDANCE EN LONGUEUR D'ONDE DES INDICES .....</b>	<b>139</b>
A. CAS DU KTP.....	139
B. CAS DU KTA.....	139
C. CAS DU KNBO <sub>3</sub> .....	140
<b>II. DÉPENDANCE EN TEMPÉRATURE DES INDICES .....</b>	<b>140</b>
A. CAS DU KTP.....	140
B. CAS DU KNBO <sub>3</sub> .....	140
<b>ANNEXE C : TENSEURS DE SUSCEPTIBILITÉS DES CRISTAUX DE KTP, KTA ET KNbO<sub>3</sub> ....</b>	<b>142</b>
<b>I. TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ DU KTP.....</b>	<b>142</b>
<b>II. TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ DU KTA.....</b>	<b>142</b>
<b>III. TENSEUR DE SUSCEPTIBILITÉ DU KNbO<sub>3</sub>.....</b>	<b>142</b>
<b>ANNEXE D : RÉSUMÉ DES CRISTAUX TESTÉS .....</b>	<b>144</b>

# Introduction

L'environnement et plus particulièrement la qualité de l'air est un des problèmes majeur rencontrés à l'heure actuelle dans les villes en terme de santé publique. Pour lutter plus efficacement contre la pollution atmosphérique il est important de mieux la quantifier. Même si les concentrations de nombreux polluants gazeux sont maintenant bien mesurées à l'aide de capteurs ponctuels ou de systèmes DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy), il s'avère primordial de disposer de cartographies en trois dimensions par méthode lidar (Light Detection and Ranging) de la concentration de ces polluants mais aussi des aérosols atmosphériques qui jouent un rôle important dans le bilan radiatif terrestre.

Pour les aérosols, les mesures de routine dans les réseaux standards, sont limitées aux mesures de masse de quelques catégories de taille. De nouveaux instruments tels que les compteurs optiques ou les analyseurs de mobilité différentielle électrique peuvent fournir des distributions de taille de 10 nm à plusieurs microns. Cependant, ils restent limités à des mesures ponctuelles au niveau du sol contrairement au lidar.

Les techniques lidar (LIght Detection And Ranging) de mesure des aérosols, qui utilisent une seule ou quelques longueurs d'onde, requièrent la connaissance *à priori* de l'indice de réfraction complexe et/ou de la forme de la distribution de taille (habituellement prise log-normale). En atmosphère urbaine, ces informations sont difficiles à obtenir à cause de la diversité des types d'aérosols et de distributions multimodales complexes.

La théorie des différentes méthodes lidar de détection d'aérosols utilisant une ou plusieurs longueurs d'onde seront présentées dans la première partie de cette thèse.

Une méthode originale, utilisant une seule longueur d'onde, a été développée au laboratoire. Elle est basée sur l'impaction et l'étude de filtres au niveau du sol qui permettent d'obtenir des informations complémentaires sur la distribution de taille des aérosols et sur leur composition. Le principe de cette méthode et les résultats obtenus dans l'ultraviolet seront décrits dans une seconde partie. Ces derniers, en accord avec d'autres mesures<sup>1,2,3</sup> montrent que la distribution de taille a principalement un mode pour les petites tailles, centré sur 0,1  $\mu\text{m}$  et un mode correspondant à des particules plus grosses, centré sur 0,9  $\mu\text{m}$ . Mais cette méthode reste lourde à cause de l'étude des filtres et utilise comme hypothèse forte que l'atmosphère est homogène verticalement.

Pour distinguer entre les petites et les grosses particules, nous avons étendu dans l'infrarouge (IR) le système lidar ultraviolet (UV) déjà existant, le but étant d'obtenir un diagnostic « tout-optique ». En effet, comme l'infrarouge moyen est bien moins diffusé par les petites particules, il est plus sensible aux aérosols de la taille du micron ou de quelques microns alors que l'ultraviolet est lui plus sensible aux petites tailles.

L'extension lidar nécessite donc une source laser pulsée, accordable dans l'infrarouge moyen, avec des énergies de l'ordre de quelques millijoules. Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) sont de très bons candidats pour répondre à de tels critères. Le pompage de ces OPO avec un laser accordable, permet de changer simplement les longueurs d'onde générées en variant la longueur d'onde de la pompe au lieu de l'angle du cristal. Avec cette méthode originale, l'accordabilité du signal et de la complémentaire est plus grande et plus facile à réaliser. Ainsi, avec un laser Titane:Saphir (Ti:Sa), il est possible de générer continûment des longueurs d'onde entre 1 et 4  $\mu\text{m}$ . Les différents cristaux susceptibles de produire de l'infrarouge moyen de façon efficace ont ainsi été testés dans le cadre d'un projet européen BRITE-EURAM intitulé NOCTILS (Nonlinear Optical Crystals for Tunable Infrared Laser Sources). Ces cristaux sont le  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP), le  $\text{KTiAsO}_4$  (KTA) et le



KNbO<sub>3</sub>. La théorie des OPO et les résultats obtenus avec ces cristaux seront ainsi détaillés dans une troisième partie.

Un de ces OPO a ensuite été implanté dans notre système lidar. Les premières mesures préliminaires de concentration d'aérosols par lidar dans l'infrarouge, ont été obtenues pour des gouttelettes d'eau lors d'un épisode de brume. Ces résultats seront décrits dans la quatrième partie.

Notre extension lidar infrarouge peut aussi servir à détecter des polluants gazeux par la technique lidar à absorption différentielle (DIAL)<sup>4,5</sup>. Cette technique a été largement utilisée pour réaliser des profils de concentration de polluants tels que O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO, SO<sub>2</sub> et même le toluène et le benzène dans l'ultraviolet. L'extension de cette technique dans l'infrarouge moyen pour des gaz non mesurables dans l'ultraviolet, comme les composés organiques volatils (COVs) vers 3,3-3,4 μm, HCl (@ 3,42 μm), HF (@ 2,38 μm) et N<sub>2</sub>O (@ 3,56 μm)<sup>6</sup> représente un nouveau challenge. La détection dans l'infrarouge moyen est beaucoup plus difficile. En effet, la rétrodiffusion Rayleigh est plus faible de 4 ordres de grandeur dans l'infrarouge moyen par rapport à l'ultraviolet à cause de la décroissance en  $\lambda^{-4}$  de sa section efficace. De plus, les interférences entre les polluants sont très nombreuses et les détecteurs dans cette région du spectre tels que les photodiodes InSb sont beaucoup moins sensibles que les photomultiplicateurs.

Il serait évidemment très intéressant de disposer d'un continuum de lumière blanche allant de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen pour mesurer la concentration des aérosols ainsi que leur distribution de taille et non plus seulement distinguer les petites particules des plus grosses. C'est pourquoi, parallèlement aux systèmes lidar linéaires précédents, un projet franco-allemand de lidar térawatt non-linéaire appelé projet Teramobile, a vu le jour. Ce projet, cofinancé par le CNRS et la Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG), regroupe quatre laboratoires : la Freie Universität de Berlin, l'université de Iéna, le laboratoire d'optique appliquée (ENSTA-Polytechnique) et enfin notre groupe « Lasers et environnement » (LASIM-Université Lyon1). Pour une part importante, il consiste à utiliser, comme source de lumière blanche pour faire du lidar, des filaments, qui sont générés dans l'air lors de la propagation d'un faisceau laser de haute puissance (térawatt). Ce type de lidar a aussi un avantage important, puisqu'il peut permettre de mesurer plusieurs polluants simultanément et de résoudre les problèmes posés par les nombreuses interférences entre les différents gaz dans l'infrarouge moyen. Dans une dernière partie, le projet Teramobile, les résultats des études menées sur la propagation des faisceaux intenses dans l'air ainsi que les premiers résultats de lidar non-linéaire seront décrits.

# Chapitre I : Méthodes lidar

## I. L'atmosphère

L'atmosphère naturelle, majoritairement constituée d'azote et d'oxygène, présente la composition moyenne du Tableau I-1. Bien que les teneurs en vapeur d'eau, CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>, soient des constituants de cette atmosphère naturelle, ils ont des implications environnementales importantes. En effet, ils constituent les principaux gaz à effet de serre. En particulier, les concentrations croissantes de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> au cours de ces dernières années en font des polluants globaux au niveau climatique.

Gaz	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub> O	Ar	Ne	Xe
<i>C</i> <sub>moy.</sub> en ppm	780840	209460	332	1,65	variable	9340	18	0,09
Gaz	Kr	He						
<i>C</i> <sub>moy.</sub> en ppm	1,1	5,2						

Tableau I-1. Composition moyenne de l'atmosphère.

A cette composition gazeuse de l'atmosphère, viennent s'ajouter des polluants plus locaux, émis principalement par l'industrie, le chauffage domestique et le trafic automobile. Parmi les polluants primaires (directement émis par les sources), le SO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub> et les composés organiques volatiles (COV) tiennent une place prépondérante (voir Tableau I-2 pour des concentrations de fond typiques en milieu urbain). Dans l'atmosphère, ces polluants primaires réagissent entre eux, avec la vapeur d'eau et le rayonnement solaire, de sorte qu'une production photochimique de polluants secondaires a lieu. Le polluant secondaire le plus important aujourd'hui est l'ozone, dont la concentration peut atteindre 300 µg/m<sup>3</sup>, créant des épisodes de pollution en milieu urbain en été.

Gaz	SO <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> O	NO+NO <sub>2</sub>
<i>C</i> <sub>moy.</sub> en ppm	10 <sup>-5</sup> -10 <sup>-4</sup>	0,33	10 <sup>-6</sup> -10 <sup>-2</sup>

Tableau I-2. Concentrations de fond typiques de quelques polluants primaires en milieu urbains.

En plus des gaz, l'atmosphère contient des aérosols. Un aérosol atmosphérique est un ensemble de particules solides, liquides ou mixte, de vitesse de chute négligeable, en suspension dans un milieu gazeux, ici l'atmosphère. La Figure I-1 donne une classification schématique des principales particules composant un aérosol atmosphérique. Dans l'atmosphère, les aérosols sont constitués de particules de tailles inférieures à 100 µm, comme par exemple les pollens, les poussières minérales, les gouttes d'eau composant les nuages, les condensations des émissions nitreuses et sulfuriques des industries ou des volcans et enfin les particules de suie issues de la combustion incomplète de produits inflammables (chauffage, carburants automobiles et plus précisément le diesel). En plus d'avoir des tailles très différentes les divers aérosols ont des compositions chimiques et des formes qui varient très

fortement. La diffusion et l'absorption de la lumière par un aérosol seront donc différentes selon son type et sa taille. Le cas des particules sphériques et homogènes, comme les gouttelettes d'eau ou certaines particules de silice, peut ainsi être traité par la théorie de la diffusion de Mie. Pour les particules diesel, par exemple, qui ont une forme fractale, d'autres théories de la diffusion de la lumière sont à appliquer.

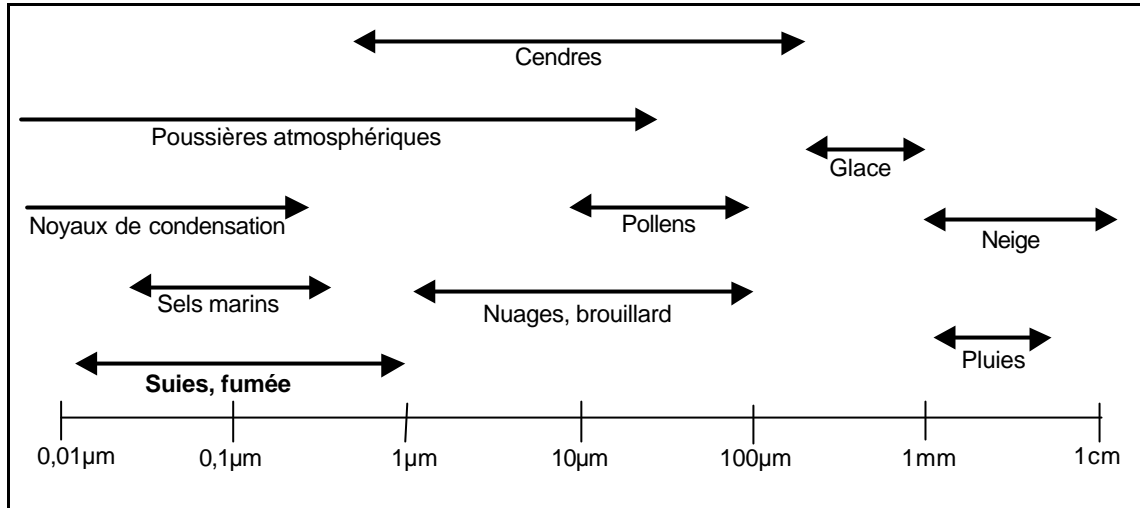


Figure I-1. Classification et taille des principales particules<sup>1</sup>.

Les propriétés optiques des aérosols et des gaz, décrites dans le paragraphe suivant, sont à la base des différentes méthodes de détection de la pollution atmosphérique par lidar qui seront l'objet de la fin de ce chapitre.

## II. Diffusion de la lumière par les aérosols et les gaz<sup>8</sup>

### A. Diffusion de la lumière par une particule quelconque

Dans le cas général de la diffusion d'une lumière monochromatique par une particule de taille, de forme et d'indice quelconques, il faudrait résoudre les équations de Maxwell partout où les susceptibilités électrique et magnétique sont continues, c'est à dire à l'intérieur et à l'extérieur de la particule. A l'interface entre les deux, la discontinuité impose de fixer des conditions aux limites pour les champs électrique  $\vec{E}$  et d'induction  $\vec{H}$  afin d'assurer la conservation de l'énergie à cette interface :

$$I-1 \quad \left\{ \begin{array}{l} (\vec{E}_{int} - \vec{E}_{ext}) \times d\vec{S} = \vec{0} \\ (\vec{H}_{int} - \vec{H}_{ext}) \times d\vec{S} = \vec{0} \end{array} \right.$$

où  $d\vec{S}$  est l'élément orienté, unitaire, de l'interface entre les milieux intérieur et extérieur.

Le problème étant linéaire, il est possible de construire des solutions par combinaison linéaire de solutions connues. En particulier, il suffit de traiter deux polarisations incidentes pour en déduire les solutions pour toutes les polarisations possibles.

Dans le cas de l'étude optique d'aérosols, on s'intéresse essentiellement à la lumière diffusée à grande distance de la particule, où le champ électrique est alors transversal. Ce champ est décomposé en composantes complexes de polarisation parallèle et perpendiculaire

au plan de diffusion:  $\vec{E}_{//}$  et  $\vec{E}_{\perp}$ . L'onde émergente est alors liée à l'onde incidente par la relation :

$$\text{I-2} \quad \begin{bmatrix} E_{//,e} \\ E_{\perp,e} \end{bmatrix} = \frac{e^{ik \cdot (R-z)}}{-i \cdot k \cdot R} \cdot \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_{//,i} \\ E_{\perp,i} \end{bmatrix}$$

$$k = \frac{2 \cdot \mathbf{P}}{\mathbf{I}} = \frac{2 \cdot n_{ext} \cdot \mathbf{P}}{\mathbf{I}_{vide}}$$

avec  $S_j$  les éléments de la matrice de diffusion, dépendant en général de l'angle entre le faisceau laser et la direction de diffusion dans le plan de diffusion ( $\mathbf{q}$ ) et de l'angle  $\mathbf{f}$ ,

$R$  la distance par rapport à la particule,

$z$  la composante de  $R$  suivant la direction de propagation de l'onde incidente

$\mathbf{I}$  la longueur d'onde dans le milieu extérieur d'indice  $n_{ext}$ .

L'étude de la diffusion se ramène alors à la détermination des composantes  $S_j$  de la matrice de diffusion.

Lors de la diffusion (Figure I-2), la lumière est en partie absorbée ( $P_{abs}$ ) par la particule et en partie diffusée ( $P_{diff}$ ). L'extinction de la lumière est alors la somme des deux :

$$\text{I-3} \quad P_{ext} = P_{diff} + P_{abs}$$

avec  $P$  la puissance en watts.

Une partie de la lumière est diffusée dans la direction d'où vient la lumière incidente, la lumière est dite rétrodiffusée ( $P_{back}$ ). Les sections efficaces  $\mathbf{s}$  sont définies comme étant :

$$\text{I-4} \quad \mathbf{s}_i = P_i / I_{incid}$$

L'indice  $i$  faisant référence à l'extinction ( $ext$ ), la diffusion ( $diff$ ), l'absorption ( $abs$ ) ou la rétrodiffusion ( $back$ ).  $I_{incid}$  représente l'intensité incidente.

Les efficacités  $Q_i$  sont, elles, définies par :

$$\text{I-5} \quad Q_i = \mathbf{s}_i / \mathbf{pr}^2$$

pour l'extinction, la diffusion et l'absorption et par :

$$\text{I-6} \quad Q_{back} = \frac{d\mathbf{s}_{diff}}{d\Omega} \cdot \frac{1}{\mathbf{pr}^2}$$

pour la rétrodiffusion où  $r$  est le rayon de la particule et  $\mathbf{W}$  l'angle solide.

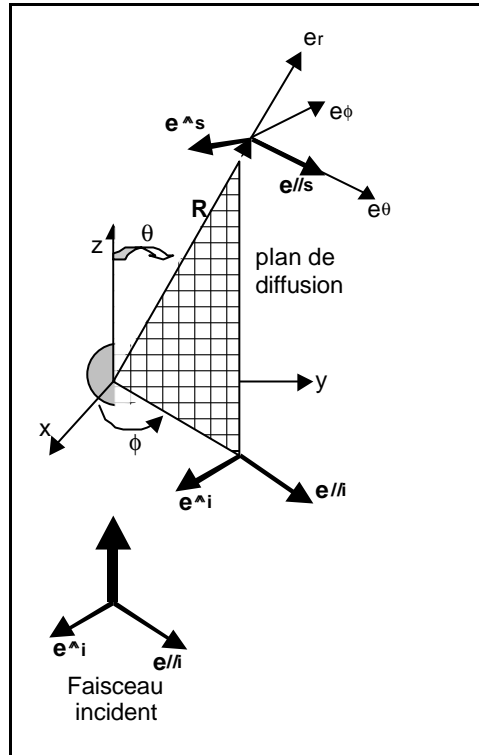


Figure I-2. Schéma angulaire d'un processus de diffusion par une particule sphérique, d'une onde incidente monochromatique et polarisée.

## B. La théorie de Mie

La théorie de la diffusion de Mie<sup>9</sup> concerne la diffusion d'une onde électromagnétique par une sphère homogène dont le rayon est du même ordre de grandeur que l'onde incidente. Cette théorie permet de décrire toutes les particules liquides en suspension dans l'atmosphère. Elle est également utilisée, en première approximation, dans l'étude de nombreuses particules solides.

Soit une particule sphérique, de rayon  $r$ , plongée dans un milieu d'indice  $n_{ext}$  et recevant une onde plane, continue, de longueur d'onde  $\lambda_{vide}$ . Cette particule est caractérisée par son indice complexe  $n_0$  et son paramètre de taille  $\mathbf{G}$  défini par :

$$I-7 \quad \Gamma = \frac{2\mathbf{p}.n_{ext}.r}{\lambda_{vide}} = \frac{2\mathbf{p}r}{\lambda} = k.r$$

Un indice de réfraction relatif  $m = n_0/n_{ext}$  peut également être défini. Grâce à la symétrie de révolution d'une particule sphérique homogène, l'équation I-2 s'écrit comme :

$$I-8 \quad \begin{bmatrix} E_{//,e} \\ E_{\perp,e} \end{bmatrix} = \frac{e^{i.k.(R-z)}}{-i.k.R} \begin{bmatrix} S_2(\mathbf{q}) & 0 \\ 0 & S_1(\mathbf{q}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{//,i} \\ E_{\perp,i} \end{bmatrix}$$

La matrice de diffusion ne possède alors pas de termes non diagonaux, ce qui traduit l'absence de dépolarisation lors de la diffusion de la lumière par une sphère. Compte tenu de cette symétrie sphérique et des conditions au bord, la solution pourra se décomposer sur la base des harmoniques sphériques, fournissant une solution analytique au problème.

Soit  $I_{diff}(\mathbf{qj})$  l'intensité diffusée par une sphère, à la distance  $R$  dans une direction  $(\mathbf{qj})$ , lorsqu'elle est illuminée sous une intensité incidente  $I_{incid}$  :

$$I-9 \quad I_{diff}(\mathbf{qj}) = \frac{I_i}{k^2 \cdot R^2} \left( |S_1(\mathbf{q})|^2 \cdot \sin^2(\mathbf{j}) + |S_2(\mathbf{q})|^2 \cos^2(\mathbf{j}) \right)$$

avec les coefficients  $S_1(\mathbf{q})$  et  $S_2(\mathbf{q})$  qui sont, dans le cas d'une sphère :

$$I-10 \quad S_1(\mathbf{q}) = \sum_{p=1}^{+\infty} \frac{2 \cdot p + 1}{p \cdot (p + 1)} \cdot (a_p \cdot \mathbf{p}_p + b_p \cdot \mathbf{t}_p)$$

$$I-11 \quad S_2(\mathbf{q}) = \sum_{p=1}^{+\infty} \frac{2 \cdot p + 1}{p \cdot (p + 1)} \cdot (a_p \cdot \mathbf{t}_p + b_p \cdot \mathbf{p}_p)$$

où les coefficients de diffusion  $a_p$  et  $b_p$  sont définis à partir des fonctions de Ricatti-Bessel et de Hankel, de l'indice de réfraction relatif  $m$  et  $\mathbf{t}_p$  et  $\mathbf{p}_p$  les fonctions de Legendre de degré  $p$ .

Les sections efficaces de diffusion  $\mathbf{s}_{diff}^{Aero}$ , d'extinction  $\mathbf{s}_{ext}^{Aero}$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{s}_{back}^{Aero}$  sont alors données par :

$$I-12 \quad \mathbf{s}_{diff}^{Aero} = \frac{2 \cdot \mathbf{P}}{k^2} \cdot \sum_{p=1}^{+\infty} (2 \cdot p + 1) \cdot (|a_p|^2 + |b_p|^2)$$

$$I-13 \quad \mathbf{s}_{ext}^{Aero} = \frac{2 \cdot \mathbf{P}}{k^2} \cdot \sum_{p=1}^{+\infty} (2 \cdot p + 1) \cdot Re(a_p + b_p)$$

$$I-14 \quad \mathbf{s}_{back}^{Aero} = \frac{\mathbf{P}}{k^2} \cdot \left| \sum_{p=1}^{+\infty} (2 \cdot p + 1) \cdot (-1)^p \cdot (a_p + b_p) \right|^2$$

La section efficace d'absorption  $\mathbf{s}_{abs}^{Aero}$  est elle donnée par :  $\mathbf{s}_{abs}^{Aero} = \mathbf{s}_{ext}^{Aero} - \mathbf{s}_{diff}^{Aero}$ .

Le calcul montre une grande complexité de la figure de diffusion pour une sphère homogène dès que la taille de la particule augmente (Figure I-3).

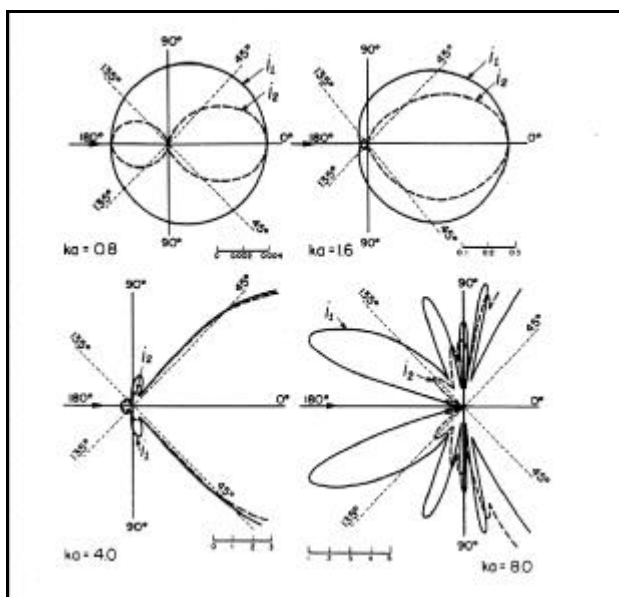


Figure I-3. Diagramme polaire de diffusion par une sphère pour différents paramètres de taille ( $G = 0,8 ; 1,6 ; 4 ; 8$ ) et pour les polarisations parallèle (pointillés) et perpendiculaire (traits pleins).

Des algorithmes ont aussi été développés pour traiter le cas des particules non sphériques et notamment le cas le plus simple, après la sphère, des particules sphéroïdes. De plus, pour traiter le cas des sphères inhomogènes (ou sphères poreuses), il est possible de définir, à l'aide de règles empiriques, un indice de réfraction équivalent qui tiendra compte des différents constituants. Cet indice équivalent peut par exemple être défini par<sup>10</sup> :

$$I-15 \quad n_{equiv} = \sqrt{\frac{\sum_i n_i^2 \cdot V_i}{\sum_i V_i}}$$

où  $V_i$  et  $n_i$  sont respectivement la fraction volumique du constituant  $i$  et son indice de réfraction (réel ou complexe).

### C. Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh concerne les particules qui ont un paramètre de taille  $G$  très petit devant 1 (rayon de la particule très petit devant la longueur d'onde), ce qui correspond, pour le visible, aux gaz et aux très petits aérosols (typiquement 10 nm) de l'atmosphère. Le calcul se simplifie alors de façon sensible. En effet, lorsque la particule est soumise à une onde plane monochromatique, de longueur d'onde  $\lambda$ , le champ électrique de cette onde induit dans la particule un moment dipolaire oscillant, créant alors un rayonnement électromagnétique, à l'instar d'un dipôle moléculaire. Une distribution angulaire très simple (Figure I-4) de l'intensité diffusée à une distance  $R$  est alors obtenue pour une lumière incidente polarisée :

$$I-16 \quad \begin{cases} I_e(\mathbf{q}, \mathbf{f}=0) = \frac{16\mathbf{p}^4 r^6}{\mathbf{I}^4 R^2} \left| \frac{m^2-1}{m^2+2} \right|^2 \cos^2(\mathbf{q}) I_{incid} \\ I_e\left(\mathbf{q}, \mathbf{f}=\frac{\mathbf{p}}{2}\right) = \frac{16\mathbf{p}^4 r^6}{\mathbf{I}^4 R^2} \left| \frac{m^2-1}{m^2+2} \right|^2 I_{incid} \end{cases}$$

Et pour une lumière incidente non polarisée :

$$I-17 \quad I_{non\_pol}(\mathbf{q}) = \frac{1}{2} \left( I_e(\mathbf{q}, \mathbf{f}=0) + I_e\left(\mathbf{q}, \mathbf{f}=\frac{\mathbf{p}}{2}\right) \right) = \frac{8\mathbf{p}^4 r^6}{\mathbf{I}^4 R^2} \left| \frac{m^2-1}{m^2+2} \right|^2 (1 + \cos^2(\mathbf{q})) I_{incid}$$

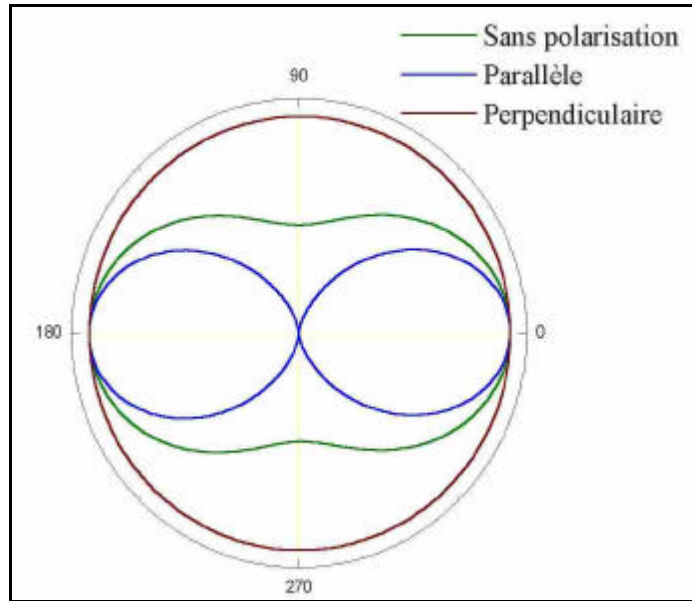


Figure I-4. Distribution angulaire normalisée de la diffusion Rayleigh pour des polarisations incidentes parallèle ou perpendiculaire ainsi que pour une lumière incidente non polarisée.

Il est aussi possible de connaître les sections efficaces d'absorption, de diffusion et de rétrodiffusion, pour une lumière incidente non polarisée, dans cette limite ( $G \ll 1$ ). Les sections efficaces sont les suivantes :

$$I-18 \quad \mathbf{s}_{abs}^{molec} = \frac{8 \cdot \mathbf{p}^2 \cdot r^3}{\mathbf{I}} \cdot \text{Im} \left( \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)$$

$$I-19 \quad \mathbf{s}_{diff}^{molec} = \frac{128 \cdot \mathbf{p}^5 \cdot r^6}{3 \cdot \mathbf{I}^4} \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2$$

$$I-20 \quad \frac{d\mathbf{s}_{back}^{molec}(\mathbf{q}=\mathbf{p})}{d\Omega} = \frac{16 \cdot \mathbf{p}^4 \cdot r^6}{\mathbf{I}^4} \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2$$

La caractéristique essentielle de la diffusion Rayleigh est sa dépendance en  $1/\mathbf{I}^4$  qui favorise de manière très importante la diffusion des courtes longueurs d'onde.



## D. Diffusion de la lumière par des particules fractales

Beaucoup de systèmes physiques peuvent être décrits par une géométrie fractale. Ainsi une partie des aérosols atmosphériques, principalement les suies, possède une géométrie fractale qui est liée à leur croissance par agrégation de monomères.

Une particule fractale peut être définie comme une particule pour laquelle il y ait une dimension fractale  $D$  telle que le nombre  $N_{mono}$  de monomères entrant dans la composition de la particule et son rayon de giration  $R_g$  soient liés par la relation :

$$I-21 \quad N_{mono} \propto R_g^{-D}$$

A l'aide d'une théorie de champ moyen<sup>11,12</sup>, négligeant les diffusions multiples qui peuvent avoir lieu à l'intérieur de la structure fractale, les sections efficaces de diffusion de la particule fractale sont calculées de façon suffisamment précise. Pour cela, les sections efficaces de la particule fractale sont exprimées en fonction de celles du monomère (ceci est vrai pour des particules de dimension fractale  $D < 2$ ) :

$$I-22 \quad \mathbf{s}_{abs}^{Aero} = N_{mono} \mathbf{s}_{abs}^{mono}$$

$$I-23 \quad \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{Aero}}{d\Omega} = N_{mono}^2 S(x) \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{mono}}{d\Omega}$$

avec  $x = q.R_g = \frac{4\mathbf{p}}{\mathbf{l}} \cdot \sin\left(\frac{\mathbf{q}}{2}\right) R_g$ ,  $\mathbf{q}$  l'angle de diffusion et  $S(x)$  le facteur de structure optique de la particule fractale considérée. Ce facteur de structure peut être approximé par<sup>13</sup> :

$$I-24 \quad S(x) = \left(1 + \frac{2.x^2}{3.D}\right)^{-\frac{D}{2}}$$

Or, les monomères sont de petite dimension par rapport à la longueur d'onde  $\mathbf{l}$  de la lumière incidente, du moins dans le domaine du visible. Dans le cas de la suie, par exemple, le diamètre est estimé entre 8 et 30 nm. Leurs sections efficaces peuvent donc être calculées pour l'absorption et la diffusion :

$$I-25 \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{s}_{abs}^{mono} = -4.\mathbf{p}.k.r^3 \cdot \text{Im}\left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right) \\ \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{mono}}{d\Omega} = k^4 . r^6 \cdot \left|\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right|^2 \end{array} \right.$$

La section efficace d'absorption et de diffusion de l'agrégat sont alors :

$$I-26 \quad \begin{cases} \mathbf{s}_{abs}^{Aero} = -N_{mono} \cdot 4 \cdot \mathbf{p} \cdot k \cdot r^3 \cdot \text{Im} \left( \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \\ \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{Aero}}{d\Omega} = N_{mono}^2 \cdot S(x) \cdot k^4 \cdot r^6 \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \end{cases}$$

Enfin, en comparant les ordres de grandeurs des sections efficaces d'extinction et de diffusion, on constate que :

$$I-27 \quad \begin{cases} \mathbf{s}_{abs}^{Aero} \propto N_{mono} \cdot k \cdot r^3 \cdot \text{Im} \left( \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \\ \mathbf{s}_{diff}^{Aero} \propto N_{mono}^2 \cdot k^4 \cdot r^6 \cdot \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \end{cases}$$

Le rayon du monomère étant petit devant la longueur d'onde, on aura très rapidement  $\mathbf{s}_{abs}^{Aero} \gg \mathbf{s}_{diff}^{Aero}$  lorsque le monomère possédera une partie imaginaire dans son indice de réfraction. Ainsi, pour une particule fractale constituée de monomères de suie ayant une composante complexe relativement importante (environ 50% de la fraction réelle), l'extinction sera due essentiellement à l'absorption de l'onde incidente.

## E. Coefficients d'extinction et de rétrodiffusion

Définissons enfin, les coefficients d'extinction  $\mathbf{a}_{ext}^{molec}$ , de diffusion  $\mathbf{a}_{diff}^{molec}$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{b}_{molec}$  :

$$I-28 \quad \mathbf{a}_{ext}^{molec}(\mathbf{l}) = N_{molec} \cdot \mathbf{s}_{ext}^{molec}(\mathbf{l}) \quad (\text{en m}^{-1})$$

$$I-29 \quad \mathbf{a}_{diff}^{molec}(\mathbf{l}) = N_{molec} \cdot \mathbf{s}_{diff}^{molec}(\mathbf{l}) \quad (\text{en m}^{-1})$$

$$I-30 \quad \mathbf{b}_{molec}(\mathbf{l}) = N_{molec} \cdot \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{molec}(\mathbf{l}, \mathbf{q} = \mathbf{p})}{d\Omega} \quad (\text{en sr}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$$

où  $N_{molec}$  est le nombre de molécules par  $\text{cm}^3$  ( $N_{molec} \approx 2,55 \cdot 10^{19}$  molecules/ $\text{cm}^3$  au niveau de la mer).

Les coefficients d'extinction  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$ , de diffusion  $\mathbf{a}_{diff}^{Aero}$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{b}_{Aero}$  des aérosols s'expriment respectivement en fonction des sections efficaces d'extinction  $\mathbf{s}_{ext}^{Aero}$  et de diffusion  $\mathbf{s}_{diff}^{Aero}$  d'une particule selon les équations suivantes :

$$I-31 \quad \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{l}) = \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{ext}^{Aero}(r, \mathbf{l}) \mathbf{r}(r) \cdot dr$$

$$I-32 \quad \mathbf{a}_{diff}^{Aero}(\mathbf{l}) = \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{diff}^{Aero}(r, \mathbf{l}) \mathbf{r}(r) \cdot dr$$

$$I-33 \quad \mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}) = \int_0^{\infty} \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{Aero}(r, \mathbf{I}, \mathbf{q} = \mathbf{p})}{d\Omega} \cdot \mathbf{r}(r) \cdot dr$$

avec  $\mathbf{r}(r)$  la distribution de taille pour un type de particule de rayon  $r$ . Il existe bien évidemment plusieurs types de particules ayant la même taille et donc  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$  et  $\mathbf{b}_{Aero}$  sont la somme des contributions de chacun de ces types.

Il est utile de rappeler que les molécules et les aérosols contribuent aux coefficients totaux d'extinction  $\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{b}(z, \mathbf{I})$  qui s'écrivent alors :

$$I-34 \quad \begin{aligned} \mathbf{b}(\mathbf{I}) &= \mathbf{b}_{molec}(\mathbf{I}) + \mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}) \\ \mathbf{a}_{ext}(\mathbf{I}) &= \mathbf{a}_{diff}^{molec}(\mathbf{I}) + \mathbf{a}_{abs}^{molec}(\mathbf{I}) + \mathbf{a}_{diff}^{Aero}(\mathbf{I}) + \mathbf{a}_{abs}^{Aero}(\mathbf{I}) \end{aligned}$$

Ce sont ces deux grandeurs  $\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$  et  $\mathbf{b}(z, \mathbf{I})$  qui seront utilisées par la suite dans la description des différentes méthodes de lidar. Les méthodes de lidar aérosols sont décrites dans la partie suivante. La méthode DIAL de mesure de la concentration des polluants gazeux est quant à elle détaillée dans l'annexe A.

### III. Principe du lidar

Le lidar consiste à envoyer des impulsions laser dans l'atmosphère et à mesurer leur rétrodiffusion en fonction du temps (Figure I-5). Le faisceau laser est à la fois diffusé et absorbé par les molécules (gaz) et par les aérosols, contenus dans l'atmosphère. L'extinction augmente avec la quantité d'aérosols et avec la concentration en molécules. Une partie de cette lumière est rétrodiffusée vers l'émetteur. Pour augmenter l'angle solide de réception, un télescope placé coaxialement au laser est utilisé. Le fait que le laser soit pulsé permet une détection en fonction du temps  $t$  et donc de la distance  $z$  entre le laser et le point de mesure ( $z=c.t/2$ ,  $c$  étant la vitesse de la lumière dans l'air).

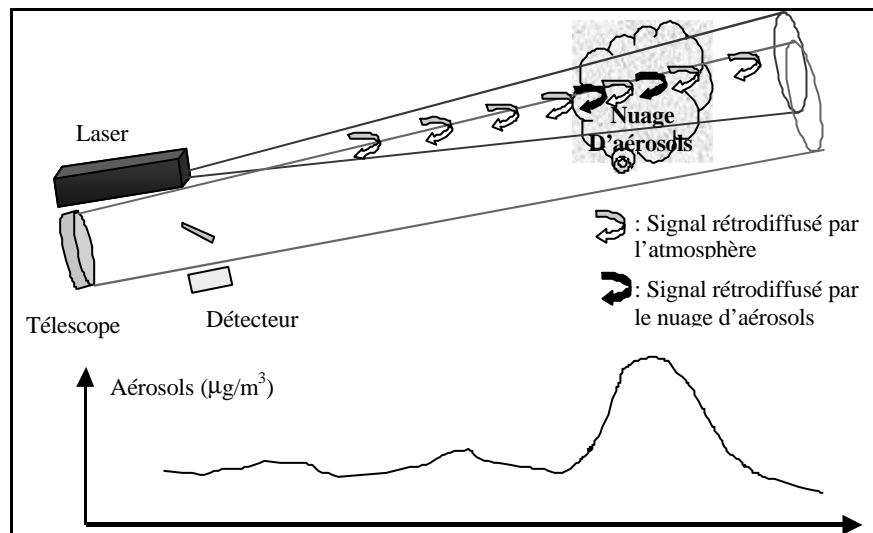


Figure I-5. Schéma de principe du lidar aérosols.

#### A. L'équation lidar

L'intensité lumineuse rétrodiffusée  $I(z, \mathbf{I})$ , à la longueur d'onde  $\mathbf{I}$  et à la distance  $z$ , a pour expression dans le cas d'une diffusion élastique (en négligeant la diffusion multiple) :

$$\text{I-35} \quad I(z, \mathbf{I}) = I_0(0, \mathbf{I}) \frac{A_0}{z^2} \mathbf{b}(z, \mathbf{I}) \Delta z \mathbf{c}(z, \mathbf{I}) \exp\left(-2 \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) dz\right)$$

- $I_0(0, \mathbf{I})$  est l'intensité lumineuse émise à la longueur d'onde  $\mathbf{I}$  par le laser.
- $A_0/z^2$  est l'angle solide d'acceptance du récepteur optique ( $A_0$  est par exemple l'aire de détection effective du télescope).
- $\mathbf{b}(z, \mathbf{I})$  est le coefficient volumique total de rétrodiffusion.
- $\Delta z = \frac{c \Delta t}{2}$  avec  $\Delta t$  la durée d'impulsion du laser. La résolution spatiale est en dernier lieu limité par la largeur de l'impulsion du laser, mais en pratique aussi par la rapidité de l'électronique du système de détection.
- $\chi(z, \mathbf{I}) = \mathbf{k}(\mathbf{I}) \cdot Y(z)$  est l'efficacité de détection, où  $Y(z)$  représente le recouvrement entre les champs de vision de l'émetteur et du récepteur.  $Y(z)$  est appelé facteur de compression géométrique.  $\mathbf{k}(\mathbf{I})$  correspond au facteur de transmission spectrale du système de détection (monochromateur, filtres spectraux, réflectivité des miroirs...).
- $\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$  est le coefficient d'extinction atmosphérique total.
- $\exp\left(-2 \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) dz\right)$  exprime la loi de Beer-Lambert sur l'aller-retour de la lumière entre 0 et  $z$ .

Une description détaillée de ces différents paramètres et de leurs effets pourra être trouvée, par exemple, dans les références suivantes : Measures<sup>14</sup>, Wolf<sup>4</sup>.

## B. Inversion de l'équation lidar

L'inversion des signaux lidar équivaut à résoudre l'équation I-35 en supposant que la détection s'effectue à la même longueur d'onde que celle du laser (diffusion élastique).  $J(z)$  est définie comme étant le produit des différents paramètres physiques du système :

$$\text{I-36} \quad J(z) = I_0(0, \mathbf{I}) \cdot \mathbf{c}(z, \mathbf{I}) \cdot A_0 \cdot \frac{c \cdot \Delta t}{2}$$

Ces différents paramètres du système peuvent être évalués avant la mesure lidar et dépendent exclusivement du système. De plus, la compression géométrique  $Y(z)$ , peut être calculée séparément et tend vers 1 après une certaine distance, et devient donc indépendante de  $z$  au-delà.  $J(z)$  tend alors vers une constante quand la compression géométrique est atteinte. On définit alors  $L(z, \mathbf{I})$  comme étant :

$$I-37 \quad L(z, \mathbf{I}) = \ln(z^2 \cdot I(z, \mathbf{I})) = \ln(Cte) + \ln(\mathbf{b}(z, \mathbf{I})) - 2 \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(r, \mathbf{I}) dr$$

Cette équation est alors dérivée par rapport à  $z$  :

$$I-38 \quad \frac{dL(z, \mathbf{I})}{dz} = \frac{1}{\mathbf{b}} \cdot \frac{d\mathbf{b}(z, \mathbf{I})}{dz} - 2\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$$

### 1. Approximation de l'atmosphère homogène par zone

Si l'atmosphère est considérée comme étant homogène par zone,  $\mathbf{b}$  est alors constant sur chacune de celles-ci. Dans chacune des zones comprises entre  $z_1$  et  $z_2$  on obtient donc :

$$I-39 \quad \frac{dL(z, \mathbf{I})}{dz} \cong -2\mathbf{a}_{ext}(z; \mathbf{I}) \Leftrightarrow \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) = -\frac{1}{2} \cdot \frac{dL(z, \mathbf{I})}{dz}$$

Ceci est à la base de la méthode d'inversion des pentes. Sur chaque intervalle où  $L = L(z)$  apparaît comme étant presque une droite, l'ajustement de la pente de la droite des moindres carrés sur la courbe  $L$  est utilisé comme la meilleure estimation de  $dL/dz$ . De plus, une atmosphère inhomogène peut, en première approximation, être considérée comme homogène sur de petits intervalles, la méthode des pentes permet alors de déterminer  $\mathbf{a}_{ext} = \mathbf{a}_{ext}(z)$ . En regardant l'équation I-38, il est clair que ceci équivaut à ce que  $\mathbf{b}^{-1} |d\mathbf{b}/dz| \ll 2\mathbf{a}_{ext}$  au moins sur la plus grande partie de la courbe de  $L$ . Cependant cette hypothèse n'est pas bien justifiée pour de nombreuses situations intéressantes comme des conditions de nuages, de brouillard, de panache et de poussières.

### 2. Méthode d'inversion de Klett

Pour pouvoir résoudre de manière analytique l'équation I-38 lorsque  $d\mathbf{b}/dz \neq 0$ , il faut nécessairement connaître ou supposer une relation entre  $\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$  et  $\mathbf{b}(z, \mathbf{I})$ . Cette relation est bien connue dans le cas des gaz :

$$I-40 \quad \frac{\mathbf{a}_{ext}^{molec}}{\mathbf{b}_{molec}} = 8p/3$$

Mais cette relation devient très difficile à déterminer dans le cas de la diffusion par des aérosols, de par la diversité de leurs formes, taille et composition. Cependant, de nombreuses études théoriques et expérimentales montrent que dans les cas où la contribution des particules domine par rapport à celle des gaz atmosphériques (i.e.  $\mathbf{b} \gg \mathbf{b}_{Aero}$  et  $\mathbf{a}_{ext} \gg \mathbf{a}_{ext}^{Aero}$ , dans le cas contraire il faudra soustraire les paramètres Rayleigh avant), cette relation peut s'écrire sous la forme d'une loi de puissance<sup>15</sup> :

$$I-41 \quad \mathbf{b}(z, \mathbf{I}) = C_0 \cdot \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})^{K_{klett}}$$

où  $C_0$  est une constante et  $K_{klett}$  dépend de la longueur d'onde et des propriétés des aérosols mais est généralement compris entre 0,67 et 1. Ces valeurs sont des valeurs empiriques moyennes déterminées à partir d'expériences<sup>16,17</sup>.

Si une telle relation est supposée, l'équation I-38 devient :

$$I-42 \quad \frac{dL}{dz} = \frac{K_{klett}}{\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})} \frac{d\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})}{dz} - 2\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$$

Cette équation est une équation du type Bernoulli ou Ricatti homogène dont la solution générale s'écrit :

$$I-43 \quad \mathbf{a}_{ext}^{-1}(z, \mathbf{I}) = \exp\left(-\int_{z_0}^z \frac{1}{K_{klett}} \frac{dL}{dr} dr\right) \left[ C_I - 2 \int_{z_0}^z \frac{1}{K_{klett}} \exp\left(-\int^r \frac{1}{K_{klett}} \frac{dL}{dr'} dr'\right) dr \right]$$

Or pour  $z = z_0$  dans la formule précédente,  $\mathbf{a}_{ext}^{-1}(z_0, \mathbf{I}) = C_I$ . Si  $K_{klett}$  est considéré comme une constante, la solution suivante peut être obtenue :

$$I-44 \quad \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) = \frac{e^{\frac{L(z, \mathbf{I}) - L(z_0, \mathbf{I})}{K_{klett}}}}{\frac{1}{\mathbf{a}_{ext}(z_0, \mathbf{I})} + \frac{2}{K_{klett}} \cdot \int_z^{z_0} e^{\frac{L(r, \mathbf{I}) - L(z_0, \mathbf{I})}{K_{klett}}} \cdot dr}$$

où  $z_0$  est une distance de référence prise au niveau du sol.

Cependant, cette méthode a tendance à produire des résultats aberrants. Pour illustrer le fait qu'en prenant le signal connu au niveau du sol, l'inversion n'est pas stable vis à vis des erreurs sur  $\mathbf{a}_{ext}(z_0, \mathbf{I})$ , une distribution de  $\mathbf{a}_{ext}$  est choisie sous la forme d'un créneau<sup>18</sup> (Figure I-6 (b) trait plein). Le signal lidar est alors calculé avec l'équation lidar, pour cette distribution (Figure I-6 (a)), puis inversé afin de retrouver la distribution de  $\mathbf{a}_{ext}$ , en prenant une erreur sur la détermination du coefficient d'extinction pour la valeur limite  $z_0$  (Figure I-6 (b)). Pour une erreur de 1% la distribution retrouvée diffère alors fortement de celle de départ.

Mais, ces problèmes peuvent être résolus en choisissant d'intégrer l'équation I-43 à partir d'une distance de référence  $z_m$  (prise vers la fin du signal lidar) de telle sorte que la solution est générée pour  $z \ll z_m$  plutôt que pour  $z \approx z_0$  comme avant. La solution de l'équation I-38 (en l'absence de diffusion multiple et pour des effets d'absorption par les gaz négligeables) est alors :

$$I-45 \quad \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) = \frac{e^{\frac{L(z, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I})}{K_{klett}}}}{\frac{1}{\mathbf{a}_{ext}(z_m, \mathbf{I})} + \frac{2}{K_{klett}} \cdot \int_z^{z_m} e^{\frac{L(r, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I})}{K_{klett}}} \cdot dr}$$

$\mathbf{a}_{ext}(z_m, \mathbf{I})$  est une valeur limite, calculée pour une distance  $z_m$  se situant à la fin du signal telle que  $z \ll z_m$ .  $z_m$  est choisi grand de telle sorte qu'il n'y ait plus d'aérosols ( $\mathbf{b}_{aero}(z_m) = \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(z_m) = 0$ ).

Pour illustrer le fait qu'en prenant le signal connu à l'infini, l'inversion est plus stable vis à vis des erreurs sur  $\mathbf{a}_{ext}(z_m, \mathbf{I})$ , on procède de la même façon que précédemment. Même pour une erreur de 50% sur le coefficient d'extinction en  $z_m$ , la distribution de  $\mathbf{a}_{ext}$  retrouvée est proche de la distribution en créneau de départ (Figure I-6 (c)).

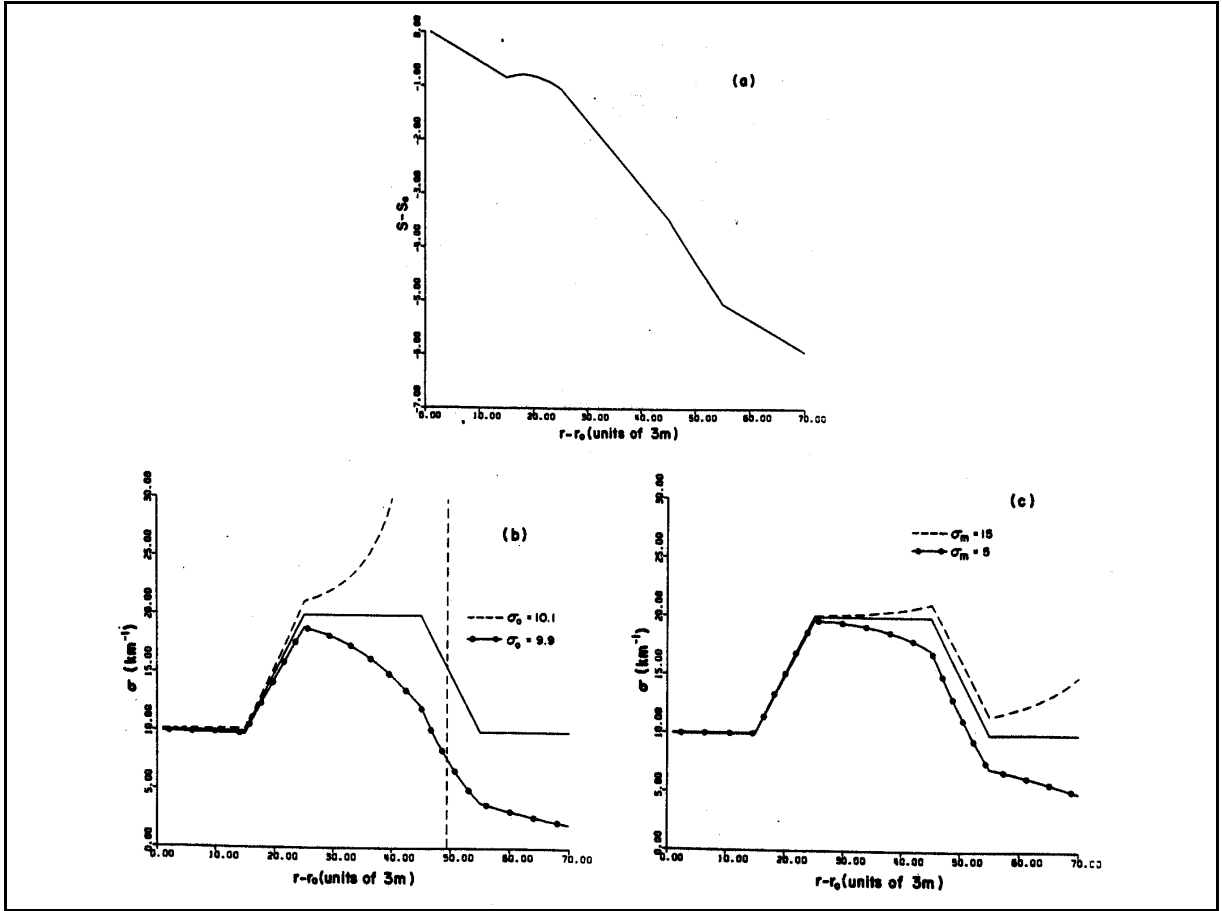


Figure I-6. Effet sur les inversions dû aux erreurs d'estimation de  $\mathbf{a}_{ext}$  aux valeurs limites<sup>18</sup>  $z_0$  et  $z_m$ . Le signal lidar correspondant à la distribution en créneau (b, traits pleins) de  $\mathbf{a}_{ext}$  est présenté en (a). Les figures (b) et (c) montrent les inversions du signal respectivement à partir de l'équation I-44 (pour une erreur sur la valeur limite  $\mathbf{a}_{ext}(z_0, \mathbf{I})$  de  $\pm 1\%$ ) et de l'équation I-45 (pour une erreur sur la valeur limite  $\mathbf{a}_{ext}(z_m, \mathbf{I})$  de  $\pm 50\%$ ).

Jusqu'à présent, le coefficient de proportionnalité entre  $\mathbf{a}_{ext}$  et  $\mathbf{b}$  a été considéré comme constant (Equation I-41), mais il est plus réaliste que  $C$  varie en fonction de la distance. La relation qui lie  $\mathbf{a}_{ext}$  et  $\mathbf{b}$  s'écrit alors :

$$\text{I-46} \quad \mathbf{b}(z, \mathbf{I}) = C(z) \cdot \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})^{K_{klett}}$$

En substituant cette expression dans l'équation I-38 on trouve :

$$\text{I-47} \quad \frac{dL(z, \mathbf{I})}{dz} = \frac{1}{C(z)} \frac{dC(z)}{dz} + \frac{K_{klett}}{\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})} \frac{d\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})}{dz} - 2\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$$

Ou

$$\text{I-48} \quad \frac{d(L(z, \mathbf{I}) - \ln C(z))}{dz} = \frac{K_{klett}}{\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})} \frac{d\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})}{dz} - 2\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I})$$

En rapprochant l'équation I-48 de l'équation I-38, la solution s'écrit alors sous la forme :

$$I-49 \quad \mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}) = \frac{\left( \mathbf{c}(z_m) / \mathbf{c}(z) \right)^{1/K_{Klett}} e^{\frac{L(z, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I})}{K_{Klett}}}}{\frac{1}{\mathbf{a}_{ext}(z_m, \mathbf{I})} + \frac{2}{K_{Klett}} \cdot \int_z^{z_m} \left( \mathbf{c}(z_m) / \mathbf{c}(z) \right)^{1/K_{Klett}} e^{\frac{L(r, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I})}{K_{Klett}}} \cdot dr}$$

Les équations I-46 et I-49 permettent donc d'inverser les signaux lidar, en négligeant la contribution Rayleigh, et de déterminer ainsi les coefficients d'extinction  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(z)$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{b}_{Aero}(z)$  pour les aérosols en fonction de la distance  $z$  (Figure I-7), en optimisant les valeurs de  $C(z)$  et de  $K_{Klett}$ .

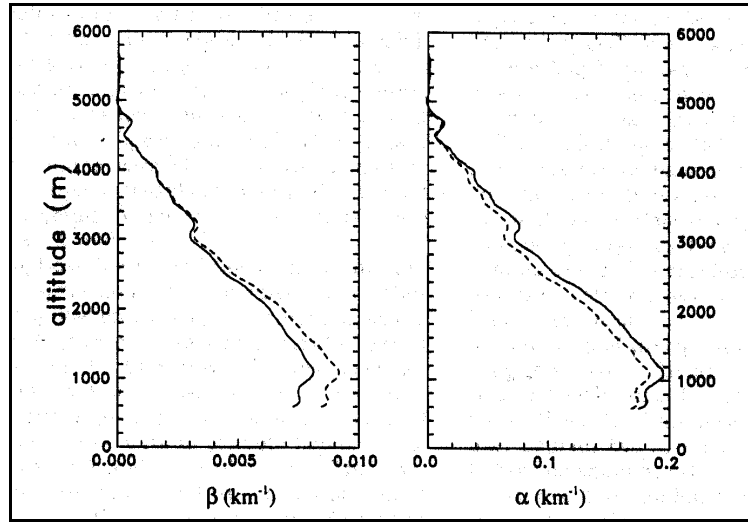


Figure I-7. Profils des coefficients de rétrodiffusion et d'extinction d'aérosols inversé par la méthode de Klett (pointillés)<sup>19</sup>.

Dans les calculs précédents, la contribution des gaz a été négligée mais il est possible d'en tenir compte pour mieux remonter aux concentrations en aérosols à partir du signal lidar expérimental. Le coefficient total de rétrodiffusion s'exprime ainsi par :

$$I-50 \quad \mathbf{b}(z, \mathbf{I}) = C_{Aero}(z) \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(z, \mathbf{I}) + C_{molec} \mathbf{a}_{ext}^{molec}(z, \mathbf{I})$$

avec  $K_{Klett} = 1$ .

$$C_{molec} = 3/8p.$$

La solution est alors la suivante<sup>15</sup> :

$$I-51 \quad \mathbf{b}(z) = \frac{\exp(L - L_m)}{\left[ \frac{1}{\mathbf{b}(z_m)} + 2 \int_z^{z_m} \frac{\exp(L - L_m) dr}{C_{Aero}(r)} \right]}$$

avec  $L - L_m = L(z, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I}) + \frac{2}{C_{molec}} \int_z^{z_m} \mathbf{b}_{molec}(r) dr - 2 \int_z^{z_m} \frac{\mathbf{b}_{molec}(r) dr}{C_{Aero}(r)}$  où le coefficient de

rétrodiffusion Rayleigh  $\mathbf{b}_{molec}(z, \mathbf{I})$  peut être calculé, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique<sup>20</sup> ou mesurés par ballon-sonde.



Cette méthode ne permet cependant pas de remonter à la concentration en aérosols. Mais la distribution spectrale des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion dépend fortement de la distribution de taille des particules, de telle sorte qu'en utilisant un lidar avec plus d'une longueur d'onde, des informations sur la distribution de taille des aérosols peuvent être obtenues. Différentes méthodes lidar multispectral sont décrites dans les paragraphes suivants.

## IV. Mesure de concentration d'aérosols par lidar : lidar multispectral

L'information sur la distribution de taille des aérosols est contenue dans la dépendance spectrale des paramètres  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$  et  $\mathbf{b}_{Aero}$  qui pour un régime de diffusion simple, s'expriment par :

$$I-52 \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}) = \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{ext}^{Aero}(r, \mathbf{I}) \mathbf{r}(r) dr = \int_0^{\infty} \mathbf{p} \cdot r^2 Q_{ext}^{Aero}(r, \mathbf{I}) \mathbf{r}(r) dr \\ \mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}) = \int_0^{\infty} \frac{d\mathbf{s}_{diff}^{Aero}}{d\Omega}(\mathbf{q} = \mathbf{p}, r, \mathbf{I}) \mathbf{r}(r) dr = \int_0^{\infty} \mathbf{p} \cdot r^2 Q_{back}^{Aero}(r, \mathbf{I}) \mathbf{r}(r) dr \end{array} \right.$$

où  $Q_{ext}^{Aero}(r, \mathbf{I})$  et  $Q_{back}^{Aero}(r, \mathbf{I})$  sont respectivement les efficacités d'extinction et de rétrodiffusion pour une particule de rayon  $r$ , à la longueur d'onde  $\mathbf{I}$ .

### A. Méthode des distributions prédéfinies

Pour les inversions à partir de mesures lidar à peu de longueurs d'onde (par exemple quatre), la méthode utilisée consiste à réaliser un ajustement non-linéaire des paramètres de la distribution de taille des aérosols, dont la forme est choisie *a priori*, de manière à reproduire les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion mesurés aux différentes longueurs d'onde. Cette méthode, appelée méthode des distributions prédéfinies, a été appliquée, par exemple, pour déterminer la distribution de taille moyenne des aérosols stratosphériques provenant de l'éruption du Mont Pinatubo<sup>21,26</sup>.

Cependant, tous les types de particules qui existent dans l'atmosphère ne peuvent être décrit par une seule fonction de distribution. Quelques distributions sont cependant capables de bien représenter la plupart des différentes sortes de distribution des particules atmosphériques. Ainsi, les distributions log-normale<sup>20</sup> et de Djeirmendjian<sup>22</sup> sont, par exemple, utilisées pour une atmosphère brumeuse ou nuageuse et la distribution de Junge<sup>23</sup> pour caractériser une atmosphère claire ou avec une légère brume.

La recherche des paramètres, pour lesquels une distribution de taille va reproduire les coefficients d'extinction et/ou de rétrodiffusion mesurés aux différentes longueurs d'onde, revient à minimiser la grandeur  $\mathcal{C}^2$  qui exprime l'écart sur toutes les longueurs d'onde entre les courbes de dépendance spectrale de  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$  et  $\mathbf{b}_{Aero}$  produites à partir de l'ajustement non-linéaire des paramètres de la distribution et la courbe expérimentale. Cette grandeur s'exprime par :

$$I-53 \quad \mathbf{c}^2 = \sum_{j=1}^J \frac{(S_j(z, \mathbf{I}_j) - F(z, \mathbf{I}_j))^2}{\mathbf{e}(\mathbf{I}_j)^2}$$

où  $S_j(z, \mathbf{I}_j) = \ln \left( \frac{I(z, \mathbf{I}_j)}{I_0} \cdot z^2 \cdot \frac{1}{Y(z)} \right)$  est le logarithme de la mesure lidar  $I(z, \mathbf{I}_j)$ , à la

longueur d'onde  $\mathbf{I}_j$ , corrigée en distance et normalisée par l'intensité  $I_0$  du laser et les caractéristiques de réception, décrites par la compression géométrique  $Y(z)$ .

$\mathbf{e}(\mathbf{I}_j)$  traduit le bruit sur les données lidar, à la longueur d'onde  $\mathbf{I}_j$ .

$F(z, \mathbf{I}_j)$  est la fonction qui modélise les mesures et qui s'écrit :

$$I-54 \quad F(z, \mathbf{I}_j) = \ln(\mathbf{b}(z, \mathbf{I}_j)) + 2 \cdot \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(r, \mathbf{I}_j) dr$$

avec pour la rétrodiffusion :  $\mathbf{b}(z, \mathbf{I}_j) = \mathbf{b}_{molec}(z, \mathbf{I}_j) + \mathbf{b}_{Aero}(z, \mathbf{I}_j)$ , et pour l'extinction :  $\mathbf{a}_{ext}(z, \mathbf{I}_j) = \mathbf{a}_{ext}^{molec}(z, \mathbf{I}_j) + \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(z, \mathbf{I}_j)$ .

Les distributions de taille choisies sont paramétrées par un ensemble de constantes  $\{a_i\}$  et les sections efficaces d'extinction et de rétrodiffusion, sont calculées aux différentes longueurs d'onde utilisées, pour les aérosols considérés. Ceci permet alors de déterminer les coefficients d'extinction  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{b}_{Aero}$ , puis de calculer la fonction  $F(z, \mathbf{I}_j)$  et enfin la valeur de  $\mathbf{c}^2$ .

Les paramètres  $\{a_i\}$  s'expriment de la façon suivante pour les distributions considérées ( $r$  étant le rayon des particules) :

- distribution **Log-normale**

$$I-55 \quad \mathbf{r}(r, a_i) = \frac{a_1}{\sqrt{2\pi} a_3} \exp \left( \frac{-1/2 (\ln r - a_2)^2}{a_3^2} \right)$$

Avec  $a_1 = N_0$  : la concentration des aérosols.

$a_2 = \mathbf{m}$  le logarithme du rayon médian.

$a_3 = \mathbf{e}_{quad}$  : l'écart quadratique moyen.

NB : le rayon  $r_0$  correspondant au maximum de la distribution est égal à  $r_0 = \exp(\mathbf{m} - \mathbf{e}_{quad}^2)$ .

- distribution de **Djermendjian**<sup>24</sup>

$$I-56 \quad \mathbf{r}(r, a_i) = a_2 \left( \frac{r}{a_1} \right)^6 \exp \left( -6r/a_1 \right)$$

Avec  $a_1$  : le rayon correspondant au maximum de la distribution.

$a_2$  : une constante de normalisation.

La concentration en particules  $N_0$  est obtenue en intégrant I-56 entre 0 et l'infini.

- distribution de **Junge**

$$I-57 \quad \mathbf{r}(r, a_i) = \frac{a_1}{r^{a_2}}$$

Avec  $a_1$  : la constante de normalisation.

$a_2$  : l'exposant de Junge.

La concentration des particules  $N_0$  est déterminée, pour cette distribution, par l'intégration de  $\mathbf{r}$  entre  $r_{min} = 0,1 \mu\text{m}$  et  $r_{max} = 2 \mu\text{m}$ .

La procédure de recherche des paramètres de la distribution est résumée par l'algorithme décrit Figure I-8.

Au départ,  $z$  est pris égale à  $z_{min}$ . La valeur de  $\mathcal{C}^2(a_1, a_2, a_3)$  est minimisée pour cette distance  $z$ . Pour minimiser la valeur de  $\mathcal{C}^2(a_1, a_2, a_3)$  à  $z$  et  $\mathbf{I}$  fixés, une procédure itérative effectue un petit déplacement des paramètres  $\{a_i\}$ , de la distribution choisie, dans la direction du gradient ( $\{\mathbf{d}a_i = \mathbf{e}(\partial \mathcal{C}^2 / \partial a_i)\}$ ), jusqu'à ce qu'un minimum local soit obtenu pour cette fonction. Des déplacements plus importants sont ensuite réalisés aléatoirement afin de trouver les autres minimums locaux et déterminer ainsi le minimum global. Les valeurs de  $\mathbf{r}(z)$ ,  $\mathbf{a}(z)$  et  $\mathbf{b}(z)$  sont alors calculées pour l'ensemble des valeurs  $\{a_i\}$  de ce minimum global. La distance  $z$  est ensuite augmentée d'un pas  $\mathbf{D}$  et les signaux lidar sont corrigés de l'extinction entre  $z_{min}$  et  $z$ . Puis, le minimum de  $\mathcal{C}^2(a_1, a_2, a_3)$  est recherché pour la nouvelle valeur de  $z$ . On procède ainsi jusqu'à ce que  $z$  ait atteint une valeur maximale  $z_{max}$  déterminée.

Il est à noter que pour cette méthode il est nécessaire d'avoir peu d'incertitudes sur les données brutes et sur la configuration géométrique du système lidar. En effet, l'algorithme est peu stable et peut donc diverger. Ainsi, les études réalisées<sup>25</sup> montrent que pour une incertitude de 5% sur les données, la distribution de taille est obtenue avec une incertitude de l'ordre de 10% dans le meilleur des cas. Cependant, cette méthode a été utilisée lors de nombreuses campagnes avec de bon résultats<sup>25,26</sup> (Figure I-9); lorsque l'atmosphère ne contient pas un éventail trop large de types de particules (par exemple du brouillard, des aérosols stratosphériques...).

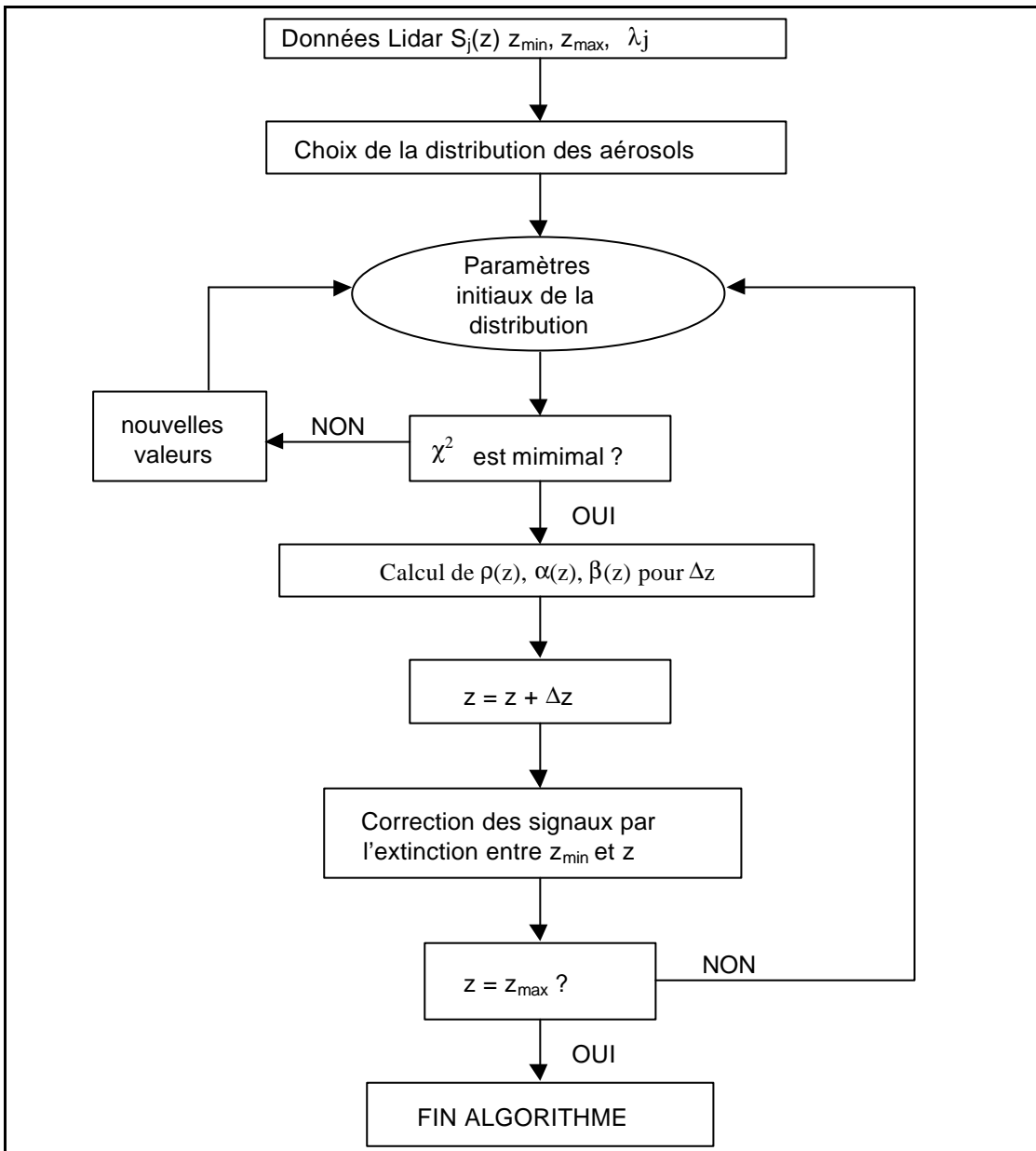


Figure I-8. Algorithme d'ajustement non-linéaire des paramètres d'une distribution de taille prédéfinie.

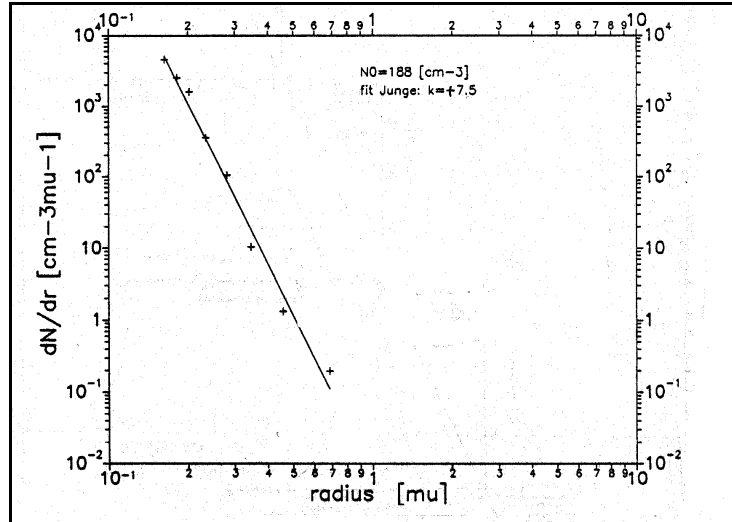


Figure I-9. Comparaison<sup>25</sup> au sol des mesures obtenues par un compteur optique (+) et par lidar multispectral (droite) utilisant la méthode des distributions prédéfinies (ici distribution de Junge).

## B. Méthode utilisant de nombreuses longueurs d'onde<sup>27,28</sup>

Cette méthode est une technique d'inversion stochastique nouvelle, basée sur une méthode Monte-Carlo. Cette méthode, appelée méthode de Monte-Carlo inverse, a un fort potentiel pour déterminer les distributions de taille des aérosols et la distribution des indices de réfraction à partir de mesures lidar à plusieurs longueurs d'onde sans faire d'hypothèses *à priori* sur la forme de la distribution ce qui était le cas de la méthode précédente.

La première équation de I-52 peut être réécrite un peu différemment :

$$I-58 \quad \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}) = N_0 \int_0^{\infty} K_{ext}(r, \mathbf{I}) g(r) dr$$

Avec  $K_{ext}(r, \mathbf{I}) = \mathbf{p}^2 Q_{ext}^{Aero}(r, \mathbf{I})$  la fonction de noyau

$N_0$  la densité totale de particule.

$\mathbf{r}(r) = N_0 \cdot g(r)$  où  $g(r)$  est la fonction de distribution de probabilité normalisée pour

les aérosols qui satisfait à  $\int_0^{\infty} g(r) dr = 1$ .

Si maintenant  $g(r)$  est supposée limitée à l'intérieur d'un intervalle fini ( $r$  compris entre  $r_{min}$  et  $r_{max}$ ), l'intégrale peut alors être approximée par une somme sur un nombre discret  $M$  de rayons :

$$I-59 \quad \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}) = N_0 \sum_{i=1}^M \bar{K}_{ext}(r_i, \mathbf{I}) f(r_i)$$

où  $\bar{K}_{ext}(r_i, \mathbf{I}) = \frac{1}{\mathbf{dr}} \int_{r_i-\mathbf{dr}/2}^{r_i+\mathbf{dr}/2} K_{ext}(r, \mathbf{I}) dr$  est la moyenne de la fonction de noyau sur l'intervalle

de largeur  $\mathbf{dr}$  et centré sur  $r_i$  et  $f(r_i)$  est la fraction des particules dans le même intervalle.

De la même façon, le coefficient de rétrodiffusion peut être écrit sous la forme :

$$\text{I-60} \quad \mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}) = N_0 \sum_{i=1}^M \overline{K}_{back}(r_i, \mathbf{I}) f(r_i)$$

$$\text{Où } \overline{K}_{back}(r_i, \mathbf{I}) = \frac{1}{\mathbf{d}r} \int_{r_i - \mathbf{d}r/2}^{r_i + \mathbf{d}r/2} \mathbf{p}^2 \cdot Q_{back}^{Aero}(r, \mathbf{I}) dr.$$

Pour des données correspondant à  $J$  longueurs d'onde discrètes, les équations I-59 et I-60 peuvent être écrites comme :

$$\text{I-61} \quad \begin{cases} \mathbf{a}_j = N_0 \sum_{i=1}^M (\overline{K}_{ext})_{ji} f_i \\ \mathbf{b}_j = N_0 \sum_{i=1}^M (\overline{K}_{back})_{ji} f_i \end{cases}$$

Le nombre  $M$  d'intervalles utilisé pour approximer l'intégrale de l'équation I-58, dépend du nombre  $J$  de longueurs d'onde lors de la mesure. Il est égal, au maximum, au double de ce nombre  $J$  (à chaque longueur d'onde sont associés deux paramètres :  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}$  et  $\mathbf{b}_{Aero}$ ).

La difficulté de l'inversion des équations I-61 provient des valeurs multiples pour les noyaux de diffusion et de solutions qui ne sont pas uniques. Pour stabiliser les solutions pour des régions de données spécifiques, on impose que les solutions soient positives et lisses.

Le problème suivant est à résoudre :

$$\text{I-62} \quad \left( \mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}) \right) = N_0 \left[ \begin{array}{c} \overline{K}_{ext}(\mathbf{I}, r) \\ \vdots \\ \overline{K}_{ext}(\mathbf{I}, r) \end{array} \right] \cdot \left( f(r) \right)$$

$$\text{I-63} \quad \left( \mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}) \right) = N_0 \left[ \begin{array}{c} \overline{K}_{Back}(\mathbf{I}, r) \\ \vdots \\ \overline{K}_{Back}(\mathbf{I}, r) \end{array} \right] \cdot \left( f(r) \right)$$

Les vecteurs  $\hat{\mathbf{a}}_{ext}^{Aero}(\hat{\mathbf{e}})$  et  $\hat{\mathbf{a}}_{Aero}(\hat{\mathbf{e}})$  sont connus respectivement par les mesures d'extinction et de rétrodiffusion effectuées aux différentes longueurs d'onde. Les matrices  $[\mathbf{K}_{ext}(\mathbf{I}, \mathbf{r})]$  et  $[\mathbf{K}_{Back}(\mathbf{I}, \mathbf{r})]$  sont calculées en utilisant, pour les particules sphériques, la théorie de la diffusion de Mie. Le vecteur  $f(\mathbf{r})$ , correspondant à la distribution de taille des aérosols, est l'inconnu. Pour d'autres types de particules, comme les suies, le modèle fractal peut bien sûr être employé. La résolution de ce problème revient à inverser la matrice de  $[\mathbf{K}_{ext}(\mathbf{I}, \mathbf{r})]$  qui peut comporter plusieurs milliers d'éléments (pour 50 longueurs d'onde, le nombre d'éléments est alors de  $50 \times 50 = 2500$  éléments). Cette inversion est réalisée à l'aide d'une méthode de Monte-Carlo, plus rapide. Pour cela, plusieurs milliers d'éléments sont répartis uniformément, au départ, sur l'intervalle compris entre  $r_{min}$  et  $r_{max}$ . La fraction des particules dans une classe particulière de taille centrée sur  $r_i$  et de largeur  $\mathbf{d}r_i$  est simplement la somme des éléments qui se trouvent dans cette classe, divisée par le nombre total d'éléments. Au départ, la distribution de taille est donc uniforme. Un  $\mathbf{c}^2$  réduit peut donc être défini de la manière suivante :

$$\text{I-64} \quad \mathbf{c}^2 = \frac{1}{J} \sum_{j=1}^J \left[ \frac{(\mathbf{a}_j - \mathbf{a}_j^0)^2}{\mathbf{e}_j^2} \right]$$

où  $a_j^0$  est l'ajustement initial du coefficient d'extinction sur les données.

Un  $c^2$  de départ est alors calculé, puis une nouvelle position est tirée au hasard pour un des éléments. Le nouveau  $c^2$  est ensuite recalculé puis comparé à l'ancien. Si le nouveau  $c^2$  est inférieur, la nouvelle position de l'élément est alors acceptée. Cette procédure est répétée pour chaque élément jusqu'à ce que le  $c^2$  soit à l'intérieur d'une tolérance donnée ou qu'un nombre de pas défini à l'avance soit atteint. La même méthode est utilisée que l'on veuille inverser les données provenant des mesures du coefficient de rétrodiffusion ou/et des mesures du coefficient d'extinction.

En général, plusieurs distributions de taille correspondent à un  $c^2$  dans la tolérance définie. La moyenne de ces différentes distributions de taille et la déviation standard sont alors calculées. En utilisant cette méthode l'erreur des données est prise en compte dans le résultat de l'inversion finale.

Le choix des longueurs d'onde est très important car cet algorithme n'est sensible que lorsque la dimension des particules est proche de la longueur d'onde. Pour un intervalle de longueur d'onde donné (par exemple fixé par l'expérience), l'utilisation simultanée de  $a_{ext}(\lambda)$  et de  $b(\lambda)$  permet d'accéder à une plage de taille plus grande que si seuls  $a_{ext}(\lambda)$  ou  $b(\lambda)$  étaient connus.

Contrairement à la méthode précédente, cette méthode n'a pas encore été appliquée en atmosphère pour des mesures lidar. Elle a néanmoins permis de retrouver la distribution de taille de sphères de polylatex, d'indice de réfraction connu, dans de l'eau, à partir de mesures spectrales du coefficient d'extinction (Figure I-10)<sup>28</sup>. La méthode reste donc prospective mais néanmoins intéressante.

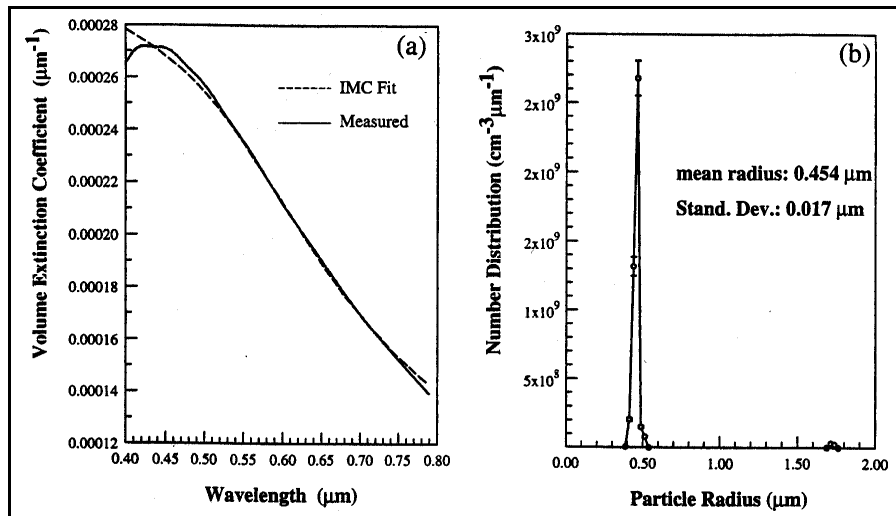


Figure I-10. Résultats d'inversion de mesures spectrales d'extinction. (a) Coefficient d'extinction mesuré expérimentalement (trait plein) et calculé (pointillés) à partir de la distribution de taille (b) donnée par la méthode d'inversion<sup>28</sup>.

A partir de la technique lidar classique à une seule longueur d'onde il n'est pas possible de remonter à la concentration des aérosols atmosphériques. Pour cela il est nécessaire d'utiliser des systèmes lidar multispectraux, plus difficile à mettre en œuvre. Cependant, une technique originale de lidar mono-longueur d'onde a été développée dans notre groupe, pour mesurer la concentration en aérosols. Cette nouvelle méthode, faisant appel, en plus des mesures lidar, à l'étude de filtres impactés, est décrite au chapitre suivant.

---

<sup>1</sup> Fréjafon E., Kasparian J., *et al.*, « Laser applications for atmospheric pollution monitoring », *Eur. Phys. J. D* **4**, p 231, (1998).

<sup>2</sup> Fréjafon E., Kasparian J., *et al.*, « Three-dimensional analysis of urban aerosols by use of a combined lidar, scanning electron microscopy and x-ray microanalysis », *Appl. Opt.* **37**, p 2231, (1998).

<sup>3</sup> Kasparian J., Fréjafon E., *et al.*, « Characterization of urban aerosols using sem-microscopy, xray-analysis and lidar measurements », *Atmos. Environ.* **32**, p 2957, (1998).

<sup>4</sup> Wolf J. P., « UV-Visible light detection and ranging applications in air monitoring », in *Encyclopedia of analytical chemistry* **3**, p 2226, Myers R. A. ed. (Wiley, New York, 2000).

<sup>5</sup> Weidauer D., *et al.*, « Ozone, VOC, NO<sub>2</sub>, and aerosol monitoring in urban and industrial areas using a mobile dial system », in *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, Ansmann A., Neuber R., Rairoux P., and Wandinger U., eds. (Springer-Verlag, Heidelberg, 1996).

<sup>6</sup> NOCTILS : programme BRITE-EURAM de la communauté européenne (contrat n° BRPR CT 97 0349, projet n° BE 96-3956).

<sup>7</sup> Clark W. C., « Carbone dioxide review », (Clarendon Press, Oxford, 1982).

<sup>8</sup> Bohren C. F., Huffman D. R., « Absorption and scattering of light by small particles », (Wiley, New-York, 1983).

<sup>9</sup> Mie G., « Beiträge zur optik trüber medien speziell kolloidaler metallösungen », *Ann. Phys.* **25**, p 337, (1908).

<sup>10</sup> Jackson J. D., « Classical electrodynamics », (Wiley, New York, 1975).

<sup>11</sup> Berry M. V., and Percival I. C., « Optics and fractal clusters such as smoke », *Optica acta* **33**, p 577, (1986).

<sup>12</sup> Freltoft T., Kjems J. K., and Sinha S. K., « Power-law correlation and finite-size effects in silica particles aggregates studied by small-angle neutron scattering », *Phys. Rev. B* **33**, p 269, (1986).

<sup>13</sup> Dietler G. C., *et al.*, « Gelatin of colloidal silica », *Phys. Rev. Lett.* **57**, p 3117, (1986).

<sup>14</sup> Measures R. M., « Laser remote sensing : fundamentals and applications », (Krieger, Malabar Florida, 1992).

<sup>15</sup> Klett J. D., « Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratio », *App. Opt.* **24**, p 1638, (1985).

<sup>16</sup> Curcio J. A. and Knestrick G. L., « Correlation of atmospheric transmission with backscattering », *J. Opt. Soc. Am.* **48**, p 686, (1958).



- 
- <sup>17</sup> Fenn R. W., *Appl. Opt.* **5**, p 293, (1966).
- <sup>18</sup> Klett J. D., « Stable analytical inversion solution for processing lidar returns », *Applied Optics* **20**, p 211, (1981).
- <sup>19</sup> Marengo F., Santacesaria V., *et al.*, « Optical properties of tropospheric aerosols determined by lidar and spectrophotometric measurements (photochemical activity and solar ultraviolet radiation campaign) », *Applied Optics* **36**, p 6875, (1997).
- <sup>20</sup> Seinfeld J. H., « Atmospheric chemistry and physics of air pollution », (John Wiley, New-York, 1985).
- <sup>21</sup> Del Guasta M., Morandi M., *et al.*, « Multiwavelength lidar observation of thin cirrus at the base of the Pinatubo stratospheric layer during the EASOE campaign », *Geophysical Research Letters* **21**, p 1339, (1994).
- <sup>22</sup> Deirmendjian D., « Scattering and polarization properties of water clouds and hazes in the visible and infrared », *Appl. Optics* **2**, p 187, (1964).
- <sup>23</sup> Junge C. E., « Air chemistry and radioactivity », (Academic Press, New York, 1963).
- <sup>24</sup> Liou K. N. and Schotland R. M., « Multiple backscattering and depolarization from water clouds for a pulsed lidar system », *J. Atmos. Sci.*, (1971).
- <sup>25</sup> Rairoux P., « Mesures par lidar de la pollution atmosphérique et des paramètres météorologiques », thèse de l'école polytechnique fédérale de Lausanne, n° 955, (1991).
- <sup>26</sup> Del Guasta M., Morandi M., *et al.*, « Derivation of Mount Pinatubo stratospheric aerosol mean size distribution by means of a multiwavelength lidar », *App. Opt.* **33**, p 5690, (1994).
- <sup>27</sup> Ligon D. A., Chen T. W., and Gillespie J. B., « Determination of aerosol parameters from light-scattering data using an inverse Monte Carlo technique », *App. Opt.* **35**, p 4297, (1996).
- <sup>28</sup> Ligon D. A., Gillespie J. B., and Pellegrino P., « Aerosol properties from spectral extinction and backscatter estimated by an inverse Monte Carlo method », *App. Opt.* **39**, p 4402, (2000).

## Chapitre II : Campagne de mesure lidar des aérosols dans l'ultraviolet

Des mesures lidar mono-fréquence sur les aérosols ont été réalisées dans le cadre de la campagne ELO (pour Etude Lyon Ozone), qui s'est déroulée de façon continue sur trois jours, du 22 au 24 juin 1999. Plusieurs équipes ont été impliquées dans cette campagne : l'ADEME qui a assuré la coordination, le département d'écologie urbaine (DEU) de la Ville de Lyon, le réseau de surveillance de la qualité de l'air (COPARLY), le pôle « Qualité de l'air » du centre de recherche Elf de Solaize (CRES), la société EXP'AIR, et notre équipe (« Laser et environnement »- LASIM-Université Lyon1).

Les deux buts essentiels de cette campagne ont été d'étudier la formation de l'ozone lors d'un épisode de forte pollution et d'évaluer les performances d'un modèle physico-chimique déterministe tridimensionnel, capable de reproduire la situation. Pour cela, chaque partenaire avait un rôle bien défini : le DEU et la COPARLY étaient chargés de relever les mesures des capteurs au sol disséminés sur une cinquantaine de sites de la région lyonnaise. Le CRES s'occupait de mesurer les  $\text{NO}_x$  et les composés organiques volatils (COV), à l'aide de capteurs embarqués dans un camion, ainsi que de collecter les données météorologiques (vitesse et direction du vent, température, humidité). De plus, en collaboration avec la société EXP'AIR, le CRES s'est occupé de la modélisation. Enfin, deux systèmes lidar ont fonctionné 24h/24 durant toute la campagne. Le lidar/DIAL de la COPARLY (modèle 510M d'Elight Laser System) a permis de mesurer les concentrations d'ozone, en se plaçant sur un site, au sud de l'agglomération, proche des principales sources d'émission. Situé sur le campus de la Doua à Villeurbanne, notre lidar a permis de mesurer la concentration en aérosols, dans le but d'apporter des corrections aux mesures d'ozone du Lidar/DIAL mais aussi d'identifier l'évolution et la stratification de la couche limite qui représente la couche d'air au voisinage de la terre dont l'écoulement est perturbé par la rugosité du sol. Ce dernier point est un paramètre d'entrée très important pour le modèle.

Au cours de ce chapitre, seront développés plus particulièrement la méthode et le dispositif expérimental utilisés par notre équipe pour mesurer les concentration d'aérosols par lidar. Les résultats obtenus ainsi que leur exploitation pour le modèle prévisionnel, seront ensuite présentés. Pour de plus amples informations sur la campagne ELO, on se reportera à la thèse d'A. Thomasson<sup>1</sup>.

### I. Méthode utilisant un lidar mono-fréquence couplé à la micro-analyse de filtres impactés<sup>2,3</sup>

Pour des raisons de simplicité, la méthode d'inversion de Klett décrite au chapitre précédent et qui tient compte de la contribution Rayleigh est utilisée ici avec l'hypothèse forte que le coefficient  $C_{Aero}(z)$  est indépendant de  $z$  et donc que le rapport  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{l}, z) / \mathbf{b}_{aero}(\mathbf{l}, z)$  est le même à toutes les altitudes.  $C_{Aero}$  sera déterminé à partir de prélèvements au niveau du sol. Ceci revient donc à supposer que la distribution de probabilité en taille et en composition des aérosols  $g(r)$ , qui est normalisée, ne varie pas avec  $z$ . Seul le nombre total  $N_0(z)$  de particules par unité de volume varie. La méthode de Klett implique un traitement des données

en partant de la fin du signal, connaissant les deux paramètres optiques que sont  $\mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}, z_m)$  et  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}, z_m)/\mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}, z_m)$ . L'originalité de notre démarche vient du fait que  $C_{Aero}$  est constant et donc que le rapport  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}, z_m)/\mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}, z_m)$  est le même qu'au niveau du sol. A la distance  $z_m$ , seul  $\mathbf{b}_{Aero}(\mathbf{I}, z_m)$  reste à déterminer. Or, la distance  $z_m$  est prise suffisamment loin pour se trouver hors de la couche limite et pouvoir ainsi considérer que la contribution des aérosols est négligeable devant la contribution moléculaire. Donc  $\mathbf{b}(z_m) = \mathbf{b}_{Aero}(z_m) + \mathbf{b}_{molec}(z_m) \approx \mathbf{b}_{molec}(z_m)$ . Grâce aux deux points de référence (au sol et en  $z_m$ ) l'algorithme est très peu dépendant du niveau de bruit et de la paramétrisation en fin de signal<sup>4</sup>.  $\mathbf{b}(z)$  est ensuite déterminée avec l'équation suivante :

$$\text{II-1} \quad \mathbf{b}(z) = \frac{\exp(L - L_m)}{\left[ \frac{1}{\mathbf{b}(z_m)} + 2 \int_z^{z_m} \frac{\exp(L - L_m) dr}{C_{Aero}} \right]}$$

$$\text{avec } L - L_m = L(z, \mathbf{I}) - L(z_m, \mathbf{I}) + \frac{2}{C_{molec}} \int_z^{z_m} \mathbf{b}_{molec}(r) dr - 2 \int_z^{z_m} \frac{\mathbf{b}_{molec}(r) dr}{C_{Aero}}.$$

$\mathbf{b}_{molec}(z, \mathbf{I})$  et  $\mathbf{a}_{ext}^{molec}(z, \mathbf{I})$  peuvent être calculés, en fonction de l'altitude et de la longueur d'onde, à partir de profils verticaux de température et de pression générés par un modèle atmosphérique<sup>5</sup>.  $C_{molec}$  est connu et est égal à  $8\pi/3$  (Cf Chap. I §II-C).

Ayant calculé  $\mathbf{b}(z)$  et  $\mathbf{b}_{molec}(z)$ , on accède alors à  $\mathbf{b}_{Aero}(z)$  puis à la concentration. En effet :

$$\text{II-2} \quad \mathbf{b}_{Aero}(z) = N_0(z) \cdot \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{Back}^{Aero}(r) \cdot g(r) dr = N_0(z) \cdot \overline{\mathbf{s}_{Back}^{Aero}}$$

avec  $\overline{\mathbf{s}_{Back}^{Aero}}$  la section efficace de rétrodiffusion moyenne par particule pour la distribution de taille normalisée  $g(r)$ .

$\overline{\mathbf{s}_{Back}^{Aero}}$  est calculée à partir de prélèvements d'aérosols au niveau du sol. Le nombre total de particules  $N_0(z)$  en fonction de la distance est alors accessible. Bien qu'une distribution en nombre de particule soit plus pertinente en termes de santé publique, une concentration en masse ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) peut aussi être déterminée, en utilisant la distribution de taille normalisée, afin de réaliser des comparaisons avec les analyseurs classiques.

Les valeurs de  $\overline{\mathbf{s}_{Back}^{Aero}}$ ,  $\mathbf{b}_{aero}(\mathbf{I}, z_0)$  et  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}, z_0)/\mathbf{b}_{aero}(\mathbf{I}, z_0)$  sont déterminées à partir de l'étude par microscopie électronique à balayage (MEB) et par micro-analyse par rayons X de filtres impactés au niveau du sol. Ces filtres en Téflon ont été impactés à l'aide de pompes. On accumule ainsi un échantillon représentatif des particules. Ces filtres sont ensuite analysés par MEB, après dépôt d'une couche d'or pour améliorer la sensibilité. La résolution maximale est de 5 nm. De cette étude de filtres par MEB il ressort que deux types de particules sont prédominants. Le type le plus abondant correspond à des particules granulaires, de forme fractale, réparties de manière homogène sur le filtre. Ces particules forment par endroits des amas de quelques microns de diamètre. Le second type est constitué de particules d'aspect lisse, dont la taille atteint quelques microns. Enfin, d'autres particules sont aussi observés, dont certaines en forme de lamelles cristallines, mais en faible quantité. Sur la photographie suivante prise par MEB (Figure II-1), les trois types de particules sont présents, mais précisons que cette image n'est pas représentative de leur abondance respective.



Figure II-1. Vue à fort grossissement (x10000) d'un filtre de prélèvement d'aérosols en milieu urbain.

La distribution de taille est déterminée par comptage, sur les images des filtres, des particules, préalablement réparties en classes de tailles. La distribution de taille normalisée  $g(r)$  obtenue dans notre cas est présentée Figure II-2. Pour assurer une signification statistique aux décomptes effectués, des surfaces de  $6,2 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2$  (à un grossissement 1000 x) ont été considérées pour compter les particules de plus de  $3 \mu\text{m}$ , et des surfaces de  $6,2 \cdot 10^2 \mu\text{m}^2$  (à un grossissement 10 000 x) pour compter les particules en dessous de cette taille, qui sont difficiles à observer avec un grossissement de 1000 x. Ces surfaces correspondent à respectivement 550 grosses ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ) et 10500 petites particules ( $\sim 0,1 \mu\text{m}$ ) décomptées sur les surfaces d'étude. La distribution de taille normalisée présente deux pics : l'un pour les petites particules, centré sur 20 nm de rayon et le second correspondant à des grosses particules et centré sur 900 nm de rayon.

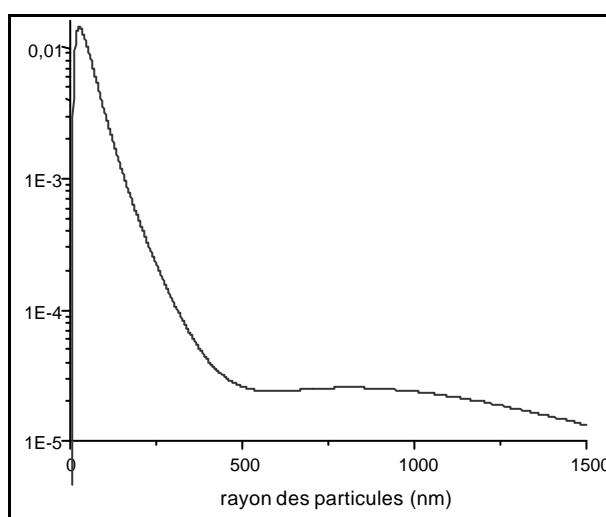


Figure II-2. Distribution de taille normalisée  $g(r)$  (échelle logarithmique) des aérosols urbains sur le site de La Doua, estimée à partir de l'étude par MEB des filtres impactés.

Enfin, la spectrométrie à rayons X est utilisée pour accéder à la composition chimique des différents types de particules. Les spectres de microanalyse réalisés sur les deux types prédominants de particules sont présentés Figure II-3 et Figure II-4. L'analyse de ces spectres

est seulement qualitative car les intensités observées pour les pics dépendent non seulement de la concentration de l'atome correspondant, dans la portion d'échantillon soumis à l'analyse mais aussi de leur section efficace, influencée par le voisinage de chaque atome. Seules les variations des intensités relatives d'un spectre à l'autre traduisent effectivement des variations des abondances relatives des éléments correspondants.

Le spectre de la Figure II-3, correspondant aux aérosols granulaires, présente des pics importants pour le carbone et pour le soufre. Ces pics sont caractéristiques de particules de suies provenant de la combustion d'hydrocarbures incluant des composés soufrés, comme les particules produites par les moteurs diesel. Par ailleurs, les particules de suies émises dans les processus de combustion et observées au MEB sont fractales, ce qui se traduit par l'aspect granulaire des particules observées à différentes échelles. Par contre, les grosses particules de suies sont relativement compactes sur les images MEB des filtres. Or, une description fractale impose que les particules sont d'autant plus lacunaires qu'elles sont grosses. Ceci peut donc suggérer que les particules de grande taille se réarrangent en une disposition plus compacte. Les particules de grosse taille sont considérées comme lacunaires et sont caractérisées par leurs fractions volumiques de carbone et d'air. Cette fraction volumique est supposée constante sur toute la gamme de taille.

Sur le spectre de la Figure II-4, qui correspond aux particules lisses de grand diamètre, le silicium et l'oxygène sont les éléments dominants, caractéristiques de la silice. L'aspect lisse évoque des aérosols éoliens issus de l'érosion des sols, et usés par de nombreuses collisions tout au long de leur trajet avant d'être impactés sur le filtre.

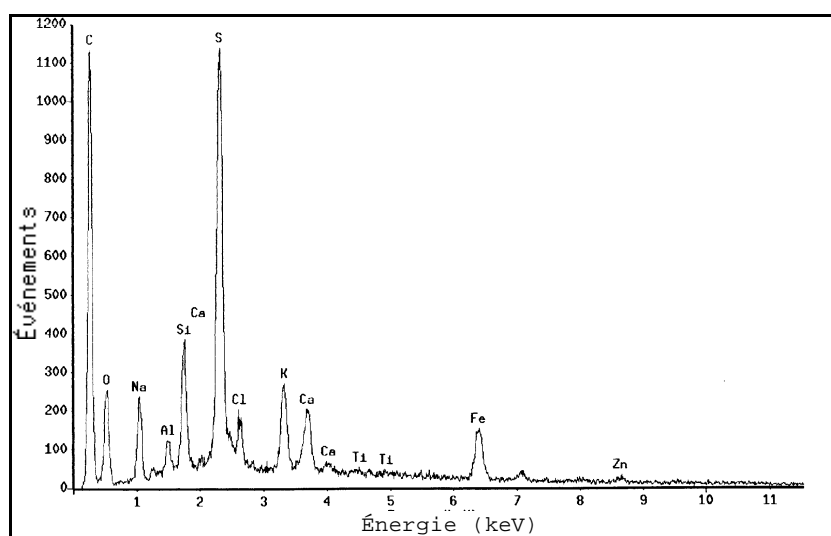


Figure II-3. Spectre de microanalyse d'une zone de filtre correspondant à un agglomérat de particules granulaires de rayon  $0,1 \mu\text{m}$  environ.

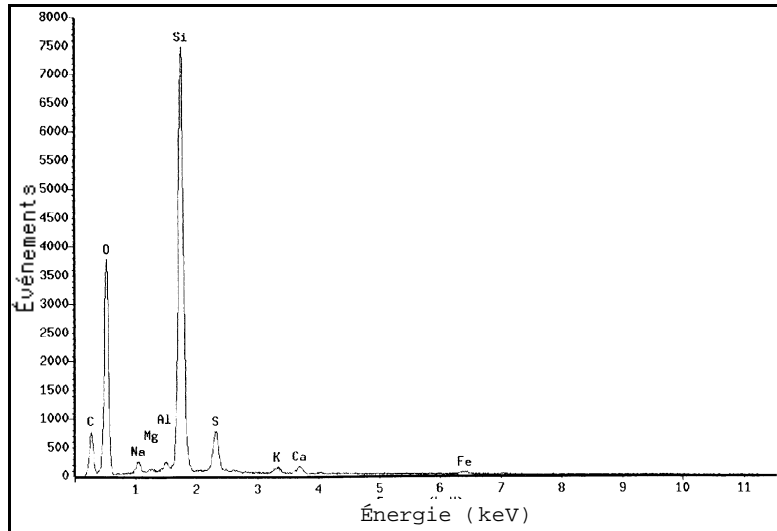


Figure II-4. Spectre de microanalyse d'une zone de filtre correspondant à une particule lisse de 1 µm.

D'après ces analyses, le mode des petites particules (centré sur 20 nm), est essentiellement composé de suies. Le mode correspondant aux aérosols de tailles plus importantes (centré sur 0,9 µm) est composé de 50% de suies et de 50% de particules minérales. Pour chaque type de particule un algorithme particulier a été utilisé pour calculer les sections efficaces d'extinction et de rétrodiffusion. Ainsi, pour les particules de rayon inférieur à 20 nm, petites devant la longueur d'onde, nous avons utilisé un modèle de diffusion de type Rayleigh. Pour les particules de rayon compris entre 20 nm et 500 nm (essentiellement des suies) et qui sont de forme fractale, le calcul se fait avec une théorie dérivée de celle de Sorensen et qui a été développée au laboratoire<sup>6,7,8</sup> en prenant comme indice complexe  $m=1,69-0,67i$ . Enfin, pour les particules de rayon plus important (entre 500 nm et 3 µm), la théorie de la diffusion de Mie est utilisée (pour les particules à symétrie proche de la symétrie sphérique) avec 50% de particules de silice (sphériques et lisses) d'indice  $m=1,486-0i$  et 50% de particules de suies (sphériques mais spongieuses, avec une densité volumique de 50%) d'indice équivalent  $m=1,345-0,335i$ <sup>9</sup>.

Les sections efficaces d'extinction et de rétrodiffusion sont ainsi calculées en fonction du rayon, pour chaque type de particule. La distribution de taille de la Figure II-2, permet ensuite d'estimer la valeur de  $\overline{s_{Back}^{Aero}}$  et le rapport  $\overline{a_{ext}^{Aero}(\mathbf{l}, z_0)} / \overline{b_{Aero}(\mathbf{l}, z_0)} = \overline{s_{ext}^{Aero}(\mathbf{l}, z_0)} / \overline{s_{back}^{Aero}(\mathbf{l}, z_0)}$  au niveau du sol, qui sert ensuite à paramétrer l'algorithme de Klett. Dans notre cas le  $\overline{s_{Back}^{Aero}}$  calculé pour notre distribution de taille normalisée est de  $2,55 \cdot 10^{-10} \text{ sr}^{-1} \cdot \text{m}^2$ .

Le calcul du rapport  $\overline{a_{ext}^{Aero}(\mathbf{l}, z_0)} / \overline{b_{Aero}(\mathbf{l}, z_0)}$  donne 15 stéradians au niveau du sol, les filtres impactés dans les différents endroits ayant une distribution de taille assez homogène. Ceci a été vérifié lors de campagnes analogues effectuées précédemment<sup>3</sup>. Pour finir, la valeur de  $\overline{b_{Aero}(z_m)}$ , nécessaire à la paramétrisation de l'algorithme de Klett, sera prise égale à 0. En effet, si  $z_m$  est pris à la fin du signal lidar, on est hors de la couche limite et donc la concentration en aérosols est quasi nulle.

## II. Dispositif expérimental

## A. Le laser Titane:Saphir

Ce laser est un laser solide dont la matrice est le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et dont le dopant est l'ion  $\text{Ti}^{3+}$  qui remplace certains ions  $\text{Al}^{3+}$ , avec une concentration de 0,1% en poids. Ces cristaux sont produits par la méthode de Czochralski. Un monocristal de saphir est uniaxe et appartient au groupe de symétrie rhomboédrique. Il possède deux indices de réfraction, l'un ordinaire ( $n_o = 1,763$ ) et l'autre extraordinaire ( $n_e = 1,755$ ). Ce laser a une bande d'absorption entre 400 et 600 nm, avec un maximum vers 490 nm et une bande d'émission entre 670 et 1070 nm avec un maximum vers 790 nm. Il est donc accordable sur une très large bande.

Le laser utilisé ici (modèle Titania d'Elight Laser Systems) est pompé par trois lampes flash au xénon (Figure II-5). Une cellule de Pockels quart d'onde intracavité permet d'obtenir des impulsions brèves (mode déclenché) et un ensemble de trois prismes dispersifs à Brewster rend la cavité accordable en longueur d'onde. Les caractéristiques de ce laser sont les suivantes :

- Domaine d'accordabilité : 700-900 nm.
- Largeur spectrale : 0,1 nm.
- Energie maximum : 100 mJ @ 800 nm.
- Durée d'impulsion : 25 ns en mode déclenché.
- Diamètre du faisceau : 6 mm.
- Divergence angulaire : <1 mrad.
- Polarisation horizontale.
- Taux de répétition réglable entre 1 et 20 Hz.

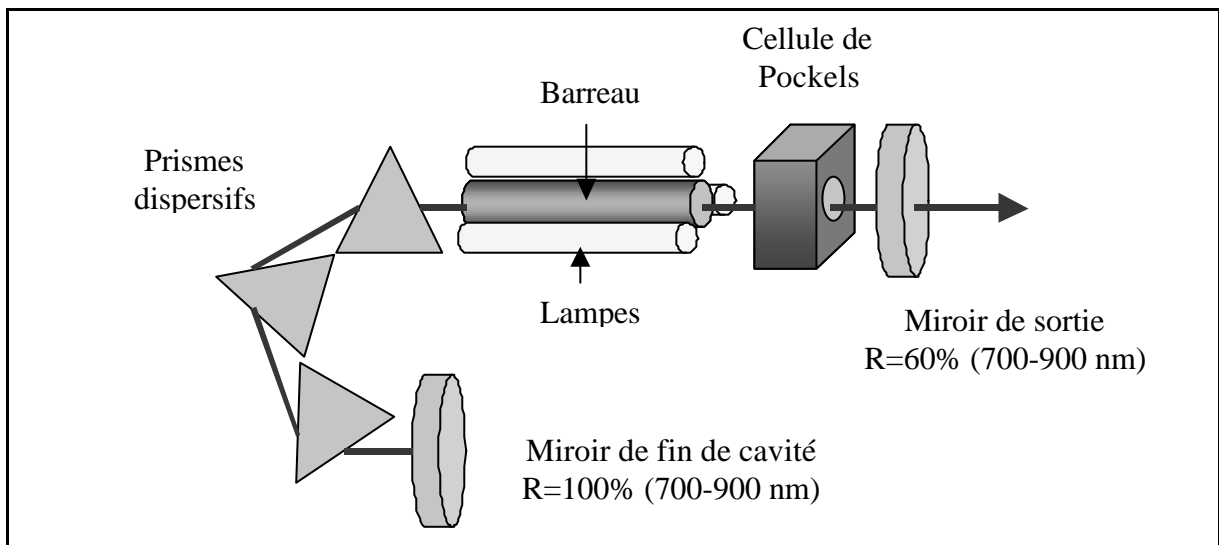


Figure II-5. Schéma du laser de pompe Ti:Sa.

## B. Le système lidar

Un cristal de  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  (KDP) est utilisé pour doubler le laser Ti:Sa (Figure II-6) et ainsi émettre à 399 nm, une longueur d'onde en sécurité oculaire. Une énergie de sortie typique de 3 mJ à 399 nm est disponible, avec une durée d'impulsion de 25 ns. La divergence du faisceau est de 1,2 mrad. Pour la partie réception, un télescope de type Newton ( $F = 400$  mm,  $f = 1200$  mm) est utilisé coaxialement au laser, avec un photomultiplicateur placé au foyer. Un diaphragme, avec une ouverture variable entre 1 et 5 mm, et un filtre passe-bande centré sur 399 nm, avec une largeur à mi-hauteur de 1 nm, sont placés devant le photomultiplicateur.

Pour cette campagne, l'angle que fait l'axe du système lidar avec l'horizontale, appelé aussi élévation, est de  $37,5^\circ$ . Enfin, trois pompes de prélèvement (débit de 2,6 l/min) pour impacter des filtres en Téflon (longueur de coupure : 200 nm) ont été placées sur différents bâtiments du campus.

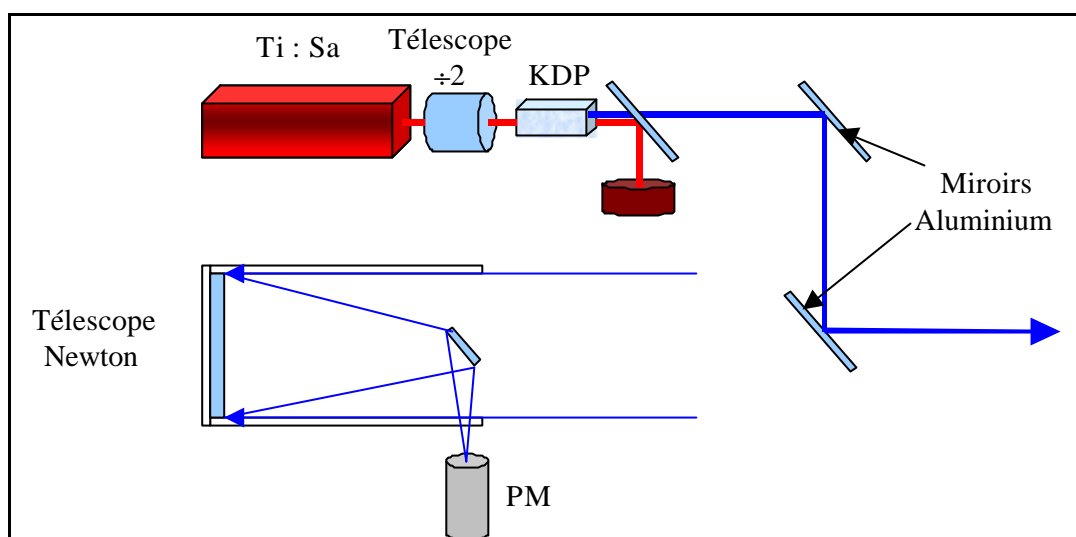


Figure II-6. Dispositif expérimental utilisé durant la campagne ELO à 399 nm.

### III. Résultats des mesures sur les aérosols à 399 nm

#### A. Exemple d'un profil de concentration obtenu durant la campagne ELO

Les signaux lidar bruts sont traités en les multipliant par  $z^2$  puis en prenant le logarithme népérien. La fonction  $L(z)$  ainsi obtenue (Figure II-7), sera ensuite utilisée dans l'équation I.25 pour l'inversion de Klett. Les premiers 450 m, correspondent à la compression géométrique qui est la zone où le recouvrement  $Y(z)$  (Cf Chap I §III-A) entre le faisceau laser et le champ de vue du télescope est encore incomplet. N'ayant pas parfaitement caractérisé cette fonction  $Y(z)$ , les données ne seront utilisées qu'au delà de cette distance. Les mesures dans cette zone ne sont donc pas significatives.

A une distance de 1800 m, c'est à dire à une altitude de 1100 m environ, un fort décrochement de la courbe  $L(z)$  est observable. Ceci traduit une baisse importante du coefficient de rétrodiffusion  $b$ , provenant d'une diminution de la concentration en aérosols. Cette nette diminution met en évidence la fin de la couche limite. En effet, la couche limite représente la couche d'air au voisinage de la terre dont l'écoulement est perturbé par la rugosité du sol. Les vents y sont moins importants que dans l'atmosphère libre, d'où une dispersion des aérosols urbain ralentie et une concentration de ces derniers plus grande.



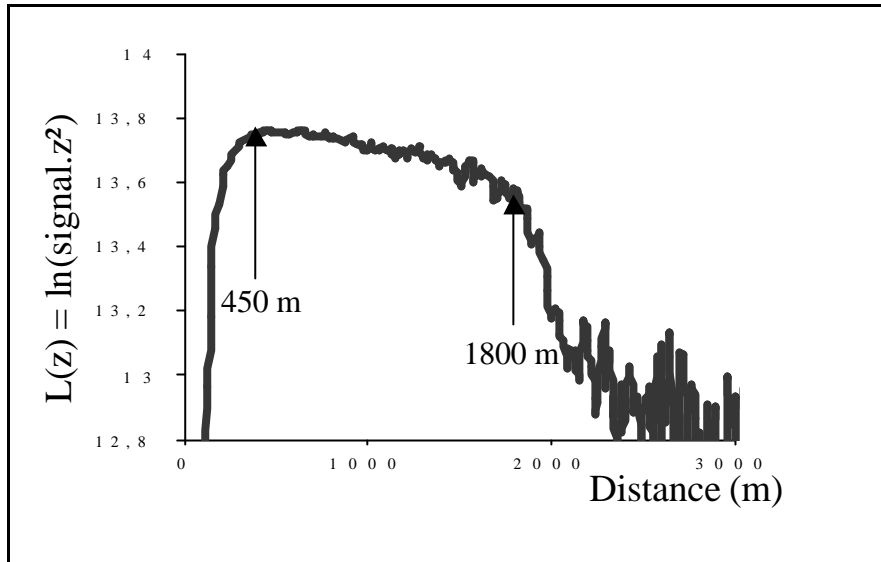


Figure II-7. Logarithme du signal lidar corrigé en distance du mercredi 23 juin 1999 vers 13h.

Les résultats obtenus pour le rapport  $a_{ext}(z)/b(z)$  à partir de la procédure décrite au début de ce chapitre, sont présentés Figure II-8. Notons que pour les distances supérieures à 2000 m, le rapport reste égal à  $8\pi/3$  soit environ 8,4. Ceci signifie que seule la contribution Rayleigh est encore présente et donc que la contribution des aérosols est quasi nulle.

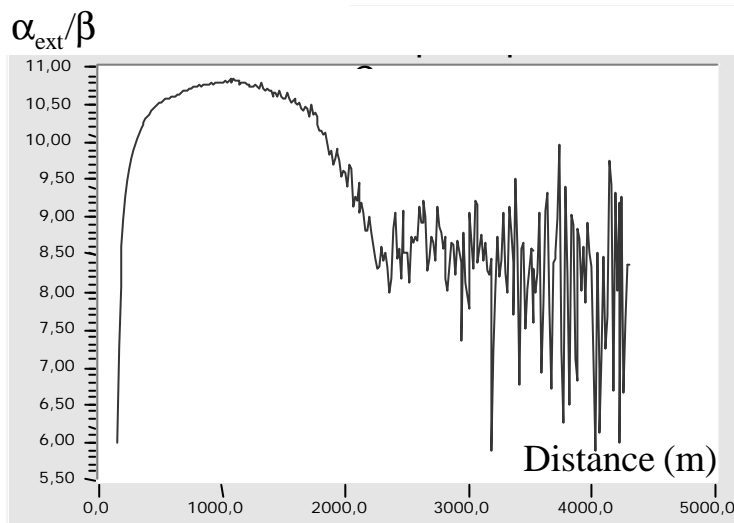


Figure II-8.  $a_{ext}/b$  en fonction de la distance, obtenu pour un paramétrage de

$$a_{ext}^{Aero} / b_{Aero} = 15 \text{ sr.}$$

La Figure II-9 montre le profil de concentration calculé à partir du signal lidar du mercredi 23 juin 1999 vers 13h. La concentration atteint ici une valeur maximale de  $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et devient quasi nulle après une distance de 2200 m, soit une altitude de 1300 m, ce qui vérifie *a posteriori* l'hypothèse  $b_{Aero}(z_m)=0$ . Il faut cependant noter que la validité des résultats obtenus à l'intérieur de la couche limite diminue loin du sol car le point de référence est au niveau du sol. En revanche, l'aspect qualitatif des mesures reste valable, même en altitude.

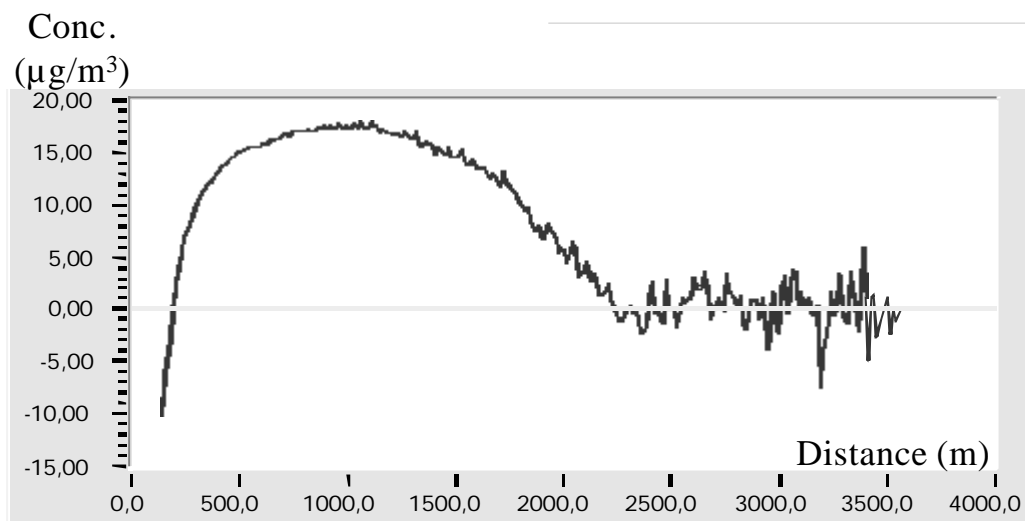


Figure II-9. Concentration en fonction de la distance obtenu à partir du signal lidar du mercredi 23 juin 1999 à 13h.

## B. Evolution temporelle de la concentration en aérosols

Durant les trois jours de mesure, de nombreux cas différents ont été rencontrés. Ainsi, la fonction  $L(z)$  de la Figure II-10 montre un pic important vers 2600 m de distance, soit à une altitude de 1600 m. Ce pic correspond à un nuage. En effet, l'augmentation de la densité volumique de particules à l'intérieur du nuage augmente non seulement l'extinction du signal mais aussi la rétrodiffusion. A l'entrée dans le nuage, la rétrodiffusion et donc le signal détecté augmentent fortement. Au fur et à mesure de la progression dans le nuage, l'extinction s'accroît, le nombre de photons pénétrant plus avant diminue, et cet effet prend le pas sur la rétrodiffusion : le signal diminue très fortement, avant la fin du nuage et tombe quasiment à une valeur nulle.

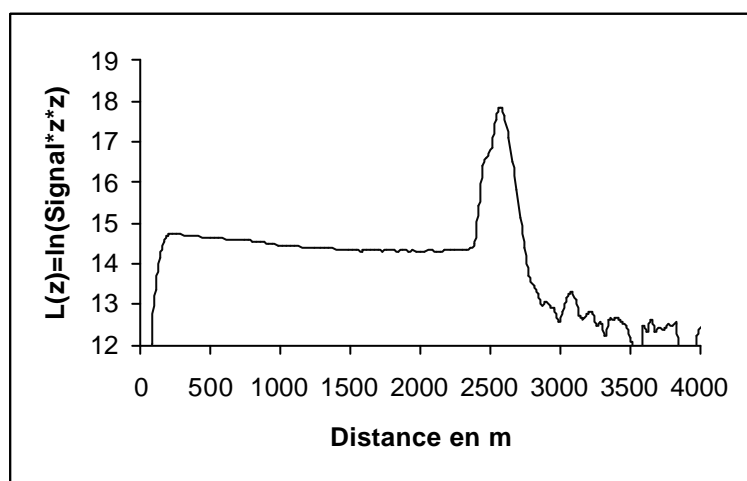


Figure II-10. Logarithme du signal lidar corrigée en distance du mardi 22 juin 1999 vers 0h45.

La fonction  $L(z)$  suivante (Figure II-11) ne présente pas de décrochement visible dû à la fin de la couche limite. L'extinction du signal est régulière, et correspond donc à une concentration en aérosols qui ne présente pas de fortes variations, contrairement au cas précédent.

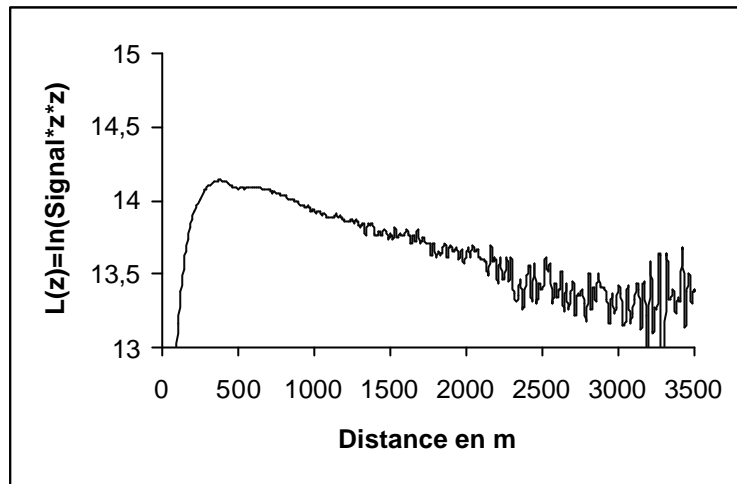


Figure II-11. Logarithme du signal lidar corrigée en distance du mercredi 23 juin 1999 vers 9h00.

Sur la Figure II-12, la fonction  $L(z)$  a deux décrochements visibles : l'un à une distance de 900 m et l'autre vers 1700 m, soit à des altitudes respectivement de 550 m et de 1000 m. Dans ce cas, deux couches d'aérosols sont présentes. La première correspond à une couche montant depuis le début de la matinée alors que la seconde semble être une couche résiduelle provenant des jours précédents et de l'importation de particules sur de longues distances. Ces structures sont analogues à celles observées lors du programme ESQUIF (Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France) avec le lidar nuages-aérosols (LNA) situé à Palaiseau<sup>10</sup>.

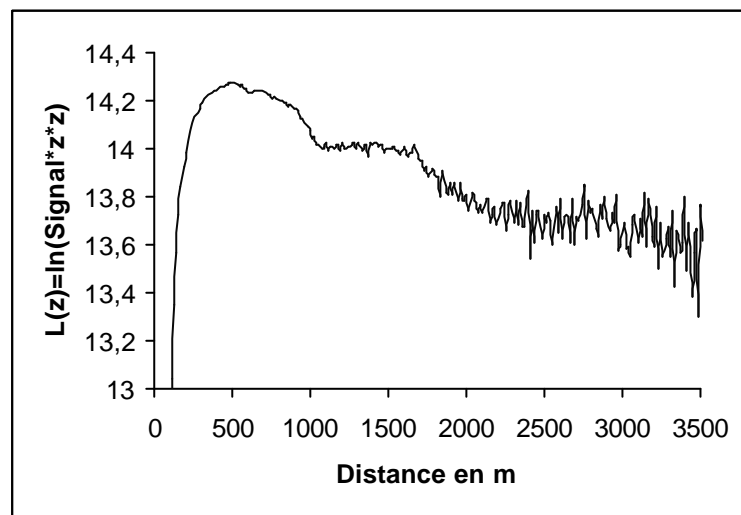


Figure II-12. Logarithme du signal lidar corrigée en distance du jeudi 24 juin 1999 vers 12h00.

Tous les signaux lidar ci-dessus sont ensuite inversés suivant la méthode de Klett modifiée puis les concentrations sont calculées avec la méthode décrite précédemment. Durant les trois jours de la campagne ELO, les signaux lidar ont été enregistrés en moyenne toutes les heures, permettant d'obtenir l'évolution temporelle de la concentration en aérosols urbains en fonction de l'altitude (Figure II-13). Cette carte a été obtenue par un programme

d'extrapolation à partir des différents profils de concentrations mesurés tout au long des trois jours de mesures. L'évolution est représentée ici entre le 23 juin à minuit et le 25 juin à minuit. Les concentrations maximales mesurées sont d'environ  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Il est à noter que sur les 200 premiers mètres environ les données ne sont pas exploitables pour le moment à cause de la zone de compression géométrique dont la correction n'a pas été calculée. Cette figure montre que la concentration en aérosols augmente rapidement à basse altitude à partir de 7 heures du matin, ce qui correspond à la mise en place du trafic automobile. Cette augmentation se poursuit en altitude, jusqu'à 1300 m, durant la matinée et le début d'après-midi au fur et à mesure que la couche limite monte. En soirée, les concentrations aux basses altitudes ( $< 800 \text{ m}$ ) diminuent, alors qu'il semble rester une concentration résiduelle pour des altitudes supérieures.

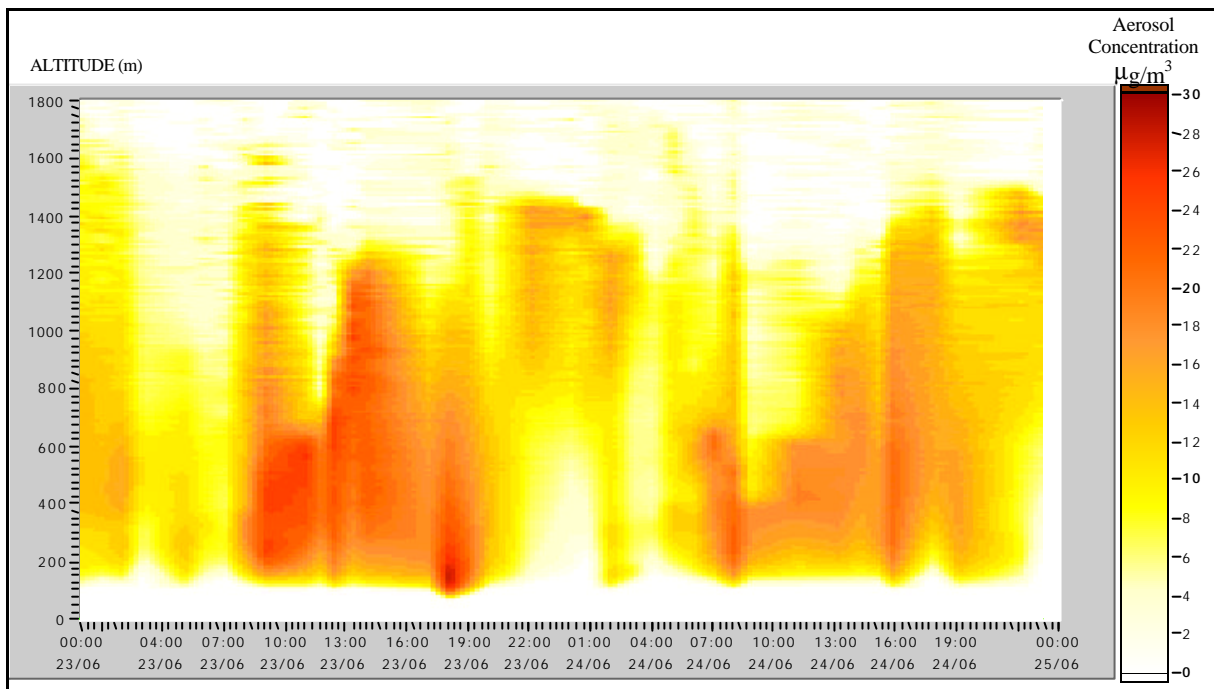


Figure II-13. Evolution temporelle de la concentration en aérosols urbains durant les 23 et 24 juin 1999 à Lyon.

Les concentrations obtenues à 300 m d'altitude par lidar ont été comparées (Figure II-14) avec les valeurs moyennes enregistrées pendant la campagne par des capteurs au sol, disséminés dans l'agglomération lyonnaise (Puits Gaillot, Berthelot, Garibaldi, La Mulatière, Etats-Unis, Croix Luizet). Durant ces trois jours, les valeurs données par les capteurs sont au maximum de  $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ces valeurs sont donc en-dessous des valeurs maximales recommandées par l'organisation mondiale pour la santé ou par la CEE et qui se situent, pour les moyennes journalières, entre 100 et  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Bien que les échantillons soient disséminés au sol sur toute l'agglomération et que des variations locales existent entre les capteurs, la corrélation sur la forme du profil, entre les valeurs moyennes données par les capteurs et le lidar, est bonne. Ceci n'est cependant plus vrai dans l'absolu. Une atténuation, d'un facteur 2 à 4, des concentrations maximales entre les capteurs et le lidar est observable. Cette atténuation s'explique par la différence d'altitude entre les deux types de mesures et par le fait que les émissions se font au sol. La concentration diminue donc lorsque l'altitude augmente, ce qui est vérifié, pendant la journée, sur la carte temporelle présentée plus haut. Les maxima obtenus par le lidar sont aussi décalés dans le temps (d'une heure le 23/06 et de quatre heures le 24/06) vis à vis des maxima des capteurs. Ceci peut s'expliquer par le temps de diffusion et de transport des aérosols, produits au sol, jusqu'à l'altitude de 300 m.

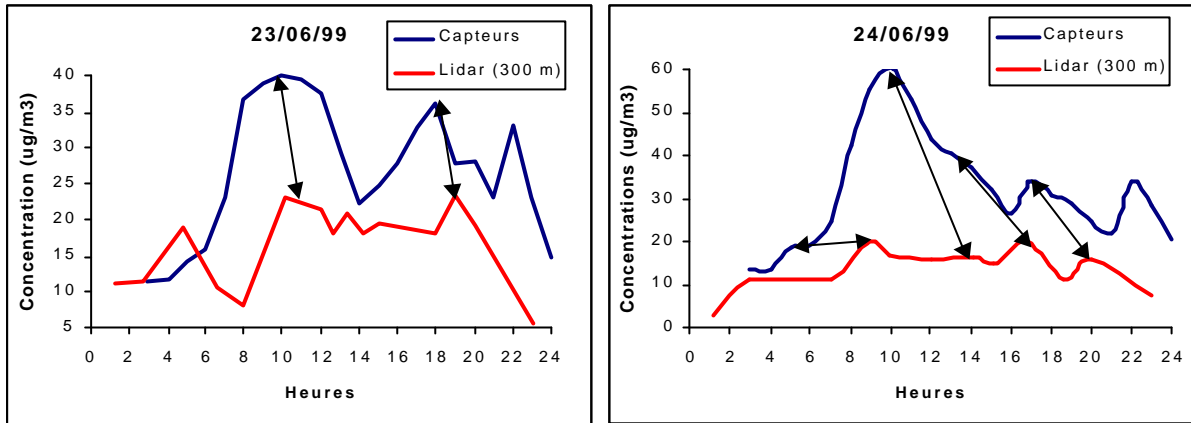


Figure II-14. Comparaison des concentrations en aérosols entre les capteurs (valeur moyenne de tous les capteurs) et les mesures lidar à 300 m d'altitude pour le 23/06/99 (à gauche) et le 24/06/99 (à droite). Les flèches indiquent la correspondance entre les maxima des capteurs et du lidar.

Les mesures de concentrations en aérosols permettront d'appliquer une correction aux valeurs des concentrations d'ozone mesurées avec le lidar/DIAL de la COPARLY. En effet, les longueurs d'onde utilisées pour détecter l'ozone par cette méthode sont éloignées l'une de l'autre ( $I_{on} = 282,4 \text{ nm}$ ,  $I_{off} = 286,3 \text{ nm}$ ). La contribution des aérosols ne peut donc plus être considérée comme identique aux deux longueurs d'onde. Ainsi, si la concentration en aérosols est forte, le lidar surestime la concentration en ozone, à cause de l'extinction des signaux lidar par ces particules. Il est donc nécessaire d'appliquer une correction. Ceci est effectué traditionnellement en utilisant le coefficient d'extinction et donc la visibilité sur le trajet (la visibilité météorologique étant définie comme la distance pour laquelle la transmission à 550 nm est de 2%<sup>11</sup>). Habituellement, pour une visibilité de 10 km, on retranche arbitrairement environ  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  aux concentrations d'ozone mesurées. Grâce à nos mesures sur les aérosols, les concentrations en ozone pourront être corrigées plus finement. Il est cependant nécessaire de calculer et de vérifier auparavant la dépendance spectrale de la diffusion dans l'ultraviolet. En particulier, une étude est en cours, en collaboration avec le centre de recherche Elf de Solaize, pour mesurer les dépendances spectrales des particules fractales, émises par un moteur Diesel<sup>1</sup>.

### C. Détermination de la hauteur de la couche limite

La hauteur de la couche limite est calculée par le modèle SAIMM, à partir des données météorologiques. Cette hauteur est ensuite utilisée comme paramètre d'entrée dans les modèles photochimiques de l'ozone, en particulier dans le modèle UAM-V (Urban Airshed Model Vertical-grid). Ce type de modèle physico-chimique déterministe et tridimensionnel, permet de simuler l'évolution temporelle en concentration des principaux polluants atmosphériques, inertes ou chimiquement réactifs (ozone, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>...) à partir de nombreux paramètres d'entrée (topographie, météorologie, hauteur de la couche limite atmosphérique, sources et cadastre d'émission des polluants primaires, trafic automobile...) et à partir d'un calcul tridimensionnel eulérien (photochimie, transports, dispersion, conditions aux bords...).

A partir de nos données expérimentales, plusieurs méthodes de détermination de la hauteur de la couche limite sont possibles. Dans notre cas, la hauteur de la couche limite sera choisie comme correspondant au début d'une baisse brutale du coefficient de rétrodiffusion. Cette

baisse du coefficient de rétrodiffusion, donc du signal lidar, correspond à une diminution brutale de la concentration en aérosols. C'est cette méthode du point d'inflexion qui concorde le mieux avec les prévisions du modèle.

La hauteur de la couche limite varie alors entre 200 et 400 m lorsqu'elle est au plus bas (Figure II-15), le matin de bonne heure et atteint 1400 m en début d'après-midi. Ces valeurs se retrouvent assez bien d'un jour sur l'autre. L'accord entre les valeurs expérimentales et celles prédites par le modèle est correct. Cependant, le modèle ne prévoit pas les cas où plusieurs couches sont présentes. Cette multiplicité des couches est due à un réservoir d'aérosols en altitude provenant des journées précédentes ou importés sur de longues distances. Il est donc important pour les entrées du modèle d'avoir des données expérimentales.

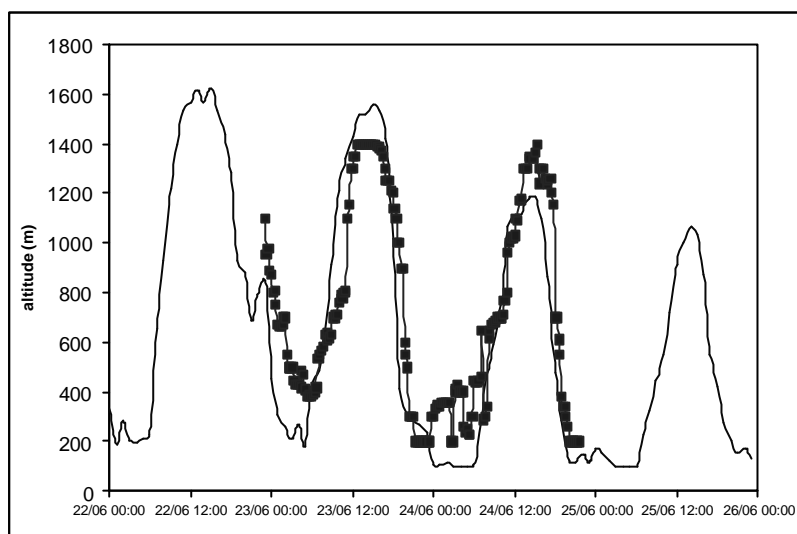


Figure II-15. Comparaison entre l'altitude de la couche limite modélisée (traits continus) et celle déterminée à partir des mesures lidar par la méthode du point d'inflexion (carrés).

## D. Vers un lidar multispectral UV-IR

La méthode précédemment utilisée nécessite l'impaction de filtres puis l'étude de ceux-ci par microscopie électronique à balayage et enfin le comptage des particules pour accéder à la distribution de taille des aérosols. Il faut ensuite utiliser des algorithmes adaptés pour évaluer les sections efficaces de diffusion de cet ensemble. Enfin, une hypothèse forte est faite en prenant le rapport  $\mathbf{a}_{ext}^{Aero}(\mathbf{I}, z) / \mathbf{b}_{aero}(\mathbf{I}, z)$  constant.

Pour éliminer ces contraintes, il serait intéressant de réaliser un diagnostic « tout-optique » de la distribution de taille et de la concentration des aérosols. Or, des mesures des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion à plusieurs longueurs d'onde le permettent (Cf Chap. I). De plus, plus la plage des longueurs d'onde utilisées est étendue et plus l'intervalle des rayons des particules sur lequel l'inversion peut être faite avec précision est large. Il est donc intéressant d'avoir une source laser accordable sur une grande plage de longueur d'onde.

Il semble donc très attractif de développer un lidar UV-IR, basé sur un laser Ti:Sa. Il est facile d'avoir une grande plage d'accordabilité dans l'ultraviolet puisqu'en doublant la fondamentale du laser (accordable entre 700 nm et 900 nm), des longueurs d'onde entre 350 nm et 450 nm sont générées (la faisabilité d'un lidar ultraviolet avec cette source laser pour détecter les aérosols a été démontrée dans ce chapitre). Pour étendre notre système lidar

dans l'infrarouge, on peut utiliser des cristaux non linéaires en configuration d'oscillateurs paramétriques optiques qui vont permettre de générer des longueurs d'onde entre  $1\mu\text{m}$  et  $4\mu\text{m}$  (Cf Chap. III). Enfin, en utilisant un lidar UV-IR, la dynamique des différentes classes de particules est accessible. En effet, l'infrarouge, bien moins diffusé par les particules de petite taille, est alors sensible principalement aux particules de taille micrométrique. De même, l'ultraviolet proche est efficacement diffusé par les petites particules, d'où une sensibilité accrue pour cette classe de particules. Notre objectif est donc de mettre au point un système UV-IR capable de mesurer l'évolution du rapport de concentration entre les particules fines (mode centré sur  $20\text{ nm}$ ) et grossières (mode centré sur  $0,9\mu\text{m}$ ). Les effets sur la taille de processus comme la sédimentation ou le transport à longues distances seraient ainsi observables.

Une autre raison essentielle du développement d'une source laser infrarouge est son utilisation pour la détection de polluants gazeux non détectables dans l'ultraviolet comme les hydrocarbures ou l'acide fluorhydrique.

---

<sup>1</sup> Thomasson A., « Méthodes d'évaluation et de calibration des mesures lidar-DIAL en air ambiant », thèse de l'université Claude Bernard Lyon1, n°44-2001, (2001).

<sup>2</sup> Fréjafon E., Kasparian J., *et al.*, « Three-dimensional analysis of urban aerosols by use of a combined lidar, scanning electron microscopy and x-ray microanalysis », *Appl. Opt.* **37**, p 2231, (1998).

<sup>3</sup> Kasparian J., Fréjafon E., *et al.*, « Characterization of urban aerosols using sem-microscopy, xray-analysis and lidar measurements », *Atmos. Environ.* **32**, p 2957, (1998).

<sup>4</sup> Fréjafon E., « Spectroscopie optique et mesure par lidar d'aérosols atmosphériques », thèse de l'université Claude Bernard Lyon1, n° 40-99, (1999).

<sup>5</sup> Seinfeld J. H., « Atmospheric chemistry and physics of air pollution », (Wiley, New-York, 1985).

<sup>6</sup> Sorensen C., Gangopadhyay S., and Elminyaw I., « Optical structure factor measurements of soot particles in a premixed flame », *Appl. Opt.* **30**, p 4859, (1991).

<sup>7</sup> Sorensen C., Cai J., and Lu N., « Light-scattering measurements of monomer size, monomers per aggregate, and fractal dimension for soot aggregate in flames », *Appl. Opt.* **31**, p 6547, (1992).

<sup>8</sup> Sorensen C., and Lu N., « depolarized light scattering from fractal soot aggregates », *Phys. Rev. E* **50**, p 3109, (1994).

<sup>9</sup> Chylek P., Ramaswamy V., *et al.*, « Optical properties and mass concentration of carbocaceous smokes », *Appl. Opt.* **20**, p 2980, (1981).

<sup>10</sup> Fochesatto J., « Importance de la couche limite atmosphérique pour la qualité de l'air : étude de la transition nocturne-diurne et de la réponse aux forçages météorologiques de moyennes et de grandes échelles », thèse de l'université Pierre et Marie Curie, (2000).

<sup>11</sup> Measures R. M., « Laser remote sensing : fundamentals and applications », (Krieger, Malabar Florida, 1992).



# Chapitre III : Oscillateurs et amplificateurs paramétriques optiques (OPO, OPA)

Comme on l'a vu dans les chapitres précédents, il est important de disposer d'une source laser pulsée et accordable dans l'infrarouge moyen. Une telle source pourrait permettre, en effet, de réaliser un lidar aérosols UV-IR pour accéder à la distribution de taille et à la concentration des aérosols. Elle permettrait, de plus, de détecter, avec la méthode DIAL, des polluants gazeux (COV...) inaccessibles pour le moment.

Les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) apparaissent comme une solution d'avenir pour disposer de telles sources laser avec une énergie suffisante. Mais de tels OPO sont difficiles à réaliser et ne se trouvent pas sur le marché. Un travail important de développement a donc été effectué dans le cadre d'un projet européen BRITE-EURAM, appelé NOCTILS (Non-linear Optical Crystals for Tunable Infrared Laser Sources) regroupant plusieurs partenaires publiques (National Physical Laboratories de Londres, LASIM - Université Lyon1) et privés (Thales - Laboratoire Central de Recherche, Cristal Laser, FEE, Elight Laser Systems). Dans notre groupe, une approche originale, qui consiste à pomper les OPO avec un laser accordable (Titane:Saphir), a été développée. Cette méthode permet d'obtenir, de manière simple, une très grande plage d'accordabilité pour les longueurs d'onde générées par ce processus paramétrique.

Dans un premier temps, la théorie des oscillateurs et des amplificateurs paramétriques optiques sera développée. Puis, le dispositif expérimental utilisé et les résultats obtenus, avec les différents cristaux testés en vue de leur implantation dans notre système lidar, seront présentés.

## I. Théorie des oscillateurs et des amplificateurs paramétriques optiques

### A. Optique non linéaire et théorie électromagnétique des milieux anisotropes

Les phénomènes d'optique sont dits non linéaires lorsque la réponse du système matériel à un champ optique appliqué dépend d'une manière non linéaire de la force de ce champ optique. Le début de l'optique non linéaire est souvent pris comme étant la découverte de la génération de seconde harmonique par Franken *et al.*<sup>1</sup> en 1961. Il existe de nombreux processus non linéaires tels que la génération de la seconde harmonique, la somme de fréquences... On s'intéresse dans notre cas aux oscillateurs et aux amplificateurs paramétriques optiques (OPO et OPA).

#### 1. Polarisation linéaire et non linéaire

Lorsqu'un milieu diélectrique est soumis à un champ électrique, il se polarise. Cette polarisation acquiert une composante non linéaire lorsque le champ incident devient intense et elle est alors reliée à celui-ci par la relation suivante<sup>5</sup> :

### III-1

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{e}_0 \cdot (\mathbf{c}^{(1)} + \mathbf{c}^{(2)} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{c}^{(3)} \cdot \mathbf{E}^2(\mathbf{r}, t) + \dots) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}, t) + \dots$$

avec  $\mathbf{e}_0$  la perméabilité électrique du vide,

$\mathbf{P}$  et  $\mathbf{E}$  respectivement le vecteur polarisation et le vecteur champ électrique,

$\omega$  la pulsation,

$\mathbf{r}$  la direction de propagation,

$\mathbf{c}^{(1)}$  la susceptibilité électrique linéaire,

$\mathbf{c}^{(2)}$  la susceptibilité électrique non linéaire d'ordre 2, donnant naissance aux processus de génération de seconde harmonique, à la génération paramétrique, ou au mélange de fréquence,

$\mathbf{c}^{(3)}$  la susceptibilité électrique non linéaire d'ordre 3, à l'origine de phénomènes tels que la génération de troisième harmonique, l'effet Raman ou l'effet Kerr.

Le vecteur polarisation peut être décomposé en une partie linéaire  $\mathbf{P}^{(1)}$  et une partie non linéaire  $\mathbf{P}_{NL}$  :

$$\text{III-2} \quad \mathbf{P} = \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}_{NL} = \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)} + \mathbf{P}^{(3)} + \dots$$

Les champs dans l'équation précédente sont les champs instantanés. En général, les susceptibilités non linéaires sont définies non pas en termes de champs instantanés mais à partir de leurs composantes de Fourier définies par :

$$\text{III-3} \quad \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [\mathbf{E}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + c.c.]$$

$$\text{III-4} \quad \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [\mathbf{P}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + c.c.]$$

D'après III-1 la polarisation linéaire s'écrit :

$$\text{III-5} \quad \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega}) = \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{c}^{(1)} \cdot (\boldsymbol{\omega}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \boldsymbol{\omega})$$

Cette relation signifie qu'en première approximation, la polarisation, à une fréquence donnée, est proportionnelle à la composante du champ à la même fréquence. En se basant sur cette relation, les propriétés de propagation d'un faisceau de lumière ordinaire, telles que la réflexion, la réfraction, la diffraction, la biréfringence ou la diffusion, s'expliquent très bien. Pour un milieu anisotrope,  $\mathbf{c}^{(1)}(\boldsymbol{\omega})$  est un tenseur d'ordre 2 ayant  $3 \times 3 = 9$  éléments. En se basant sur la forme de la matrice du tenseur de second ordre, l'équation III-5 s'écrit :

$$\text{III-6} \quad \begin{bmatrix} P_i^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \\ P_j^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \\ P_k^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \end{bmatrix} = \mathbf{e}_0 \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{c}_{ii}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{ij}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{ik}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \\ \mathbf{c}_{ji}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{jj}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{jk}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \\ \mathbf{c}_{ki}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{kj}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) & \mathbf{c}_{kk}^{(1)}(\boldsymbol{\omega}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_i(\boldsymbol{\omega}) \\ E_j(\boldsymbol{\omega}) \\ E_k(\boldsymbol{\omega}) \end{bmatrix}$$

Ici,  $P_i^{(1)}(\mathbf{w})$ ,  $E_i(\mathbf{w})$ , ... sont les composantes respectivement des vecteurs  $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{w})$  et  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{w})$ . Cette équation peut encore s'écrire sous la forme d'une sommation :

$$\text{III-7} \quad P_i^{(1)}(\mathbf{w}) = \mathbf{e}_0 \sum_j \mathbf{c}_{ij}^{(1)}(\mathbf{w}) E_j(\mathbf{w})$$

D'une manière similaire la polarisation non linéaire du second ordre s'écrit dans le cas de l'oscillateur paramétrique :

$$\text{III-8} \quad P_i^{(2)}(\mathbf{w}_p = \mathbf{w}_s + \mathbf{w}_i) = \mathbf{e}_0 \cdot \sum_{ijk} \frac{\mathbf{c}_{ijk}^{(2)}}{2} \cdot [E_j(\mathbf{w}_s) \cdot E_k(\mathbf{w}_i)] \exp(i[(\mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_p) \cdot \mathbf{r}])$$

avec les indices p, s et i qui désignent respectivement l'onde de pompe, l'onde signal et l'onde complémentaire.

Introduisons ici un tenseur non linéaire défini par :

$$\text{III-9} \quad \mathbf{c}_{ijk}^{(2)}(-\mathbf{w}_p, \mathbf{w}_s, \mathbf{w}_i) = 2 \cdot d_{ijk}(-\mathbf{w}_p, \mathbf{w}_s, \mathbf{w}_i)$$

La susceptibilité est de dimension 3. Kleinman<sup>2</sup> a montré que la susceptibilité purement réelle dans des milieux sans perte entraîne une symétrie vis à vis des permutations des deux derniers indices ( $\mathbf{c}_{ijk}^{(2)}(\mathbf{w}_1 + \mathbf{w}_2) = \mathbf{c}_{ikj}^{(2)}(\mathbf{w}_2 + \mathbf{w}_1) \Leftrightarrow \mathbf{c}_{ijk}^{(2)} = \mathbf{c}_{ikj}^{(2)}$ ). On peut alors écrire :  $\mathbf{c}_{ijk}^{(2)} = \mathbf{c}_{il}^{(2)}$  où les valeurs de i correspondent aux différentes projections du vecteur polarisation  $\mathbf{P}$  sur la base considérée. Le système d'axe peut alors être soit celui lié à la structure du cristal appelé repère cristallographique (a, b, c) ou bien soit celui lié au repère physique du cristal appelé repère cristallographique (x, y, z).

Le tenseur non linéaire peut donc être représenté par une matrice de  $3 \times 6 = 18$  élément. Lorsqu'un cristal présente un ou plusieurs axes de symétrie, certaines composantes de cette matrice prennent alors des valeurs nulles, ce qui entraîne une simplification notable. Par exemple, sur les 32 classes possibles de matériaux, 21 possèdent un ou plusieurs axes de symétrie et peuvent donc avoir une matrice réduite.

Dans le système de coordonnées cristallographique (a, b, c), les composantes non nulles du tenseur de susceptibilité du deuxième ordre  $d_{ijk}$ , pour les cristaux du groupe ponctuel  $mm2$ , sont :

$$d_{caa} = d_{31} ; d_{cbb} = d_{32} ; d_{ccc} = d_{33} ; d_{aac} = d_{15} ; d_{bbc} = d_{24}$$

Si les relations de symétrie de Kleinman sont valides, tous les indices du tenseur  $d_{ijk}$  peuvent être permutés et donc  $d_{15} = d_{31}$  et  $d_{24} = d_{32}$ . Les composantes de  $d_{ijk}$  dans le système de coordonnées (x, y, z) correspondent à différentes affectations entre les repères cristallographique (x, y, z) et cristallographique (a, b, c). On va s'intéresser plus particulièrement à la correspondance (x, y, z) (a, b, c) dans le cas des cristaux de KTP et de KTA, et à celle (x, y, z) (b, a, c) pour les cristaux de KNbO<sub>3</sub> (Tableau III-1).

	$d_{caa} = d_{31}$	$d_{cbb} = d_{32}$	$d_{ccc} = d_{33}$	$d_{aac} = d_{15}$	$d_{bbc} = d_{24}$
(x, y, z) (a, b, c)	$d_{zxx}$	$d_{zyy}$	$d_{zzz}$	$d_{xxz}$	$d_{yyz}$
(x, y, z) (b, a, c)	$d_{zyy}$	$d_{zxx}$	$d_{zzz}$	$d_{yyz}$	$d_{xxz}$

Tableau III-1. Composantes du tenseur  $d_{ijk}$  dans le système de coordonnées diélectriques pour différentes affectations entre les repères diélectriques et cristallographiques.

Enfin, le tenseur  $\mathbf{C}_{ijk}$  est nul si le cristal possède un centre d'inversion. En effet, si le signe du champ appliqué est changé, la polarisation doit également changer de signe si le cristal possède une telle symétrie. Ceci impose alors à tous les tenseurs d'ordres pairs d'avoir une valeur nulle. Supposons, par exemple, que la polarisation non linéaire d'ordre deux soit de la forme :

$$\text{III-10 } P^{(2)}(t) = \mathbf{C}^{(2)} \cdot (E(t))^2$$

Lorsque le cristal possède un centre de symétrie, ou centre d'inversion :

$$\text{III-11 } -P^{(2)}(t) = \mathbf{C}^{(2)} \cdot (-E(t))^2$$

Or,  $P^{(2)}(t)$  est une fonction paire vis à vis de l'inversion de la valeur du champ. Les deux équations précédentes implique alors que cette polarisation est nulle lorsqu'un système matériel possède un centre d'inversion. Ainsi tous les cristaux appartenant aux groupes de symétrie  $O_h, T_d, C_{2h}, D_{2h} \dots$  (les groupes possédant une combinaison de rotations et de miroirs, aboutissant à une inversion) auront une polarisation non linéaire d'ordre deux qui sera nulle.

## 2. Structure d'une onde plane dans un milieu anisotrope : cas d'un milieu biaxial

La Figure III-1 donne un aperçu de l'ellipsoïde d'indices dans le cas d'un milieu biaxial.

- $OH$  est la direction de propagation de l'onde incidente. Elle fait un angle  $\mathbf{q}$  avec la direction  $Oz$  (dans le plan  $xz$ ) et un angle  $\mathbf{j}$  avec la direction  $Ox$  (dans le plan  $xy$ ).
- $x, y, z$  est le repère cartésien lié au cristal.
- $OA$  et  $OB$  sont les deux axes optiques, qui font un angle  $\mathbf{W}$  avec la direction  $Oz$  dans le plan  $xz$ .
- $n_o(\mathbf{q}, \mathbf{j})$  et  $n_e(\mathbf{q}, \mathbf{j})$  sont respectivement les indices vus par l'onde se propageant suivant l'axe ordinaire et l'axe extraordinaire.

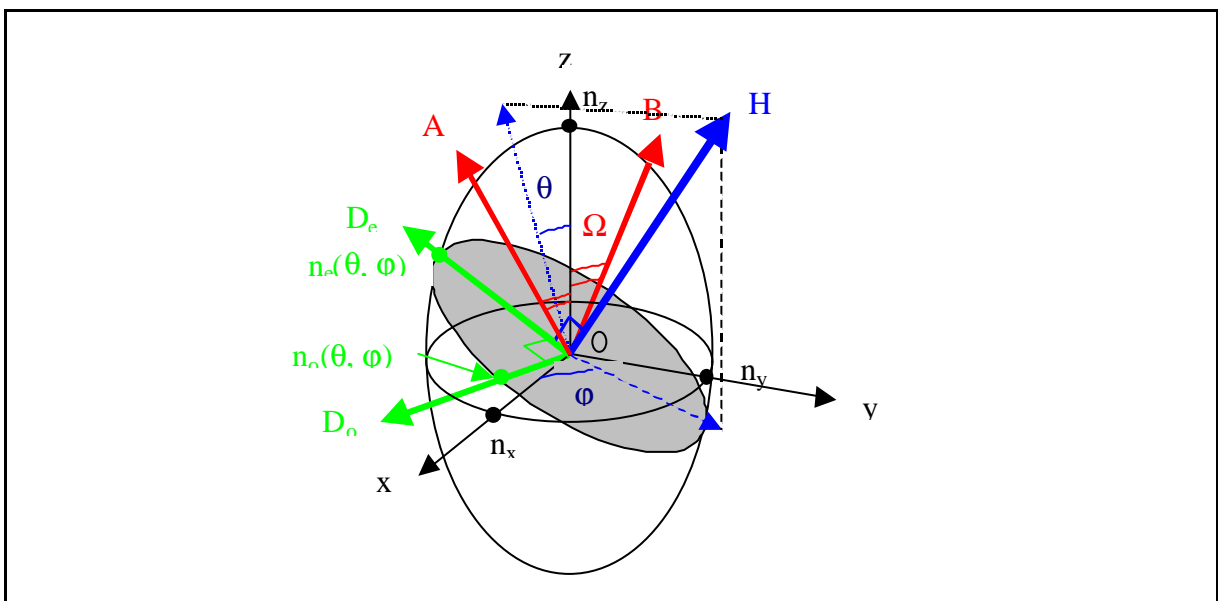


Figure III-1. Ellipsoïde d'indices pour un cristal biaxial.

### 3. Calcul de la valeur de la susceptibilité effective d'ordre deux

Soit  $\mathbf{c}_{eff}^{(2)}$  la susceptibilité effective, qui correspond à la projection du tenseur de susceptibilité électrique d'ordre deux suivant la direction de propagation de l'onde incidente. Cette valeur est fonction de la direction de propagation, de la polarisation, de la position de l'axe optique et dépend de la correspondance entre les bases cristallographique et cristallographique.

Yao<sup>3</sup> et Dmitriev<sup>4</sup> ont obtenu, pour un cristal biaxial du groupe de symétrie ponctuel  $mm2$ , les équations de susceptibilités électriques effectives pour des cristaux de type *I* ou de type *II* (Définis au §I.C.4.b)).

Le  $d_{eff}$  ( $2d_{eff} = \mathbf{c}_{eff}^{(2)}$ ) s'exprime alors pour la correspondance  $(x, y, z) \rightarrow (a, b, c)$  par :

$$\begin{aligned} d_{eff} \left( \frac{TypeI}{(a,b,c)} \right) &= 2 \cdot d_{15} \cdot A \cdot F \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F) \\ &+ 2 \cdot d_{24} \cdot A \cdot F \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E) \\ &+ d_{31} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E)^2 + d_{32} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E)^2 \\ &+ d_{33} \cdot A^3 \cdot E \cdot F^2 \end{aligned} \quad \text{III-12}$$

III-

13

$$\begin{aligned} d_{eff} \left( \frac{TypeII}{(a,b,c)} \right) &= -d_{15} \cdot [A \cdot F \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F)^2 + A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F)] \\ &- d_{24} \cdot [A \cdot F \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F)^2 + A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E)] \\ &- d_{31} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F) \\ &- d_{32} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E) \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \\ &- d_{33} \cdot A^3 \cdot E^2 \cdot F \end{aligned}$$

Et pour la correspondance  $(x, y, z) \rightarrow (b, a, c)$  par :

$$\begin{aligned} d_{eff} \left( \frac{TypeI}{(b,a,c)} \right) &= d_{15} \cdot A \cdot F \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E) \\ &+ d_{24} \cdot A \cdot F \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F) \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \\ &+ d_{31} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot F - D \cdot E)^2 + d_{32} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E)^2 \\ &+ d_{33} \cdot A^3 \cdot E \cdot F^2 \end{aligned} \quad \text{III-14}$$

$$\begin{aligned}
d_{eff} \left( \frac{TypeII}{(a,b,c)} \right) = & -d_{15} \cdot [A \cdot F \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F)^2 + A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E)] \\
& - d_{24} \cdot [A \cdot F \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F)^2 + A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F)] \\
III15 \quad & - d_{31} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot C \cdot E - D \cdot F) \cdot (B \cdot C \cdot F + D \cdot E) \\
& - d_{32} \cdot A \cdot E \cdot (B \cdot D \cdot F - C \cdot E) \cdot (B \cdot D \cdot E + C \cdot F) \\
& - d_{33} \cdot A^3 \cdot E^2 \cdot F
\end{aligned}$$

avec :  $A = \sin \mathbf{q}$   $B = \cos \mathbf{q}$   $C = \sin \mathbf{j}$   $D = \cos \mathbf{j}$   $E = \sin \mathbf{d}$   $F = \cos \mathbf{d}$

$\mathbf{W}$  est l'angle entre l'axe OZ et l'axe optique du cristal, et  $\mathbf{d}$  est l'angle défini par :

$$III-16 \quad \cotan \mathbf{d} = \frac{\cot an^2 \Omega \cdot \sin^2 \mathbf{q} - \cos^2 \mathbf{q} \cdot \cos^2 \mathbf{j} + \sin^2 \mathbf{j}}{\cos \mathbf{q} \cdot \sin 2\mathbf{j}}$$

Le calcul de ces susceptibilités effectives permet d'évaluer le caractère non linéaire d'un cristal et donc le gain par passage  $G(l)$  (Cf équations III-38, III-42) qu'il fournit lors d'une génération paramétrique de fréquences.

#### 4. Equations de Maxwell dans un milieu diélectrique

Les équations de Maxwell couplent le champ au milieu et régissent son évolution dans un milieu diélectrique sous l'effet de la polarisation :

$$III-17 \quad \text{rot } \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$$

$$III-18 \quad \text{rot } \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J}$$

$$III-19 \quad \mathbf{D} = \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P}$$

$$III-20 \quad \mathbf{J} = \mathbf{s} \cdot \mathbf{E}$$

$$III-21 \quad \mathbf{B} = \mathbf{m}_0 \cdot \mathbf{H}$$

où  $\mathbf{B}$  est le champ magnétique et  $\mathbf{H}$  l'excitation magnétique.  $\mathbf{E}$  est le champ électrique,  $\mathbf{D}$  l'excitation électrique et  $\mathbf{J}$  la densité de courant.

$\mathbf{e}_0$  est la susceptibilité électrique,  $\mathbf{s}$  la conductivité du milieu et  $\mathbf{m}_0$  la susceptibilité magnétique.

La combinaison de ces équations fondamentales permet d'obtenir l'équation d'onde qui décrit l'évolution du champ électrique dans un milieu diélectrique, sous l'effet de la polarisation induite :

$$III-22 \quad \Delta \mathbf{E} - \mathbf{m}_0 \cdot \mathbf{s} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{m}_0 \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mathbf{m}_0 \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}$$

On suppose maintenant que la propagation s'effectue selon  $z$  pour réduire l'équation III-22 en une équation à une dimension. En substituant les équations III-3 et III-4 dans l'équation III-22, on obtient<sup>5</sup> :

$$\begin{aligned}
\text{III-23} \quad & \frac{1}{2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{\mathbf{m}_0 \mathbf{e}_0}{2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \frac{\mathbf{m}_0 \mathbf{S}}{2} \cdot \frac{\partial E}{\partial t} + i.k \cdot \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{i \mathbf{w} \mathbf{m}_0 \mathbf{S}}{2} \cdot E + i \mathbf{w} \mathbf{m}_0 \mathbf{e}_0 \frac{\partial E}{\partial t} \\
& = \frac{\mathbf{m}_0}{2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} - i \mathbf{w} \mathbf{m}_0 \cdot \frac{\partial P}{\partial t} - \frac{\mathbf{w}^2 \mathbf{m}_0}{2} P
\end{aligned}$$

Comme la durée d'une période du champ  $E$  (quelques femtosecondes) est très petite devant la durée d'une impulsion (plusieurs nanosecondes), l'approximation d'enveloppe lentement variable est valable. Dans cette approximation les valeurs des dérivées partielles spatiale et temporelle, au premier et second ordre, restent très inférieures aux valeurs des champs eux-mêmes :

$$\text{III-24} \quad \mathbf{w}^2 \cdot P \gg \mathbf{w} \cdot \frac{\partial P}{\partial t} \gg \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

$$\text{III-25} \quad k \cdot \frac{\partial E}{\partial z} \gg \frac{\partial^2 E}{\partial z^2}$$

$$\text{III-26} \quad \mathbf{w} \cdot E \gg \frac{\partial E}{\partial t}$$

L'équation unidirectionnelle devient alors, compte tenu de cette approximation :

$$\text{III-27} \quad \frac{\partial E}{\partial z} + \mathbf{a} \cdot E + \frac{1}{c} \cdot \frac{\partial E}{\partial t} = \frac{i}{2 \cdot n} \cdot \mathbf{m}_0 \cdot c \cdot \mathbf{w} \cdot P$$

où  $\mathbf{a} = \frac{1}{2} \cdot c \cdot \mathbf{S} \cdot \mathbf{m}_0$  (III-28) est le coefficient de perte du champ électrique  $E$ ,

$c$  est la vitesse de la lumière dans le vide,

$n = \sqrt{1 + \mathbf{C}}$  (III-29) est l'indice du milieu diélectrique considéré.

Il est possible d'appliquer l'équation unidirectionnelle, obtenue précédemment, au cas des processus à trois ondes.

## 5. Processus à trois ondes

Dans les processus de génération paramétrique, une onde incidente (onde de pompe), de fréquence  $\mathbf{w}_p$ , génère deux ondes émergentes de fréquence  $\mathbf{w}_s$  (onde signal) et  $\mathbf{w}_i$  (onde complémentaire) dans un cristal non linéaire, par l'intermédiaire de sa susceptibilité d'ordre 2. Durant ce processus il y a conservation de l'énergie incidente :

$$\text{III-30} \quad \mathbf{w}_p = \mathbf{w}_s + \mathbf{w}_i$$

Ainsi en tenant compte de cette relation, les seuls termes possibles, pour les trois ondes sont alors :

$$\text{III-31} \quad \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{w}_p, z) = \mathbf{e}_0 \mathbf{C}^{(2)}(\mathbf{w}_s, \mathbf{w}_i) \mathbf{E}(\mathbf{w}_s, z) \mathbf{E}(\mathbf{w}_i, z) e^{i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{III-32} \quad \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{w}_s, z) = \mathbf{e}_0 \mathbf{C}^{(2)}(\mathbf{w}_p, -\mathbf{w}_i) \mathbf{E}(\mathbf{w}_p, z) \mathbf{E}^*(\mathbf{w}_i, z) e^{i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{III-33} \quad \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{w}_i, z) = \mathbf{e}_0 \mathbf{C}^{(2)}(\mathbf{w}_p, -\mathbf{w}_s) \mathbf{E}(\mathbf{w}_p, z) \mathbf{E}^*(\mathbf{w}_s, z) e^{i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{avec III-34 } k_p = k_s + k_i + \Delta k$$

Finalement, en remplaçant les valeurs des polarisations des trois ondes dans l'équation unidirectionnelle III-27, les trois équations couplées d'évolution des champs s'écrivent :

$$\text{III-35 } \frac{dE_s}{dz} + \mathbf{a}_s E_s = i \mathbf{k}_s E_p E_i^* e^{i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{III-36 } \frac{dE_i}{dz} + \mathbf{a}_i E_i = i \mathbf{k}_i E_p E_s^* e^{i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{III-37 } \frac{dE_p}{dz} + \mathbf{a}_p E_p = i \mathbf{k}_p E_s E_i e^{-i \Delta k \cdot z}$$

$$\text{avec } \mathbf{k}_l = \frac{\mathbf{w}_l d}{n_l c} \quad (l=s, i, p).$$

## B. Génération paramétrique

Les équations couplées III-35, III-36 sont résolues en considérant que l'onde de pompe n'est pas déplétée et donc que  $dE_p/dz=0$ . De plus,  $\mathbf{a}_s = \mathbf{a}_i = \mathbf{a}$ .

Si  $\mathbf{G}$  est le coefficient de gain paramétrique :

$$\text{III-38 } \Gamma^2 = \frac{\mathbf{w}_s \mathbf{w}_i |d|^2 |E_p|^2}{n_s n_i c^2} = \frac{2 \mathbf{w}_s \mathbf{w}_i |d|^2 I_p}{n_s n_i n_p \epsilon_0 c^3}$$

et  $g$  le coefficient de gain total :

$$\text{III-39 } g = \left[ \Gamma^2 - \left( \frac{\Delta k}{2} \right)^2 \right]^{1/2}$$

les solutions du système III-35 - III-37 sont les suivantes<sup>5</sup> pour l'amplification paramétrique à la sortie du cristal (pour  $z = l$ ,  $l$  étant la longueur du cristal) :

$$\text{III-40 } E_s(l) e^{a l} = E_s(0) e^{i \Delta k l / 2} \left[ \cosh gl - \frac{i \Delta k}{2g} \sinh gl \right] + i \frac{\mathbf{k}_s E_p}{g} E_i^*(0) e^{i \Delta k l / 2} [\sinh gl]$$

$$\text{III-41 } E_i(l) e^{a l} = E_i(0) e^{i \Delta k l / 2} \left[ \cosh gl - \frac{i \Delta k}{2g} \sinh gl \right] + i \frac{\mathbf{k}_i E_p}{g} E_s^*(0) e^{i \Delta k l / 2} [\sinh gl]$$

Lorsqu'un seul des deux champs est incident pour l'amplification paramétrique, le gain  $G_s(l)$  est alors :

$$\text{III-42 } G_s(l) \equiv \frac{|E_s(l)|^2}{|E_s(0)|^2} - 1 = \Gamma^2 l^2 \frac{\sinh^2 gl}{(gl)^2}$$



Notons que  $G_s(l)$  est maximum pour  $\mathbf{Dk}=0$ .

Dans ce cas le gain est indépendant de la phase entre le champ incident  $E_s(0)$  et le champ de l'onde de pompe  $E_p$  puisque l'onde complémentaire générée ajuste sa phase pour maximiser le gain. Cependant, si deux champs  $E_s(0)$  et  $E_i(0)$  sont simultanément incidents sur l'amplificateur, le gain dépend de leurs phases relatives par rapport au champ de l'onde de pompe.

Dans la limite des gains faibles, où  $\Gamma^2 l^2 < (\Delta k l / 2)^2$ , le gain de l'amplification paramétrique est (Figure III-2) :

$$\text{III-43 } G_s(l) = \Gamma^2 l^2 \sin c^2 \left\{ \left[ \left( \frac{\Delta k}{2} \right)^2 - \Gamma^2 \right]^{\frac{1}{2}} l \right\}$$

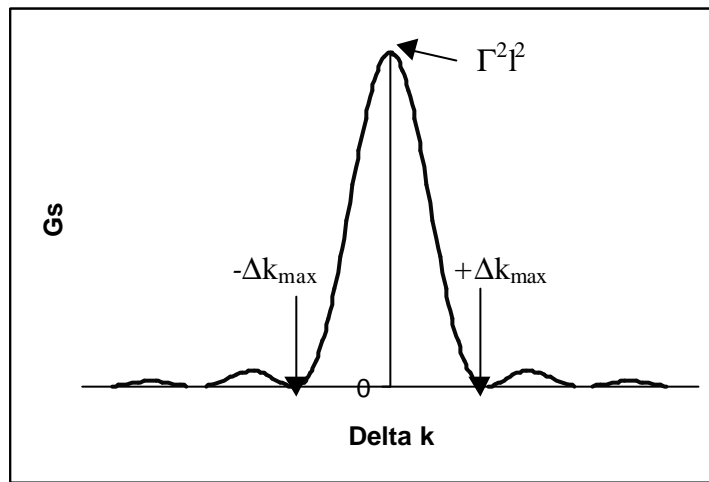


Figure III-2. Gain de l'amplification paramétrique  $G_s$  dans la limite des gains faibles.

Le gain  $G_s$  devient nul lorsque :

$$\text{III-44 } \left| \left( \frac{\Delta k}{2} \right)^2 - \Gamma^2 \right|^{\frac{1}{2}} l = \mathbf{p}$$

La largeur de bande  $\mathbf{Dk}$  du gain  $G_s(\mathbf{Dk})$  est comprise entre  $+\mathbf{Dk}_{max}$  et  $-\mathbf{Dk}_{max}$  qui est défini par :

$$\text{III-45 } \Delta k_{max} = 2 \sqrt{\left( \frac{\mathbf{p}}{l} \right)^2 + \Gamma^2}$$

## C. Oscillateurs paramétriques optiques

### 1. Introduction

Un oscillateur paramétrique est schématiquement représenté par un cristal non linéaire à l'intérieur d'une cavité optique. Quand le cristal non linéaire est pompé, il fournit un gain à deux fréquences  $\omega_s$  et  $\omega_i$  (l'onde signal et l'onde complémentaire). Quand le gain excède les pertes, l'OPO atteint alors le seuil et oscille. L'onde signal et l'onde complémentaire générés sont alors cohérents avec le faisceau de pompe. Il y a plusieurs configurations pour un OPO et notamment les cavités doublement résonnantes (sur l'onde signal et sur l'onde complémentaire) ou DRO et les cavités simplement résonnantes (sur l'onde signal ou sur l'onde complémentaire) ou SRO. Bien que le seuil des cavités DRO soit plus bas, les cavités SRO ont de nombreux avantages comme, entre autre, une plus grande stabilité en fréquence et en puissance de sortie, une bonne efficacité de conversion et une architecture plus simple de la cavité et des miroirs. Par la suite, seules les cavités simplement résonnantes seront étudiées et utilisées.

## 2. Le seuil

Habituellement, dans un oscillateur paramétrique, l'onde de pompe ne fait qu'un seul passage à travers le cristal non linéaire. L'onde signal  $E_s(l)$  ou l'onde complémentaire  $E_i(l)$  générés font des aller-retour dans la cavité (car l'oscillateur est résonnant pour l'une d'entre elles), mais ne sont amplifiées qu'à l'aller, suivant les équations III-40, III-41, et uniquement durant le passage de l'onde de pompe. Par exemple, si l'onde de pompe a une durée de 10 ns et la cavité a une longueur de 20 mm, au maximum 60 aller-retour sont possibles dans la cavité. Le gain s'effectue donc sur l'aller, alors que les pertes correspondent aux pertes  $\mathbf{a}$  du champ électrique sur l'aller-retour. Dans le cas où  $\mathbf{Dk}=0$  (c'est à dire en condition d'accord de phase), alors  $g=\mathbf{G}$  (d'après l'équation III-39) et  $G_s(l)=\sinh^2(\mathbf{G}l)$  (d'après l'équation III-42). Dans la limite des faibles gains :  $\sinh x \gg x$  et donc  $G_s(l)=\mathbf{G}^2 l^2$ . Au seuil des oscillations, le gain (ici de l'onde signal) compense juste les pertes, et la condition d'oscillation est donc  $\mathbf{G}^2 l^2=2\mathbf{a}_s l$ . La valeur de  $\mathbf{a}_s$  est fonction de la cavité<sup>6</sup> :

$$\text{III-46 } \mathbf{a}_s = \frac{\omega_s n_s}{Q_s C}$$

avec  $Q_s$  le facteur de qualité à la longueur d'onde  $\mathbf{l}_s$ .

Si les pertes sont essentiellement dues aux miroirs de la cavité, alors  $2\mathbf{a}_s l=1-R_s$  où  $R_s$  est le coefficient de réflexion du miroir de fin de cavité. L'intensité de seuil est alors, dans la limite des gains faibles :

$$\text{III-47 } I_{\text{seuil}} = \frac{n_s n_i n_p \mathbf{e}_0 C^3}{2\omega_s \omega_i |d_{\text{eff}}|^2 l^2} (1 - R_s)$$

Remarquons que plus le cristal non linéaire est long, plus l'intensité de seuil est basse (dépendance en  $1/l^2$ ). De même, plus le  $d_{\text{eff}}$  est important plus l'intensité de seuil est basse (dépendance en  $1/d_{\text{eff}}^2$ ).

## 3. Efficacité de conversion

L'efficacité de conversion totale déterminée expérimentalement  $\mathbf{h}_{exp}$  est définie, pour des raisons pratiques, comme le rapport de la somme de l'énergie de l'onde signal  $U_s$  et de l'onde complémentaire  $U_i$  sur l'énergie de l'onde de pompe incidente  $U_p(0)$  :

$$\text{III-48 } \mathbf{h}_{exp} = \frac{U_s + U_i}{U_p(0)}$$

L'énergie entre l'onde signal et l'onde complémentaire est répartie suivant le rapport des énergies des photons :

$$\text{III-49 } \frac{U_s}{U_i} = \frac{\mathbf{I}_i}{\mathbf{I}_s}$$

L'énergie de l'onde signal peut donc être exprimée en fonction de l'énergie totale  $U_T$ , convertie par l'OPO :

$$\text{III-50 } U_s = \frac{U_T}{1 + \frac{\mathbf{I}_s}{\mathbf{I}_i}}$$

#### 4. Accord de phase

Pour que le processus d'oscillation paramétrique soit efficace, il est nécessaire d'avoir un accord de phase ( $\mathbf{Dk}=0$ ). L'accord de phase est réalisé lorsque les conditions suivantes sont réalisées simultanément :

$$\text{III-51 } \mathbf{w}_p = \mathbf{w}_s + \mathbf{w}_i$$

$$\text{III-52 } \vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_i$$

Si les trois ondes sont colinéaires, la deuxième condition se réécrit :

$$\text{III-53 } \mathbf{w}_p n_p = \mathbf{w}_s n_s + \mathbf{w}_i n_i$$

Dans un cristal, les indices  $n_p$ ,  $n_s$  et  $n_i$  dépendent, en général, de l'orientation du cristal, de la température, de la pression, du champ électrique et de la longueur d'onde. Le contrôle de n'importe laquelle de ces variables peut être utilisé pour changer les fréquences de sortie de l'onde signal et de l'onde complémentaire. En général, l'accord de phase est réalisé en variant la température ou l'angle de rotation du cristal. Dans notre cas, nous avons adopté une méthode originale en n'effectuant pas de rotation du cristal, mais en changeant la longueur d'onde de pompe. On parlera alors de « no-tracking-OPO ».

##### a) Accord de phase en longueur d'onde

Les indices de réfraction dépendent de la longueur d'onde suivant la relation de dispersion. En particulier, la variation des indices principaux  $n_x, n_y, n_z$ , pour les cristaux biréfringents, est donnée par des équations empiriques de type équations de Sellmeier, de la forme :

$$\text{III-54 } n_i = \sqrt{\left( A_i + \frac{B_i}{1 - C_i \cdot \mathbf{I}^2} - D_i \cdot \mathbf{I}^2 \right)}$$

avec  $i=x, y, z$  et les coefficients  $A_i, B_i, C_i, D_i$  connus empiriquement pour chaque cristaux.

L'indice ordinaire  $n_o(\mathbf{l}, \mathbf{q}, \mathbf{j})$  et l'indice extraordinaire  $n_e(\mathbf{l}, \mathbf{q}, \mathbf{j})$  sont alors les deux solutions de l'équation du second degré de la surface d'onde<sup>7</sup> :

$$\text{III-55 } \frac{\sin^2 \mathbf{q} \cdot \cos^2 \mathbf{j}}{n^{-2}(\mathbf{l}, \mathbf{q}, \mathbf{j}) - n_x^{-2}(\mathbf{l})} + \frac{\sin^2 \mathbf{q} \cdot \sin^2 \mathbf{j}}{n^{-2}(\mathbf{l}, \mathbf{q}, \mathbf{j}) - n_y^{-2}(\mathbf{l})} + \frac{\cos^2 \mathbf{q}}{n^{-2}(\mathbf{l}, \mathbf{q}, \mathbf{j}) - n_z^{-2}(\mathbf{l})} = 0$$

Cette équation permet de voir pour quel couple d'angles  $(\mathbf{q}, \mathbf{j})$ , les indices solutions de cette équation, vont remplir la condition d'accord de phase (équation III-53), connaissant  $\mathbf{l}_p$  ou inversement.

Dans cette approche nouvelle, les longueurs d'onde du signal et de la complémentaire vont dépendre de la longueur d'onde accordable de la pompe mais pas de  $\mathbf{q}$  et de  $\mathbf{j}$ , car l'orientation du cristal est fixe (Figure III-3). Cette méthode présente de nombreux avantages par rapport aux autres méthodes. Ainsi, comme l'onde de pompe varie sur une large plage de longueurs d'onde (entre 650 nm et 950 nm pour le laser Ti:Sa), l'onde signal et l'onde complémentaire seront générés sur un intervalle de longueurs d'onde bien plus grand que si l'orientation du cristal ou la température sont changées. De plus, cette configuration permet de toujours rester en incidence normale sur le cristal, contrairement à l'accord de phase en angle, et ainsi de déposer directement les revêtements des miroirs sur les faces de celui-ci. Cet OPO sera alors appelé OPO monolithique. Ce dernier, beaucoup plus simple à aligner, possède une meilleure efficacité de conversion et un seuil plus bas que les OPO « classiques », comme on le verra par la suite.

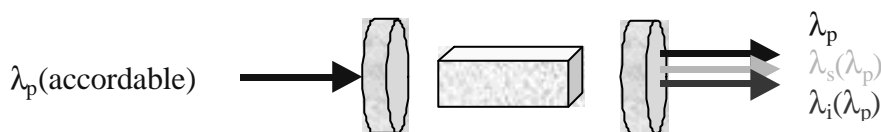


Figure III-3. Schéma d'un OPO en accord en longueur d'onde.

### b) Polarisation en accord de phase : type I et type II

Trois types d'oscillateurs paramétriques optiques peuvent être définis suivant les polarisations de l'onde de pompe, de l'onde signal et de l'onde complémentaire:

- Type I : les polarisation de l'onde signal et de l'onde complémentaire sont parallèles entre elles et perpendiculaires à la polarisation de l'onde de pompe. Par exemple, l'onde

de pompe est polarisée suivant l'axe ordinaire et l'onde signal et l'onde complémentaire suivant l'axe extraordinaire.

- Type *Ila* : les polarisations de l'onde signal et de l'onde complémentaire sont perpendiculaires entre elles et la polarisation de l'onde signal est parallèle à celle de l'onde de pompe. Par exemple, l'onde de pompe et l'onde signal sont polarisés suivant l'axe ordinaire et l'onde complémentaire suivant l'axe extraordinaire.
- Type *Ilb* : les polarisations de l'onde signal et de l'onde complémentaire sont perpendiculaires entre elles et la polarisation de l'onde complémentaire est parallèle à celle de l'onde de pompe. Par exemple, l'onde de pompe et l'onde complémentaire sont polarisées suivant l'axe ordinaire et l'onde signal suivant l'axe extraordinaire.

## 5. Angle de walk-off

L'angle de walk-off  $\mathbf{r}$  est dû à la biréfringence du cristal, qui provoque un phénomène de double réfraction. Ainsi, les vecteurs de Poynting  $\mathbf{S}$  et de propagation  $\mathbf{k}$  ne sont plus parallèles (Figure III-4). Ils divergent, en effet, l'un par rapport à l'autre lors de la propagation dans le cristal. Cette divergence entre les deux vecteurs dépend de la longueur d'onde et de la polarisation. Ce phénomène sépare donc les vecteurs de Poynting de l'onde de pompe  $\mathbf{S}_p$ , de l'onde signal  $\mathbf{S}_s$  et de l'onde complémentaire  $\mathbf{S}_i$  tout au long de leur passage dans le milieu, tandis que leurs vecteurs de propagation resteront colinéaires. Cette double réfraction limite donc la longueur d'interaction entre ces ondes et rend le processus non linéaire moins efficace. Cependant, cet angle reste faible (quelques degrés).

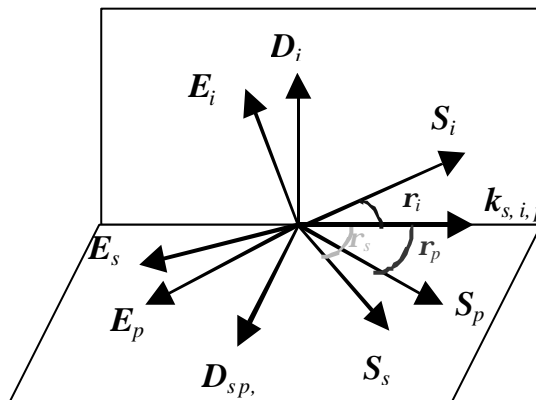


Figure III-4. Relation entre les directions de propagation et les directions des flux d'énergie : angle de walk-off, pour un OPO de type *Ila*.  $\mathbf{S}$  représente les vecteurs de Poynting.

Pour  $\mathbf{q}=90^\circ$  et  $\mathbf{j}=0^\circ$ , appelé accord de phase non critique (ou Non Critical Phase Matching), l'angle de «walk-off» est nul<sup>8</sup> et ainsi la divergence de l'onde de pompe n'a aucune incidence sur la divergence de l'onde signal et de l'onde complémentaire.

## 6. Acceptance spectrale et angulaire

### a) Acceptance spectrale

Le gain  $G$  (équation III-42) d'un cristal est satisfaisant pour  $\Delta k \leq 2\mathbf{P}/l$  où  $l$  est la longueur du cristal. Si la largeur spectrale du laser de pompe est grande, seule une partie de l'énergie vérifie la condition ci-dessus et le pompage est peu efficace. L'acceptance spectrale est alors<sup>9</sup> :

$$\text{III-56} \quad \Delta \mathbf{w}_p \leq \frac{2\mathbf{P}}{l} \left[ (n_p - n_i) + \mathbf{I}_i \left( \frac{\partial n_i}{\partial \mathbf{I}_i} \right) - \mathbf{I}_p \left( \frac{\partial n_p}{\partial \mathbf{I}_p} \right) \right]^{-1}$$

Cette équation est appropriée pour un oscillateur simplement résonant avec la fréquence de l'onde signal fixée par la cavité optique ( $\mathbf{D}\mathbf{w}=0$ ). Les indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde sont donnés par les équations de Sellmeier (équation III-54).

### b) Acceptance angulaire

Si la divergence du laser de pompe est grande, tous les rayons lumineux ne vont pas remplir les conditions d'accord de phase. Ainsi, pour un accord critique ( $\mathbf{q} \neq 90^\circ$ ) l'acceptance angulaire est<sup>10</sup> :

$$\text{III-57} \quad \Delta \mathbf{q}_p = \frac{1}{l} \left[ \frac{1}{\mathbf{I}_p} \left( \frac{\partial n_p}{\partial \mathbf{q}} \right)_{\mathbf{q}=\mathbf{q}_p} - \frac{n_p}{\mathbf{I}_p n_i} \left( \frac{\partial n_i}{\partial \mathbf{q}} \right)_{\mathbf{q}=\mathbf{q}_p} \right]^{-1}$$

Pour un accord non critique on a :

$$\text{III-58} \quad (\Delta \mathbf{q})^2 = \frac{4\mathbf{I}_p}{l n_p}$$

Notons que dans ce dernier cas, l'acceptance angulaire est bien plus grande que dans le cas d'un accord critique.

## D. Les différents cristaux utilisés

### 1. Choix des cristaux

Les cristaux non linéaires (en configuration OPO) doivent permettre l'extension du lidar aérosol dans l'infrarouge moyen. De plus ils sont aussi amenés à être utilisés comme source laser pour un lidar-DIAL, en vue de la détection de polluants atmosphériques (hydrocarbures, HF...) (Tableau III-2). Cette source laser doit donc être pulsée, accordable et d'énergie la plus élevée possible entre 2 et 4  $\mu\text{m}$ .

Espèces	Nbre d'onde (cm <sup>-1</sup> )	Longueur d'onde (μm)
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	2997	3,33
HCl	2926	3,42
HF	4201	2,38
CH <sub>4</sub>	2897	3,45
	2915	3,43
	2925	3,41
	2946	3,39
	3016	3,32
N <sub>2</sub> O	2806	3,56

Tableau III-2. Quelques polluants détectables entre 2 et 4 μm.

Les cristaux doivent ainsi répondre aux exigences suivantes :

Les courbes d'accord de phase en longueur d'onde doivent permettre de générer une onde signal et une onde complémentaire sur un domaine le plus large possible, entre 2 et 4 μm, pour un pompage avec un laser Ti:Sa.

Le domaine de transparence doit s'étendre dans l'infrarouge, afin de pouvoir transmettre les longueurs d'ondes générées.

Le  $d_{eff}$  et la tenue au flux doivent être les plus élevés possible pour avoir une meilleure efficacité d'une part, et pouvoir pomper de façon plus intense d'autre part.

Enfin, les acceptances spectrales et angulaires doivent être les plus proches possibles de celles du laser de pompe afin que toute la puissance de ce dernier puisse être utilisée.

Seuls trois cristaux remplissent ces différents critères. Ce sont les cristaux de KTiOPO<sub>4</sub> (KTP), de KTiAsO<sub>4</sub> (KTA) et de KNbO<sub>3</sub>, dont les propriétés sont décrites dans les paragraphes suivants. De plus, l'annexe B présente la dépendance en longueur d'onde et en température de l'indice de réfraction pour les trois cristaux et l'annexe C contient les susceptibilités d'ordre deux de ces mêmes cristaux.

## 2. Le KTP (KTiOPO<sub>4</sub>)

### a) Structure et croissance cristalline

Le KTP est un cristal bi-axe négatif, orthorhombique, qui appartient au groupe ponctuel  $mm2$ . Les dimensions de sa maille principale sont les suivantes :

$$a=12,82 \text{ \AA} \quad b=6,40 \text{ \AA} \quad c=10,59 \text{ \AA}$$

La structure est caractérisée par des chaînes d'octaèdres  $TiO_6$ , qui sont liés en deux points, et ces chaînes sont séparées par des tétraèdres  $PO_4$ .

Deux techniques de croissances peuvent être utilisées pour ce cristal. La première est la croissance hydrothermale qui consiste à sceller un gemme et les différents composants dans un tube en or, et à insérer ce tube dans un autoclave à haute pression et haute température. La croissance s'effectue à pression et température constantes, avec un gradient de température fixe entre le gemme et les composants.

La deuxième méthode est une croissance par flux, qui s'effectue à haute température mais à la pression atmosphérique, ce qui est un avantage important par rapport à la technique

précédente. C'est cette dernière méthode qui est utilisée dans le cadre du programme NOCTILS par la société Cristal Laser<sup>11</sup>. Des boules de plus de 800 g ont ainsi été obtenues.

### b) Propriétés physiques et mécaniques<sup>12</sup>

Le cristal de KTP a les propriétés suivantes :

- Densité volumique :  $3,03 \text{ g.cm}^{-3}$ .
- Conductivité thermique :  $K_X = 2.10^{-2} \text{ W.cm}^{-1}.\text{C}^{-1}$ ,  $K_Y = 3.10^{-2} \text{ W.cm}^{-1}.\text{C}^{-1}$ ,  $K_Z = 3,3.10^{-2} \text{ W.cm}^{-1}.\text{C}^{-1}$ .
- Acceptance en température :  $25^\circ\text{C.cm}^{-1}$ .
- Température de fusion :  $1180^\circ\text{C} \pm 10^\circ\text{C}$ .
- Température de transition ferroélectrique :  $920^\circ\text{C} \pm 40^\circ\text{C}$ .
- Dureté: 5 (critère de Mohs).
- Seuil de dommage :  $3 \text{ GW.cm}^{-2}$  @1064 nm, 10 Hz, 3 ns.

Ce cristal est mécaniquement robuste, chimiquement inerte et n'est pas hygroscopique. Il peut donc être utilisé en atmosphère ambiante et ne nécessite pas de protection particulière.

Sa large acceptance en température est particulièrement avantageuse pour maintenir la stabilité énergétique des fréquences créées. Son haut seuil de dommage et des propriétés thermiques relativement bonnes permettent le pompage par un flux important.

### c) Domaine de transmission

Le domaine de transmission total du KTP s'étend de 350 nm à  $4,5 \mu\text{m}$ . En fait, la transmission est supérieure à 90% entre 700 nm et  $2,7 \mu\text{m}$ . Mais après  $3 \mu\text{m}$ , elle chute (Figure III-5), et ne permet pas de générer efficacement des longueurs d'onde au-dessus de cette valeur. De plus, une bande d'absorption vers  $2,8 \mu\text{m}$ , correspondant à la bande d'étirement O-H, limite l'efficacité de la génération dans cette région.

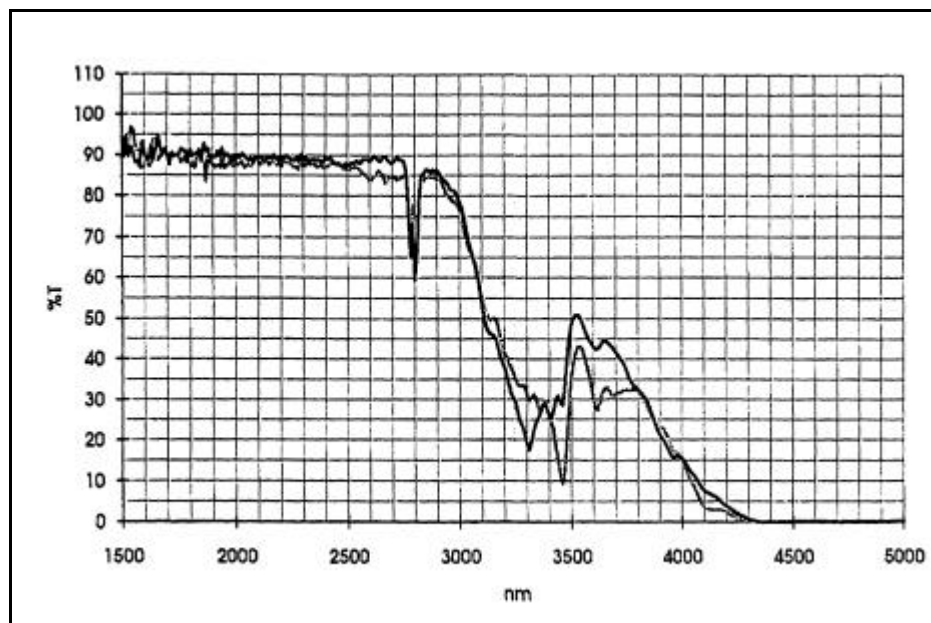


Figure III-5. Courbe de transmission d'un cristal de KTP<sup>14</sup>.



### 3. Le $KTiAsO_4$ (KTA)

Le KTA est un isomorphe du KTP et appartient au même groupe ponctuel orthorhombique  $mm2$ . La croissance du KTA s'effectue en utilisant les mêmes procédés que pour le KTP. Les dimensions de sa maille principale sont les suivantes :

$$a=13,12 \text{ \AA} \quad b=6,56 \text{ \AA} \quad c=10,79 \text{ \AA}$$

Cependant, ce cristal a plus facilement des domaines ferroélectriques que le KTP. Ceci entraîne une légère dépolarisation de la lumière, d'où une dépendance de l'efficacité de la génération paramétrique en fonction de la zone où elle se produit.

#### a) Propriétés physiques et mécaniques

Le cristal de KTA a les propriétés suivantes :

- Densité volumique<sup>13</sup> :  $3,45 \text{ g/cm}^3$ .
- Conductivité thermique :  $K_X = 1,8 \cdot 10^{-2} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{C}^{-1}$ ,  $K_Y = 1,9 \cdot 10^{-2} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{C}^{-1}$ ,  $K_Z = 2,1 \cdot 10^{-2} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{C}^{-1}$ .
- Température de fusion<sup>23</sup> :  $1130^\circ\text{C}$ .
- Température de transition ferroélectrique<sup>23</sup> :  $880^\circ\text{C}$ .
- Seuil de dommage :  $10 \text{ GW.cm}^{-2}$  @  $1064 \text{ nm}$ ,  $10 \text{ Hz}$ ,  $10 \text{ ns}$ .

Ce cristal a des propriétés physiques et mécaniques proches de celles du KTP, notamment un seuil de dommage comparable. Il est aussi chimiquement stable et non hygroscopique et peut donc être utilisé sans problème en atmosphère ambiante.

#### b) Domaine de transmission

Le domaine de transmission du KTA dans l'infrarouge est un des grands avantages de ce cristal par rapport au KTP. Sur la Figure III-6 ce domaine de transmission s'étend à plus de  $5 \mu\text{m}$  alors que celui du KTP s'arrête à  $4,5 \mu\text{m}$ . Les pertes par absorption entre  $3$  et  $4 \mu\text{m}$  sont donc beaucoup moins importantes que pour le KTP puisqu'elles sont inférieures à  $5\%/cm$  @  $3475 \text{ nm}$  (avec un traitement anti-reflet), contre  $40\%/cm$  @  $3292 \text{ nm}$  pour le KTP. Le domaine de transmission du KTA convient donc parfaitement à notre application, par contre, atteindre le seuil d'oscillation du KTP entre  $3$  et  $3,5 \mu\text{m}$  est pratiquement impossible.

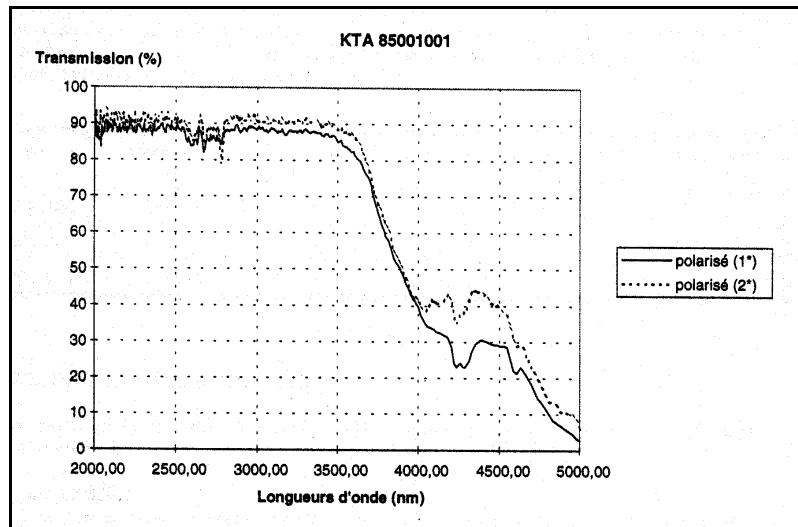


Figure III-6. Transmission du KTA pour les polarisations  $s$  et  $p$ <sup>14</sup>.

#### 4. Le niobate de potassium : $\text{KNbO}_3$

##### a) Structure et propriétés physiques et mécaniques

Le  $\text{KNbO}_3$  est un cristal biaxial négatif, orthorhombique, de groupe de symétrie ponctuel  $mm2$ . Sa maille cristalline principale a les dimensions suivantes<sup>15</sup> :

$$a=5,6896 \text{ \AA} \quad b=3,9692 \text{ \AA} \quad c=5,7256 \text{ \AA}$$

Pour fabriquer ce cristal, les mêmes techniques de croissance par flux que les cristaux précédents sont utilisées. Cependant, les boules obtenues sont nettement moins grosses que pour le KTP, puisqu'elles ne dépassent pas 250 g contre 800 g pour le KTP<sup>14</sup>. La difficulté majeure rencontrée lors de la croissance du  $\text{KNbO}_3$  se situe au moment du refroidissement du cristal de sa température de croissance (1040 °C), jusqu'à température ambiante. En effet, le cristal traverse deux transitions de phases ferroélectriques (à 420 °C et 220 °C) et il est très difficile d'éviter les domaines ferroélectriques lors du refroidissement. Ces domaines et les impuretés augmentent l'absorption optique résiduelle.

Le cristal de  $\text{KNbO}_3$  a les propriétés suivantes :

- Densité volumique : 4,62 g/cm<sup>3</sup>.
- Températures de transition de phase ferroélectrique : 220 °C, 420 °C.
- Dureté : 5 (Mohs).
- Seuil de dommage<sup>19</sup> : 2 GW/cm<sup>2</sup> @1064 nm, 10 Hz, 3 ns.

Ce cristal est mécaniquement robuste, chimiquement stable et hydrophobe.

##### b) Domaine de transmission

La transmission totale du  $\text{KNbO}_3$  s'étend de 400 nm à plus de 5  $\mu\text{m}$ . Dans l'infrarouge moyen, la transmission est de 75% jusqu'à 4  $\mu\text{m}$  (Figure III-7), excepté près de la bande d'absorption due à la liaison  $O-H$  (vers 2,8  $\mu\text{m}$ ) où elle est alors de 30% pour la polarisation

dans le plan  $bc$  et de 60% pour la polarisation parallèle à l'axe  $a$ . Un pic d'absorption est aussi présent vers  $4,3 \mu\text{m}$ , et la transmission est alors de 40% pour la première polarisation et de 35% pour la seconde. Enfin, la transmission résiduelle vers  $5 \mu\text{m}$  est encore, respectivement, de 20% et 10%.

La transmission de ce cristal est encore meilleure que celle du KTA entre  $3,5 \mu\text{m}$  et  $5 \mu\text{m}$ , puisqu'elle commence à baisser au-dessus de  $4 \mu\text{m}$ , contre  $3,5 \mu\text{m}$  pour le KTA.

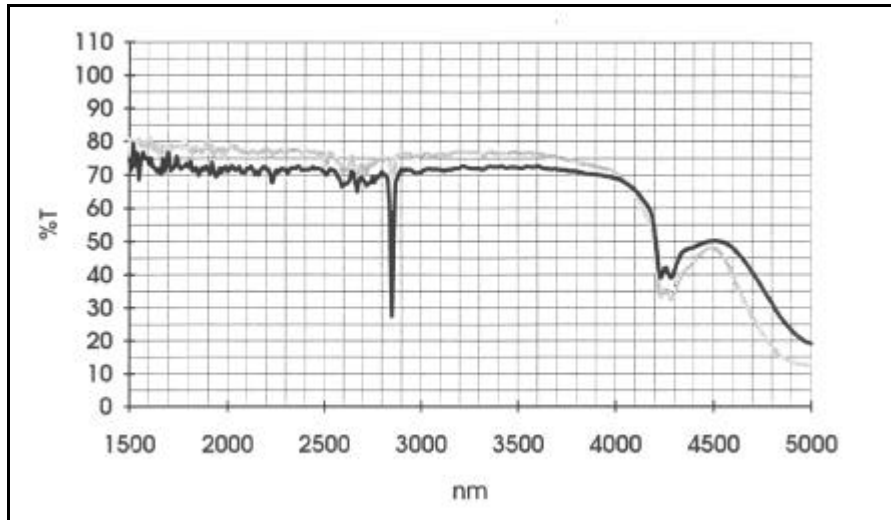


Figure III-7. Transmission d'un cristal de  $\text{KNbO}_3$  (12 mm) sans traitements<sup>14</sup> (courbe noire : polarisation dans le plan  $bc$ , courbe grise : polarisation parallèle à l'axe  $a$ ).

### 5. Dispersion en longueur d'onde de l'indice de réfraction

Comme il l'a été mentionné précédemment (§I.C.2), la dépendance des indices de réfractances en fonction de la longueur d'onde est donnée par des équations empiriques de type équations de Sellmeier. Les indices de réfraction sont calculés pour l'onde de pompe, l'onde signal et l'onde complémentaire à partir des équations de Sellmeier en utilisant un ensemble de coefficients donné. Les courbes d'accord de phase théoriques sont ensuite déterminées en recherchant, pour chaque longueur d'onde de pompe, le couple de longueurs d'onde (signal et complémentaire) qui vérifie les équations d'accord de phase (III-51 et III-53). Les équations de Sellmeier sont présentées dans l'annexe A pour les cristaux de KTP, KTA et  $\text{KNbO}_3$ . Leurs coefficients sont calculés pour reproduire au mieux, pour chaque type de cristal, les courbes d'accord de phase mesurées expérimentalement. Il existe ainsi plusieurs ensembles de coefficients.

Deux ensembles de coefficients ont été comparés pour un cristal de KTP coupé à  $\mathbf{q}=52,33^\circ$ ,  $\mathbf{j}=0^\circ$  et un cristal coupé à  $\mathbf{q}=50,68^\circ$ ,  $\mathbf{j}=0^\circ$ . La courbe d'accord de phase obtenue expérimentalement pour le cristal coupé à  $\mathbf{q}=52,33^\circ$ , (Figure III-8) est bien reproduite par les coefficients de Kato<sup>16</sup> pour un angle  $\mathbf{q}=53,1^\circ$  et par les coefficients de Bierlein<sup>17</sup> pour un angle  $\mathbf{q}=52,6^\circ$ . De même, la courbe expérimentale pour le cristal coupé à  $\mathbf{q}=50,68^\circ$  (Figure III-9), est bien reproduite par les coefficients de Kato pour un angle  $\mathbf{q}=51,5^\circ$  et par les coefficients de Bierlein pour un angle  $\mathbf{q}=50,95^\circ$ . Sachant que la précision sur l'orientation du cristal est de  $\pm 0,5^\circ$ , les angles obtenus avec les coefficients de Bierlein sont supérieurs de  $0,3^\circ$  à l'angle de coupe et sont donc dans la marge d'erreur de l'orientation, alors que les angles obtenus avec les coefficients de Kato sont supérieurs de  $0,8^\circ$  à l'angle de coupe et ne sont

donc plus dans cette marge. Ainsi, les coefficients de Bierlein reproduisent mieux nos courbes d'accord de phase.

Pour les cristaux de KTA et de  $\text{KNbO}_3$ , les équations de Sellmeier calculées respectivement par Fenimore *et al.*<sup>18</sup> et par Zysset *et al.*<sup>15</sup>, et présentées en annexe B, seront utilisées.

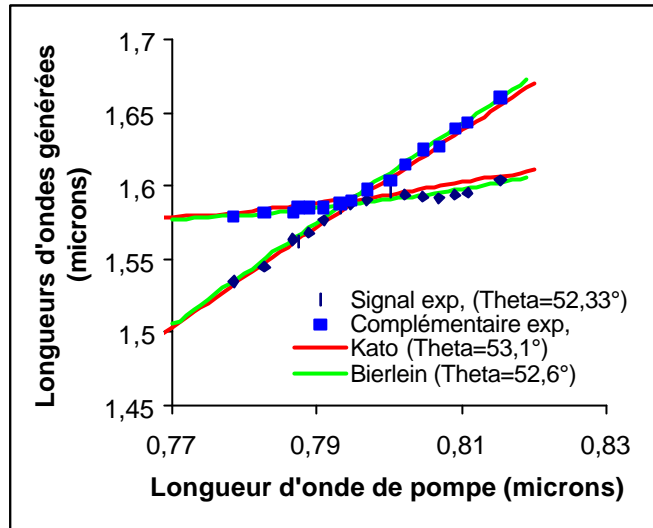


Figure III-8. Courbe d'accord de phase en longueur d'onde pour un KTP coupé à  $\theta=52,33^\circ$ ,  $\varphi=0^\circ$ .

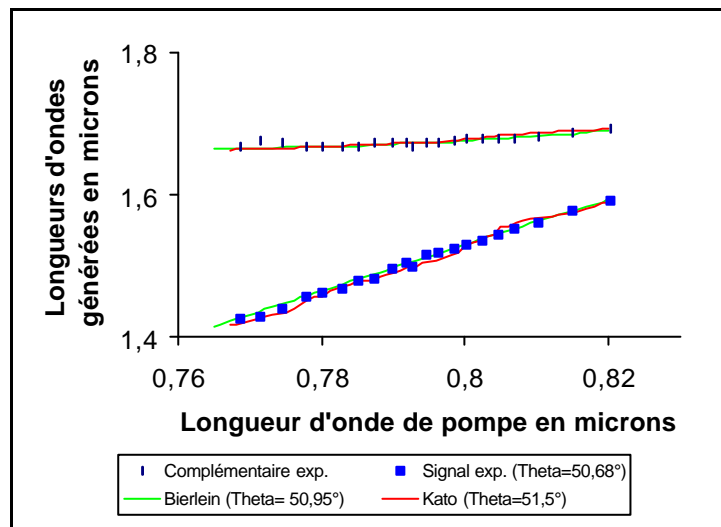


Figure III-9. Courbe d'accord de phase en longueur d'onde pour un KTP coupé à  $\theta=50,68^\circ$ ,  $\varphi=0^\circ$ .

## II. Dispositif expérimental et résultats

Les oscillateurs paramétriques testés sont tous pompés par le laser Ti:Sa décrit au chapitre II (§ II-A) et utilisé dans le système lidar. Ce laser accordable (700-900 nm) permet un accord de phase en longueur d'onde et non en angle. Avec ce choix original, la plage d'accordabilité directe (un seul angle de coupe) de l'onde signal et de l'onde complémentaire est beaucoup plus importante. De plus, l'utilisation d'OPO monolithiques devient alors possible. Les

meilleurs résultats obtenus pour chaque cristaux testés (plus de 40) sont résumés dans l'annexe D.

## A. La cavité paramétrique optique

Pour nos expériences, une cavité simplement résonante pour l'onde signal est utilisée. Elle est composée de deux miroirs  $M_1$  et  $M_2$ , montés sur des tables micrométriques afin de pouvoir ajuster la longueur de la cavité en fonction de la longueur du cristal. Le cristal est placé sur un support orientable en  $\mathbf{q}$  et en  $\mathbf{j}$ , afin d'optimiser son angle par rapport au faisceau de pompe. Même si les revêtements réfléchissants des deux miroirs dépendent du type de cristal utilisé, ils ont des caractéristiques communes. En effet, ces deux miroirs sont plans d'où une utilisation totale du volume du cristal non linéaire à l'intérieur de la cavité. Ce type de cavité est cependant sensible à l'alignement. Les deux miroirs ont un traitement anti-reflet entre 700 et 900 nm (haute transmission de l'onde de pompe). Le miroir de sortie doit également être transparent pour l'onde complémentaire et posséder un traitement haute transmission pour cette dernière. Lorsque l'onde complémentaire est supérieure à 2,8  $\mu\text{m}$ , les substrats en BK7 ne peuvent plus être utilisés car l'absorption est alors trop importante. Des substrats en YAG non dopé ont été fabriqués par FEE<sup>19</sup> spécialement dans ce but. Les traitements du miroir diélectrique sur ce substrat présentent l'avantage d'avoir une très bonne tenue au flux, ce qui n'est pas le cas lorsqu'ils sont déposés sur un substrat en  $\text{CaF}_2$ .

## B. Le KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ )

### 1. Accord de phase non critique ( $\mathbf{q} = 90^\circ, \mathbf{j} = 0^\circ$ )

C'est dans cette configuration et pour le type II que le  $d_{\text{eff}}$  est le plus important et donc que l'énergie de sortie est susceptible d'être la plus grande. Le logiciel de calcul pour les cristaux non linéaires SNLO<sup>20</sup> permet d'avoir une idée de la valeur des différents paramètres pour cette orientation du cristal:

- Angle de walkoff :  $\mathbf{r} = 0$  mrad pour l'onde signal, l'onde complémentaire et l'onde de pompe.
- Acceptance angulaire pour l'onde de pompe :  $D\mathbf{q}_p = 95,57$  mrad.cm (§ I.C.6.b)).
- $d_{\text{eff}} = -3,30$  pm/V.
- Acceptance spectrale de l'OPO :  $Dn_s = -Dn_i = 11,71$   $\text{cm}^{-1} \cdot \text{cm}$ . (pour une longueur d'onde de pompe fixe).
- Acceptance angulaire de l'OPO :  $D\mathbf{q}_s = 95,57$  mrad.cm,  $D\mathbf{q}_i = 41,75$  mrad.cm.

Les acceptances angulaires de l'OPO sont calculées par SNLO avec les formules suivantes (en considérant l'onde de pompe comme une onde plane, avec un angle fixe) :

$$\text{III-59} \quad \Delta\mathbf{q}_s = 0,1 \cdot \frac{\mathbf{I}_s \cdot (\mathbf{r}_s - \mathbf{r}_i)}{n_s} \quad \Delta\mathbf{q}_i = 0,1 \cdot \frac{\mathbf{I}_i \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_s)}{n_i} \quad \text{avec } \mathbf{I}_s \text{ et } \mathbf{I}_i \text{ en nm.}$$

Cette configuration d'accord de phase non critique possède deux autres avantages : les angles de walkoff sont nuls et les acceptances angulaires sont importantes.

Une onde de pompe à 800 nm, permet d'obtenir une onde signal à 1,154  $\mu\text{m}$  et une onde complémentaire à 2,677  $\mu\text{m}$ . L'onde de pompe et l'onde signal sont polarisés suivant l'axe ordinaire et l'onde complémentaire suivant l'axe extraordinaire. La configuration est donc de type *Ila*.

### a) Influence de la longueur effective de la cavité résonante

Soit  $L_{eff}$  la longueur effective de la cavité avec :  $L_{eff} = L_{cristal} * n_{cristal} + (L_{cavité} - L_{cristal}) * n_{air}$ . (ici  $L_{eff}$  varie entre 36 mm et 47 mm). La Figure III-10 montre l'augmentation de l'efficacité de conversion avec  $1/L_{eff}^2$ . Plus la longueur de la cavité est proche de celle du cristal plus l'efficacité de conversion est importante. De plus, d'après la Figure III-11, le seuil d'oscillation diminue lorsque  $1/L_{eff}^2$  augmente comme le prévoit la théorie (équation III-47) ; ce qui signifie que plus la longueur de la cavité est proche de celle du cristal et plus le seuil des oscillations est bas. L'énergie de sortie peut ainsi être maximisée, en diminuant la longueur de la cavité.

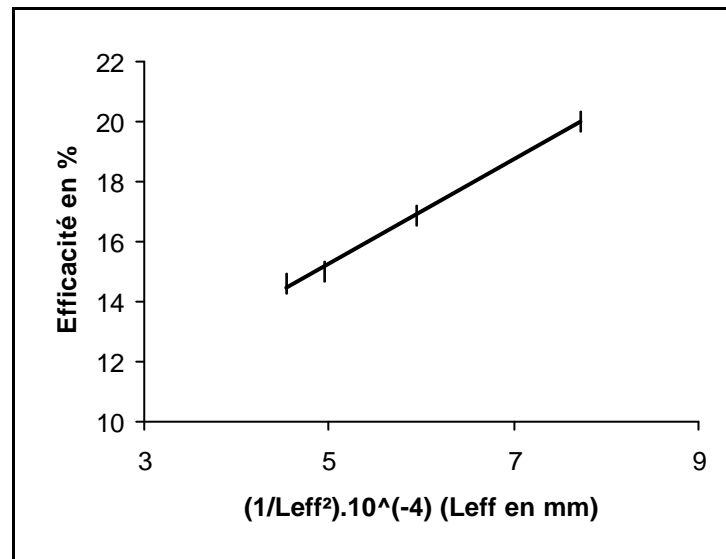


Figure III-10. Dépendance de l'efficacité de l'onde signal en fonction de la longueur effective de la cavité.

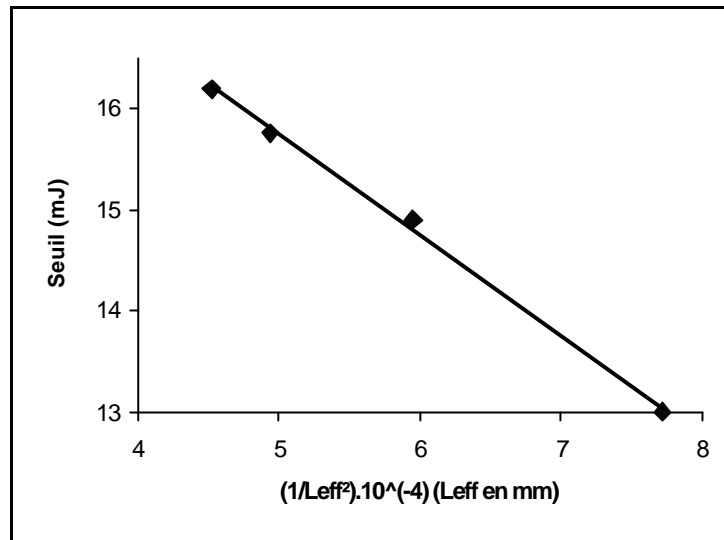


Figure III-11. Dépendance du seuil d'oscillation en fonction de la longueur effective de la cavité.

### b) OPO monolithiques et semi-monolithiques

Pour obtenir la longueur de cavité la plus courte possible, donc maximiser l'efficacité de conversion, le revêtement réfléchissant des miroirs a été déposé directement sur une ou sur les deux faces du cristal. Ces cristaux sont alors appelés cristaux semi-monolithiques si un seul revêtement a été déposé et monolithiques si un revêtement est déposé sur les deux faces du cristal (Figure III-12). Les revêtements sont les suivants :

- Face d'entrée : HT @ 700-900 nm, HR @ 1100-1300 nm
- Face de sortie : HT @ 700-900 nm et 2000-3000 nm, R=90% @ 1100-1300 nm.

L'efficacité de conversion pour les trois types de cavité a ainsi pu être testé (Figure III-13) et ce pour un cristal de même longueur ( $l = 20$  mm). Les efficacités de conversion, définies par l'équation III-48, sont respectivement de 14,1% pour la cavité standard, de 20,6% pour l'OPO semi-monolithique et de 34% pour l'OPO monolithique. Pour ce dernier l'efficacité obtenue est vraiment très bonne et permet de générer une énergie qui peut atteindre 22 mJ pour l'onde signal et l'onde complémentaire et ce pour une énergie de l'onde de pompe de 73 mJ. Pour cette même énergie de l'onde de pompe, l'OPO semi-monolithique génère 13 mJ et l'OPO standard 10 mJ. Ces énergies sont moins importantes mais restent tout de même correctes grâce à la grande longueur du cristal (20 mm). Enfin, dans les trois cas, les seuils d'oscillations sont bas puisqu'ils sont tous inférieurs à 5 MW/cm<sup>2</sup>. Il est cependant très difficile de mesurer les seuils (surtout lorsqu'ils sont bas) à cause des fluctuations du laser en mode et en énergie. Pour cette raison les différences obtenues ici pour les seuils ne sont pas vraiment interprétables.

L'utilisation d'OPO monolithiques à la place de cavités standards a donc plusieurs avantages importants : l'efficacité de conversion, donc l'énergie générée sont augmentés ; l'alignement est facilité par l'absence de miroirs à régler. Jusqu'à présent, les OPO monolithiques n'ont pu être utilisés que pour le cristal de KTP en configuration d'accord de phase non critique et non pour des KTA ou des KNbO<sub>3</sub>.

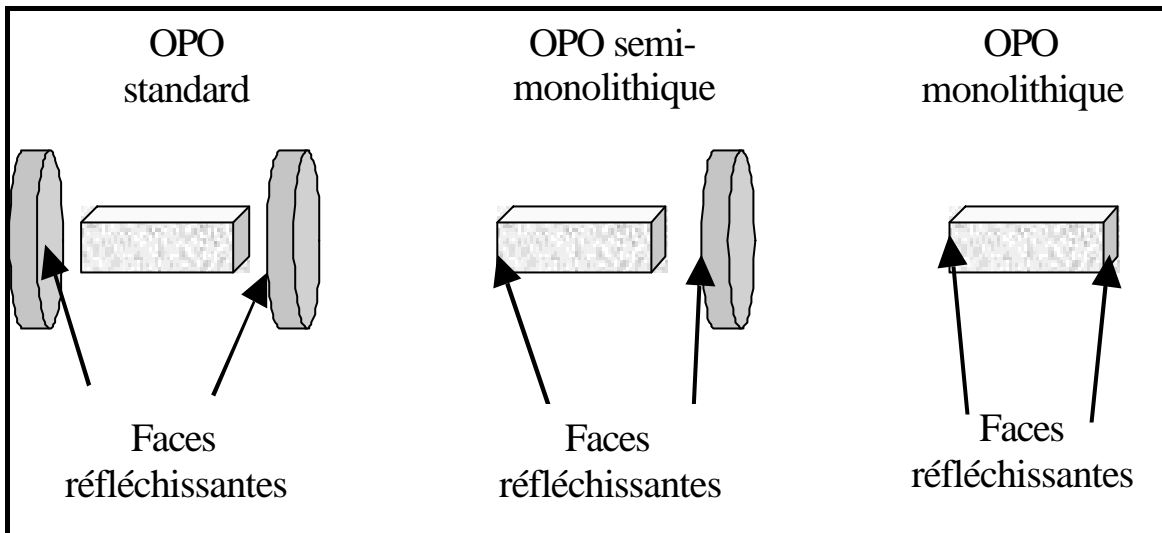


Figure III-12. Les différents types de cavités OPO linéaires.

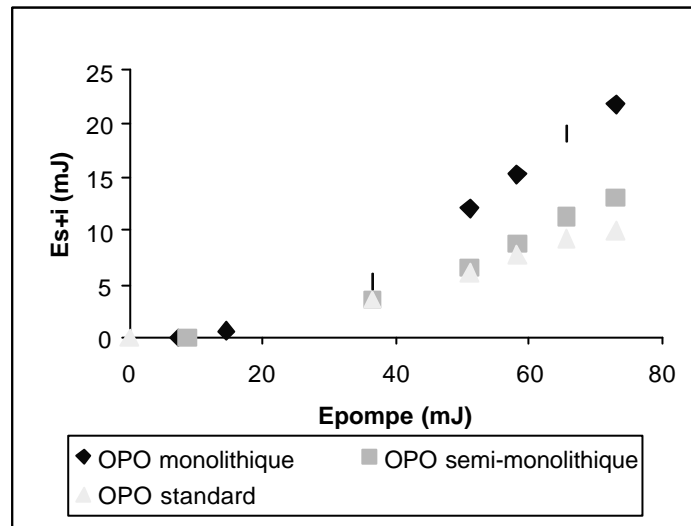


Figure III-13. Comparaison de l'énergie de sortie pour les différents types de cavités OPO.

### c) Courbes d'accord de phase

Lorsque la longueur d'onde de pompe est balayée entre 700 et 900 nm (Figure III-14), des longueurs d'ondes sont générées, en théorie, entre 1065 nm et 1290 nm pour l'onde signal et entre 2300 nm et 2970 nm pour l'onde complémentaire. L'onde complémentaire permet ainsi de se placer dans une bande de l'atmosphère où la transmission atteint 80% @ 2,3  $\mu\text{m}^{21}$ . Cette extinction plus faible de l'atmosphère permet une meilleure détection des aérosols ainsi qu'une augmentation de la portée de détection. De plus, à ces longueurs d'onde quelques polluants sont déjà accessibles comme HF à 2,38  $\mu\text{m}$ . Cependant, l'atmosphère a une transmission encore meilleure entre 3,4 et 4  $\mu\text{m}$  ( $T > 90\%$ ) et une grande partie des polluants accessibles dans l'infrarouge (et notamment les hydrocarbures) ont leurs bandes d'absorption comprises entre 3 et 4  $\mu\text{m}$  (Tableau III-2). Pour atteindre ces longueurs d'onde, les cristaux de KTP doivent être taillés à des angles proches de  $q = 41^\circ$ .



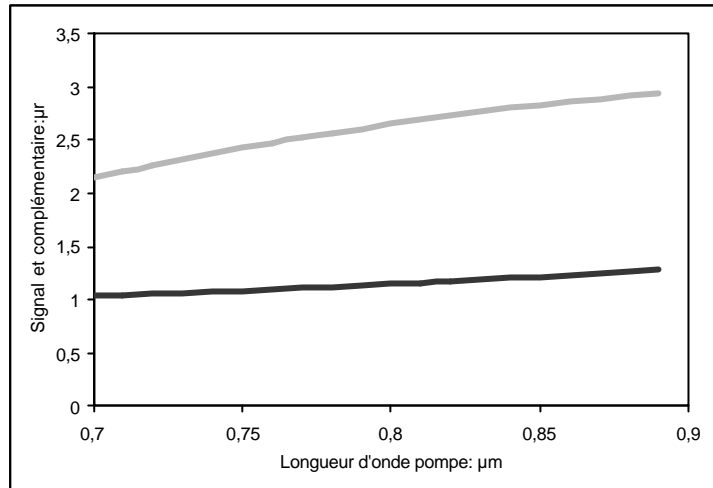


Figure III-14. Courbes d'accord de phase du KTP NCPM ( $\theta = 90^\circ$ ,  $\varphi = 0^\circ$ ).

## 2. Génération de longueurs d'ondes supérieures à 3 mm avec un KTP ( $\mathbf{q} = 41^\circ$ , $\mathbf{j} = 0^\circ$ )

Dans cette orientation, SNLO donne les valeurs suivantes :

- Angles de walkoff :  $\mathbf{r}_p = \mathbf{r}_i = 0$  mrad,  $\mathbf{r}_s = 49,21$  mrad.
- Acceptance angulaire pour l'onde de pompe :  $\mathbf{Dq}_p = 1,20$  mrad.cm (§ I.C.6.b)).
- $d_{eff} = -2,04$  pm/V.
- Acceptance spectrale de l'OPO :  $\mathbf{Dn}_s = -\mathbf{Dn}_i = 44,16$  cm<sup>-1</sup>.cm.
- Acceptance angulaire de l'OPO :  $\mathbf{Dq}_s = 4,03$  mrad.cm,  $\mathbf{Dq}_i = 1,20$  mrad.cm.

Pour cette configuration d'accord de phase, l'angle de walkoff est important pour l'onde signal ce qui diminue d'autant l'efficacité de conversion. De plus, les acceptances angulaires sont beaucoup plus petites qu'en configuration non critique.

Pour une onde de pompe à 800 nm, l'onde signal est à 1,049 μm et l'onde complémentaire à 3,367 μm. L'onde de pompe et l'onde complémentaire sont polarisés suivant l'axe ordinaire et l'onde signal suivant l'axe extraordinaire. La configuration est donc de type *Iib*.

### a) Courbes d'accord de phase

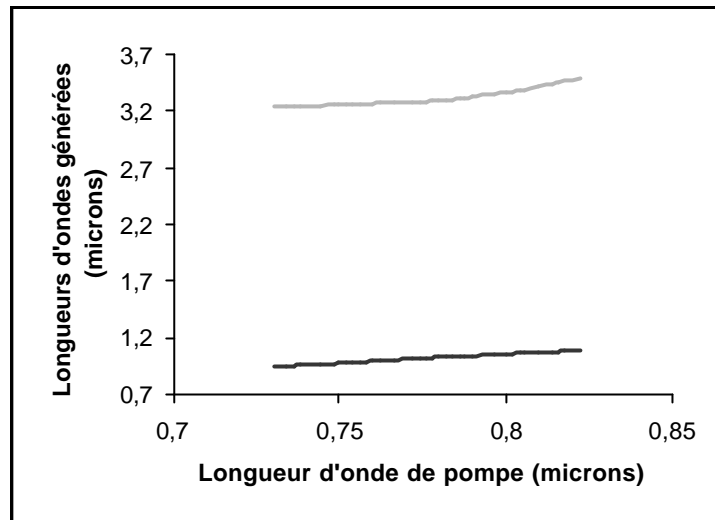


Figure III-15. Courbes d'accord de phase en longueur d'onde pour un KTP coupé à ( $\theta=41^\circ$ ,  $\phi=0^\circ$ ).

Pour un cristal coupé à  $\mathbf{q} = 41^\circ$ ,  $\mathbf{j} = 0^\circ$ , lorsque la longueur d'onde de pompe varie entre 730 et 820 nm, l'onde signal est générée entre 942 et 1075 nm et l'onde complémentaire entre 3,24  $\mu\text{m}$  et 3,49  $\mu\text{m}$  (Figure III-15). Ces courbes d'accord de phase sont relativement plates, d'où la nécessité d'avoir une grande variation de la longueur d'onde de pompe pour obtenir un changement conséquent de la longueur d'onde de la complémentaire. Ceci est un point important car le maximum d'énergie du laser de pompe se situant vers 790 nm, lorsque l'on s'éloigne de quelques dizaines de nanomètres de cette valeur, l'énergie de pompe disponible est moins importante. De plus, le  $d_{\text{eff}}$  est égal à -2,04 pm/V pour  $\mathbf{q} = 41^\circ$ ,  $\mathbf{j} = 0^\circ$  alors qu'il est de -3,3 pm/V en configuration NCPM. Tout ceci concourt à avoir une efficacité de conversion et une énergie de sortie plus faibles.

### b) Energie et efficacité de conversion

Deux cristaux de KTP, avec leurs deux faces traités anti-reflet (@ 750-850 nm et 970-1170 nm), ont été testés. La cavité a les caractéristiques suivantes :

- miroir d'entrée : HR @ 970-1170 nm et HT @ 750-850 nm (substrat en BK7).
- miroir de sortie : R=90% @ 975-1175 nm et HT @ 750-850 nm et 3-5  $\mu\text{m}$  (substrat en YAG non dopé).

Ces deux cristaux ont un seuil d'oscillation au minimum deux fois plus élevé ( $\sim 20 \text{ MW/cm}^2$ ), à longueurs égales, que les cristaux en configuration NCPM. Dans le plus favorable des deux cas, l'énergie moyenne totale atteint 4,4 mJ, pour une onde de pompe à 800 nm. Cette énergie provient essentiellement de l'onde signal car le KTP absorbe en grande partie l'onde complémentaire générée (absorption = 40%/cm @ 3292 nm). L'efficacité totale de conversion est alors de 20,8% (Figure III-16). Mais seules quelques centaines de  $\mu\text{J}$  @ 3,37  $\mu\text{m}$  peuvent être générées à cause de l'absorption du cristal à ces longueurs d'ondes. Pour remédier à ce problème on utilise des cristaux de KTA qui ont un domaine de transparence plus étendu dans l'infrarouge.

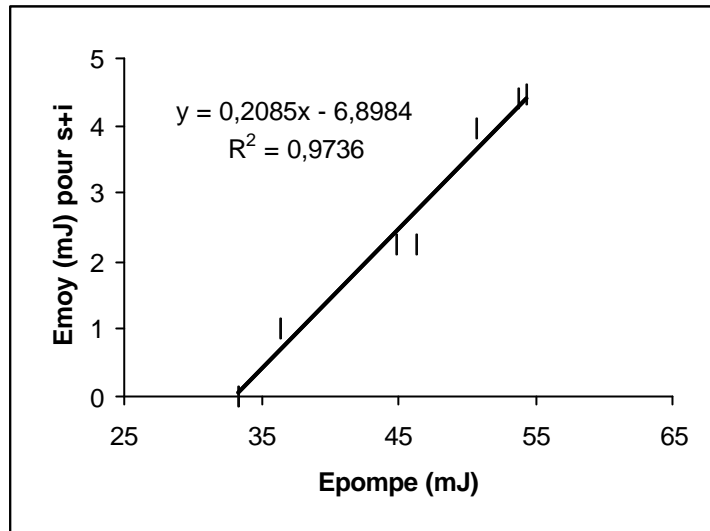


Figure III-16. Energie moyenne totale générée en fonction de l'énergie de l'onde de pompe pour un KTP à  $\theta = 41^\circ$ ,  $\phi = 0^\circ$ .

### 3. Conclusion

Les cristaux de KTP permettent de générer des longueurs d'ondes jusqu'à  $3 \mu\text{m}$  avec une très bonne efficacité de conversion et une énergie importante, notamment en utilisant des cristaux monolithiques NCPM. Ces OPO monolithiques sont très simples d'emploi avec l'absence des miroirs de la cavité à régler. De plus, le KTP a un haut seuil de dommage.

Au-dessus de  $3 \mu\text{m}$  l'énergie générée est faible, à cause de l'absorption du cristal à ces longueurs d'ondes. Mais, il est envisageable de réaliser des KTP monolithiques pour ces longueurs d'onde et ainsi d'augmenter l'énergie de l'onde complémentaire.

Cependant, un autre cristal possède les mêmes propriétés que le KTP mais avec une transmission plus importante dans l'infrarouge moyen : c'est le KTA.

## C. Le $\text{KTiAsO}_4$ (KTA)

### 1. Accord de phase non critique ( $\mathbf{q} = 90^\circ$ , $\mathbf{j} = 0^\circ$ )

Comme le cristal de KTA est un cristal nouveau et encore peu connu, il était intéressant de comparer ses performances avec celles du KTP, qui est un cristal isomorphe du KTA mais mieux étudié. Pour cela, une orientation non critique qui offre les mêmes avantages que pour le KTP est choisie. Dans cette orientation, SNLO donne les valeurs suivantes :

- Angles de walkoff :  $\mathbf{r}_p = \mathbf{r}_i = \mathbf{r}_s = 0 \text{ mrad}$ .
- $d_{eff} = -3,17 \text{ pm/V}$ .
- Acceptance spectrale de l'OPO :  $\mathbf{Dn}_s = -\mathbf{Dn}_i = 14,26 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{cm}$ .
- Acceptance angulaire de l'OPO :  $\mathbf{Dq}_s = 2080,76 \text{ mrad} \cdot \text{cm}$ ,  $\mathbf{Dq}_i = 918,82 \text{ mrad} \cdot \text{cm}$ .

Le  $d_{eff}$  est équivalent à celui du KTP, d'où une efficacité totale de conversion et des énergies proches, dans cette orientation, pour ces deux cristaux. Par contre, les acceptances angulaires du KTA sont beaucoup plus larges que celles du KTP, ce qui représente un avantage pour ce nouveau cristal.

Les longueurs d'ondes générées sont proches de celles du KTP, puisque l'on obtient 1144 nm pour l'onde signal du KTA et 2656 nm pour l'onde complémentaire contre 1141 nm et 2677 nm pour le KTP pour une onde de pompe à 800 nm. La configuration est de type *Ila*, avec l'onde signal et l'onde de pompe polarisés suivant l'axe ordinaire.

### a) Comparaison KTA/KTP

Deux cristaux de KTA et un cristal de KTP de même longueur ( $l = 10$  mm) ont été testés, tout les trois en configuration non critique et dans une cavité identique. Les énergies et les efficacités totales de conversion, représentées sur la Figure III-17, sont très proches. Les efficacités totales de conversion sont de 11,3% et 10% pour les deux KTA et de 8,3% pour le KTP. Il apparaît donc que les deux KTA sont légèrement plus efficaces que le KTP. Les énergies des KTA (10,6 mJ et 11,7 mJ) sont aussi plus élevées que celle obtenue avec le KTP (8,7 mJ) pour une énergie de l'onde de pompe identique de 111 mJ. Notons que les seuils d'oscillations sont très proches pour les trois cristaux et que leurs valeurs sont basses ( $< 6$  MW/cm<sup>2</sup>). Le KTA paraît donc un excellent candidat pour générer des longueurs d'onde entre 3 et 4  $\mu$ m grâce à des efficacités de conversion et des seuils d'oscillation comparables à ceux du KTP mais avec en plus une transmission beaucoup plus importante à ces longueurs d'ondes.

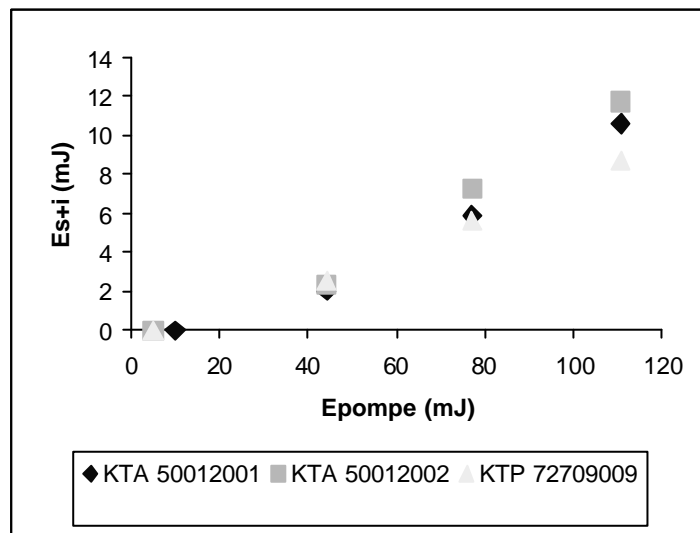


Figure III-17. Comparaison des énergies totales de sortie de deux KTA et d'un KTP de même longueur ( $l = 10$  mm) en configuration non critique.

### b) Accordabilité

Pour des longueurs d'ondes de pompe comprises entre 760 nm et 870 nm, l'onde signal est généré entre 1,085  $\mu$ m et 1,212  $\mu$ m et l'onde complémentaire entre 2,530  $\mu$ m et 3,046  $\mu$ m (Figure III-18). Donc, le KTA NCPM, comme le KTP NCPM, ne permettent pas d'atteindre des longueur d'ondes au-dessus de 3  $\mu$ m avec une énergie satisfaisante. Il faudrait, en effet, une onde de pompe à 870 nm et donc une énergie de pompe beaucoup plus faible. On utilise donc des cristaux de KTA coupés à  $\theta = 39^\circ$ ,  $\phi = 0^\circ$ , capables de générer des longueurs d'ondes entre 3  $\mu$ m et 4  $\mu$ m.

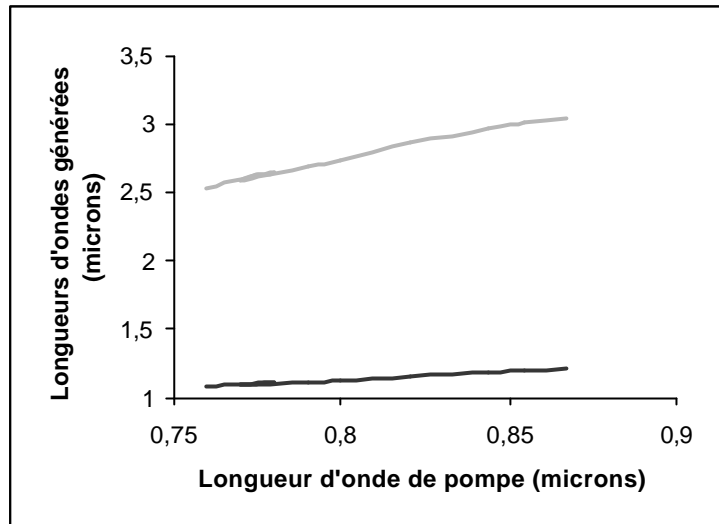


Figure III-18. Courbes d'accord de phase pour un KTA NCPM.

## 2. Génération de longueurs d'ondes supérieures à 3 mm

Ce cristal, coupé à  $\mathbf{q} = 39^\circ$  et  $\mathbf{j} = 0^\circ$ , permet de générer des longueurs d'ondes entre  $1,0 \mu\text{m}$  et  $1,12 \mu\text{m}$  pour l'onde signal et  $3,54 \mu\text{m}$  et  $3,67 \mu\text{m}$  pour l'onde complémentaire, lorsque la longueur d'onde de pompe varie entre  $780 \text{ nm}$  et  $860 \text{ nm}$  (Figure III-19). Dans cette orientation, SNLO donne les valeurs suivantes :

- Angles de walkoff :  $\mathbf{r}_p = \mathbf{r}_i = 0 \text{ mrad}$ ,  $\mathbf{r}_s = 42,16 \text{ mrad}$ .
- Acceptance angulaire pour onde de pompe :  $\mathbf{Dq}_p = 1,41 \text{ mrad.cm}$  (§ I.C.6.b)).
- $d_{\text{eff}} = -1,89 \text{ pm/V}$ .
- Acceptance spectrale de l'OPO :  $\mathbf{Dn}_s = -\mathbf{Dn}_i = 28,02 \text{ cm}^{-1}.\text{cm}$ .
- Acceptance angulaire de l'OPO :  $\mathbf{Dq}_s = 4,15 \text{ mrad.cm}$ ,  $\mathbf{Dq}_i = 1,41 \text{ mrad.cm}$ .

Le  $d_{\text{eff}}$  n'est pas très élevé dans cette configuration, et les acceptances angulaires sont faibles, mais ces paramètres restent néanmoins équivalents à ceux d'un KTP coupé à  $\mathbf{q} = 41^\circ$ ,  $\mathbf{j} = 0^\circ$ .

La cavité OPO utilisée a les caractéristiques suivantes :

- Miroir d'entrée (substrat  $\text{CaF}_2$ ): HT @  $730\text{-}800 \text{ nm}$  et  $1,75\text{-}4 \mu\text{m}$ , HR @  $880\text{-}1150 \text{ nm}$ .
- Miroir de sortie : HT @  $730\text{-}800 \text{ nm}$  et  $1,75\text{-}4 \mu\text{m}$ , R=90% @  $880\text{-}1150 \text{ nm}$ .

Trois KTA coupés à  $\mathbf{q} = 40,2^\circ$ ,  $\mathbf{j} = 0^\circ$  ont été testés sans succès : aucun effet d'oscillation paramétrique n'a été détecté. Mais un KTA avec une orientation à  $\mathbf{q} = 39^\circ$ ,  $\mathbf{j} = 0^\circ$  a fonctionné. Cependant, son seuil reste haut, puisqu'il est de  $39 \text{ MW/cm}^2$ . Ces résultats sont dus aux  $d_{\text{eff}}$  moins importants (facteur 1,7) que pour les cristaux en accord de phase non critique, d'où un seuil plus élevé d'un facteur 3. De plus, de nombreuses impuretés et domaines ferroélectriques ont été détectés dans les cristaux testés d'où une augmentation supplémentaire du seuil.

Le cristal de KTA étant plus récent que le KTP, sa technique de fabrication est moins aboutie. Cependant, à moyen terme, lorsque le KTA sera produit avec moins d'impuretés, ce cristal pourrait supplanter le KTP en raison de son plus large domaine de transmission dans l'infrarouge, tout en ayant les avantages du KTP.

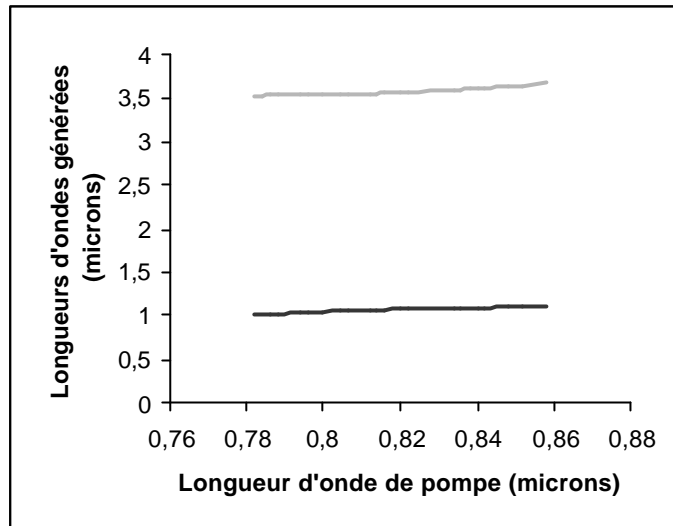


Figure III-19. Courbes d'accord de phase pour un KTA  $\theta = 39^\circ$ ,  $\varphi = 0^\circ$ .

## D. Le niobate de potassium : $\text{KNbO}_3$

Le cristal de  $\text{KNbO}_3$  possède une très bonne courbe de transmission jusqu'à  $4 \mu\text{m}$  (§I.D.4.b)). De plus, en valeur absolue, le  $\text{KNbO}_3$  a des coefficients non linéaires beaucoup plus élevés que le KTP ou que le KTA (Annexe C). Ceci devrait conduire à des efficacités de conversion plus importantes et des seuils d'oscillation plus bas.

### 1. $\text{KNbO}_3$ coupé à $q = 41^\circ$ , $j = 0^\circ$

Dans cette orientation, SNLO donne les valeurs suivantes :

- Angles de walkoff :  $r_1 = r_3 = 0 \text{ mrad}$ ,  $r_p = 65,47 \text{ mrad}$ .
- Acceptance angulaire pour l'onde de pompe :  $Dq_p = 0,56 \text{ mrad.cm}$  (§ I.C.6.b)).
- $d_{\text{eff}} = 7,97 \text{ pm/V}$ .
- Acceptance spectrale de l'OPO :  $Dn_s = -Dn_i = 59,05 \text{ cm}^{-1}\text{.cm}$ .

Le  $d_{\text{eff}}$  est beaucoup plus élevé que pour le KTP ou le KTA, ce qui est un avantage important. Pour une onde de pompe à  $800 \text{ nm}$ , l'onde signal est à  $1,060 \mu\text{m}$  et l'onde complémentaire à  $3,259 \mu\text{m}$ . L'onde signal et l'onde complémentaire sont polarisés suivant l'axe ordinaire et la pompe suivant l'axe extraordinaire. La configuration est donc de type *I*. Le type *I* autorise une plus grande acceptance spectrale que le type *II*. Par contre dans cette configuration l'acceptance angulaire de l'onde de pompe est très réduite.

Un autre avantage du  $\text{KNbO}_3$  est la forte dépendance de sa courbe d'accord de phase avec la longueur d'onde de pompe (Figure III-20). Ainsi, pour une onde de pompe entre  $770$  et  $840 \text{ nm}$ , l'onde signal généré sera compris entre  $0,97 \mu\text{m}$  et  $1,24 \mu\text{m}$  et l'onde complémentaire entre  $3,76 \mu\text{m}$  et  $2,60 \mu\text{m}$ . Cette variation importante avec la longueur d'onde permet d'avoir l'onde complémentaire sur une grande plage de longueur d'onde tout en restant dans une zone proche du maximum d'énergie, situé vers  $800 \text{ nm}$ .

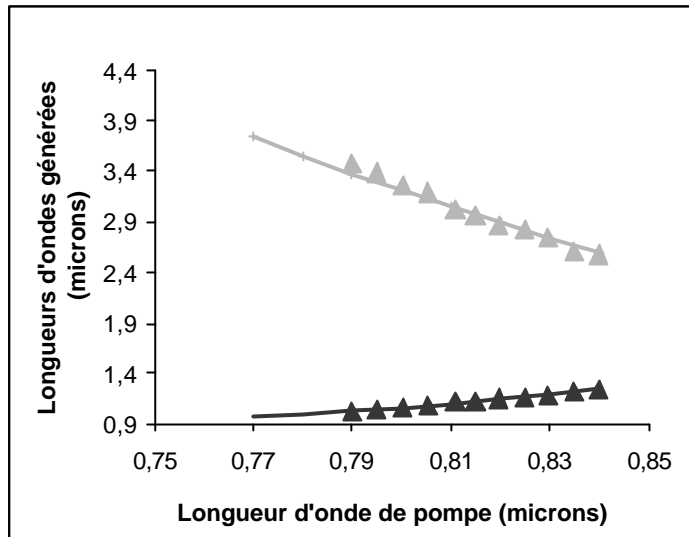


Figure III-20. Courbe d'accord de phase d'un KNbO<sub>3</sub> coupé à  $q = 41^\circ$ ,  $j = 0^\circ$ . Les points représentent les données expérimentales et les courbes, les données théoriques.

## 2. Résultats

La cavité OPO utilisée a les caractéristiques suivantes :

- Miroir d'entrée (substrat CaF<sub>2</sub>): HT @ 730-800 nm et 1,75-4 μm, HR @ 880-1150 nm.
- Miroir de sortie : HT @ 730-800 nm et 1,75-4 μm, R=90% @ 880-1150 nm.

Les seuils d'oscillation des KNbO<sub>3</sub> mesurés, sont en moyenne plus haut que ceux du KTP et du KTA et sont compris entre 3 et 45 MW/cm<sup>2</sup>. Les efficacités de conversion totales, pour trois cristaux différents, vont de 12% à 21,4%, dans le cas le plus favorable, et sont globalement plus élevées que pour les cristaux de KTP de même longueur. Mais à la vue des coefficients non linéaires des deux cristaux, la différence devrait être plus importante. Comme les seuils sont plus hauts, la différence d'efficacité peut s'expliquer par un problème dans la structure des cristaux. Dans le cas le plus favorable, l'énergie totale générée est de 6,5 mJ (@ E<sub>p</sub>= 35 mJ), ce qui correspond à une énergie de 1,5 mJ pour l'onde complémentaire et de 5 mJ pour l'onde signal (Figure III-21). Pour ce cristal, le seuil d'oscillation est très bas car il correspond à environ 3 MW/cm<sup>2</sup>.

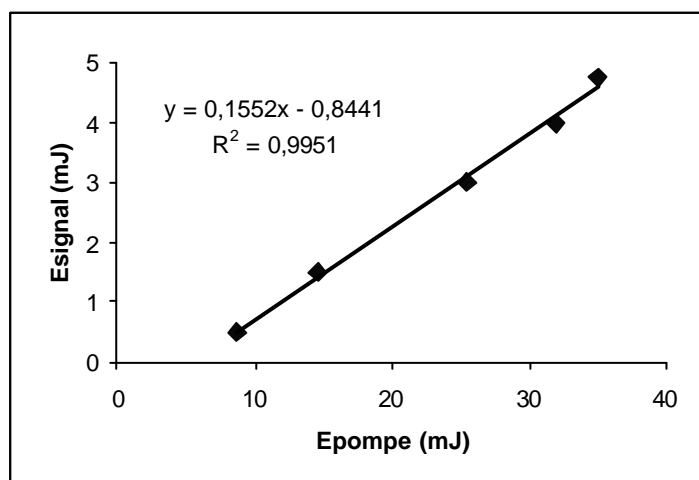


Figure III-21. Energie de l'onde signal en fonction de l'énergie de l'onde de pompe pour un KNbO<sub>3</sub> ( $l = 13$  mm) coupé à  $q = 41^\circ$ ,  $j = 0^\circ$ .

Le cristal de  $\text{KNbO}_3$  présente donc de nombreux avantages puisqu'il possède des coefficients non linéaires élevés, ainsi qu'une courbe d'accord de phase qui permet de générer continuellement des longueurs d'ondes entre 1 et 4  $\mu\text{m}$ .

De plus, contrairement au  $\text{KTP}^{22}$  et au  $\text{KTA}$ , le  $\text{KNbO}_3$  a une dépendance importante des courbes d'accord de phase en fonction de la température<sup>23</sup> (Figure III-22). Cette dépendance permet, en modifiant la température à l'aide d'un four thermostaté, de corriger les erreurs faites sur les angles de coupe des cristaux de  $\text{KNbO}_3$ . Un échauffement de  $60^\circ\text{C}$  du cristal permet de corriger une erreur de  $1^\circ$  sur l'angle  $q$

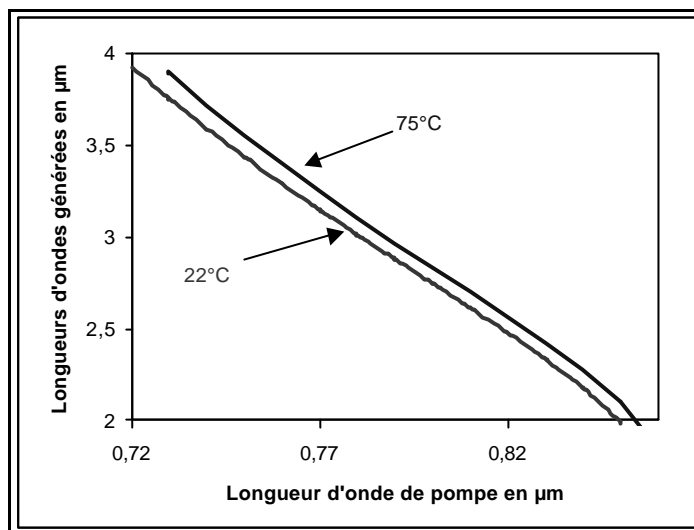


Figure III-22. Courbes d'accord de phase pour l'onde complémentaire, à deux températures différentes ( $22^\circ\text{C}$  et  $75^\circ\text{C}$ ), du  $\text{KNbO}_3$ , coupé à  $\theta = 41^\circ$ ,  $\phi = 0^\circ$ .

Par contre, des problèmes d'endommagement du cristal sont apparus pour des intensités de pompe inférieures à  $100 \text{ MW/cm}^2$  lors d'un fonctionnement prolongé. Un autre problème survient lors de la réalisation de cristaux monolithiques. En effet, lors du dépôt de revêtements réfléchissants, la température du cristal augmente et se rapproche de sa température de transition de phase ferroélectrique ( $220^\circ\text{C}$ ), d'où l'apparition de domaines ferroélectriques. Il est donc extrêmement difficile de réaliser de tels OPO monolithiques.

Enfin, pour utiliser ce cristal pour faire du lidar DIAL, il faut disposer de sources qui ont une largeur spectrale typique de  $0,1 \text{ nm}$  ( $0,1 \text{ cm}^{-1}$ ). La largeur spectrale de l'onde signal du  $\text{KNbO}_3$  à mi-hauteur a été mesurée à l'aide d'un analyseur optique multicanaux (OMA). Cette largeur est de  $3,5 \text{ nm}$  (Figure III-23). En mesurant la largeur spectrale de l'onde de pompe, celle de l'onde complémentaire peut être estimée à partir de :

$$\text{III- 60} \quad \frac{1}{I_p} = \frac{1}{I_s} + \frac{1}{I_i} \quad \text{donc} \quad \frac{\Delta I_p}{I_p^2} = \frac{\Delta I_s}{I_s^2} + \frac{\Delta I_i}{I_i^2}$$

Ainsi,  $\Delta I_i = 30 \text{ nm}$  (avec  $\Delta I_p = 0,1 \text{ nm}$ ). Remarquons que cette largeur spectrale est environ deux ordres de grandeur trop large. Il est donc nécessaire de réduire de façon importante la largeur d'émission, en utilisant, par exemple, un étalon Fabry-Perrot.



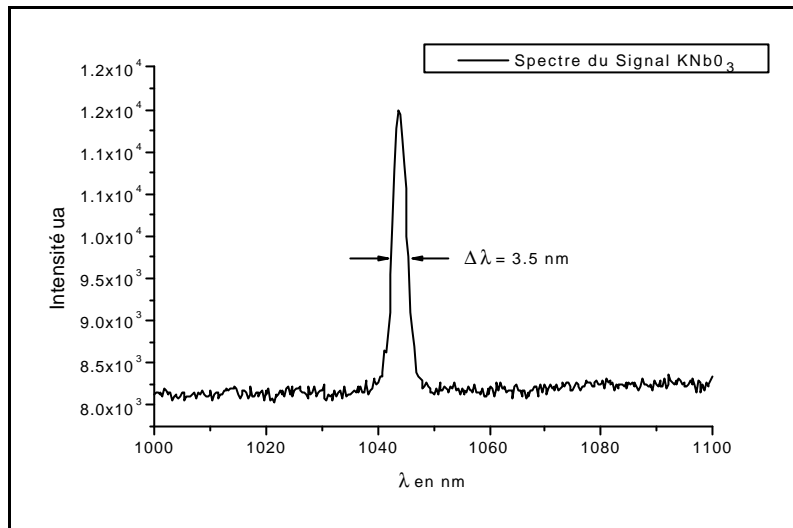


Figure III-23. Largeur spectrale de l'onde signal du  $\text{KNbO}_3$  coupé à  $\theta = 41^\circ$ ,  $\varphi = 0^\circ$ .

Dans le cadre du projet NOCTILS, cette solution a été testée par une équipe du Laboratoire Central de recherche (Thalès-LCR) et par une équipe du National Physical Laboratory (NPL) de Londres. Il ressort de ces expériences qu'il est très difficile de faire fonctionner un OPO avec un étalon intracavité car la longueur de cette cavité est nécessairement plus grande et son seuil d'oscillation est donc plus haut. Dans le cas d'un étalon hors de la cavité de l'OPO, il a fallu réduire sa largeur de bande en augmentant son épaisseur (2 mm) pour atteindre  $0,25 \text{ cm}^{-1}$ . Ceci a conduit à diminuer l'intervalle spectral libre et donc à perdre l'onde signal monomode. Pour retrouver une onde signal monomode, il est possible, dans le même temps, de réduire la longueur de la cavité OPO (12 mm) pour augmenter l'intervalle spectral libre. Une onde signal monomode stable de faible largeur spectrale ( $0,25 \text{ cm}^{-1}$ ) a ainsi été obtenu. Mais l'OPO fonctionnant près de son seuil d'oscillation ( $E_s=200 \text{ }\mu\text{J}$ ), l'onde signal est monomode même en enlevant l'étalon car l'OPO lui-même ne permet qu'à un seul mode de se développer. Si l'énergie augmente, l'onde signal n'est donc plus monomode. Cette configuration simple peut par contre être utilisée pour injecter un OPA et ainsi obtenir plus d'énergie. De plus, lors du balayage en longueur d'onde du signal des sauts de mode ont été constatés. A terme, il est donc envisagé d'injecter l'onde signal avec une diode monomode accordable sans saut de mode. Ceci n'a pas encore pu être réalisé faute de temps.

## E. Conclusion

Les OPO basés sur des KTP et des KTA sont de très bonnes sources laser pour générer des longueurs d'onde jusqu'à  $3 \text{ }\mu\text{m}$ . Même si le cristal de KTA est prometteur, seul un cristal de  $\text{KNbO}_3$  de type I, coupé à  $\theta = 41^\circ$ ,  $\varphi = 0$ , permet de générer des longueurs d'ondes au-dessus de  $3 \text{ }\mu\text{m}$  avec une énergie significative. Les énergies maximales obtenues pour l'onde complémentaire sont alors comprises entre 1 et 2 mJ. De plus, les bandes de transmission de l'atmosphère et notamment dans la bande  $3,4 - 4 \text{ }\mu\text{m}$  où la transmission est la meilleure sont accessibles. L'extinction due aux molécules atmosphériques est alors faible et permet une meilleure détection des aérosols dans l'infrarouge ainsi qu'une plus grande portée de détection. Avec ce cristal, une source pulsée, accordable dans l'infrarouge moyen est donc disponible pour réaliser un lidar aérosols UV-IR. Ainsi, une expérience préliminaire de mesures de concentrations d'aérosols par lidar, dans l'infrarouge moyen, a été réalisée avec un  $\text{KNbO}_3$  lors d'un épisode de brume. Cette expérience est le sujet du chapitre suivant.

---

<sup>1</sup> Franken P. A., Hill A. E., *et al.*, « Generation of optical harmonics », *Phys. Rev. Lett.* **7**, p 118, (1961).

<sup>2</sup> Kleinman D. A., « Nonlinear dielectric polarization in optical media », *Phys. Rev. Lett.* **126**, p 1977, (1962).

<sup>3</sup> Yao J. Q., and Fahlen T. S., « Calculations of optimum phase match parameters of the biaxial crystal KTP », *J. Appl. Phys.* **55**, p 65, (1984).

<sup>4</sup> Dmitriev V. G., and Nikogosyan D. N., « Effective nonlinearity coefficients for three waveinteractions in biaxial crystals of mm2 point group symmetry », *Opt. Comm.* **95**, p 173, (1993).

<sup>5</sup> Byer R. L., « Nonlinear optics », in « Proceedings of the sixteenth scottish universities summer school in physics, 1975 », Harper P. G., Wherrett B. S., eds. (Academic Press, London, 1977).

<sup>6</sup> Yariv A., « Quantum electronics, Third edition », (Wiley, New York, 1984).

<sup>7</sup> Ito H., Naito H., *et al.*, « Generalized study on angular dependence of induced second-order nonlinear optical polarizations and phase matching in biaxial crystals », *J. Appl. Phys.*, **46**, p 3992, (1975).

<sup>8</sup> Zondy J. J., Abed M., *et al.*, « Twin-crystal walk-off-compensated type II SHG : single-pass and cavity-enhanced experiments in KTP », *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, p 2368, (1994).

<sup>9</sup> Young J. F., Miles R. B., *et al.*, « Pump linewidth requirements for OPO », *J. Appl. Phys.*, **42**, p 497, (1971).

<sup>10</sup> Henderson A. J., Ebvrahimzadeh M., *et al.*, « Characterization of urea OPO pumped by excimer lasers », *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**, p 1402, (1990).

<sup>11</sup> Cristal Laser, 12 allée Jean Rostand, BP 44-54230 Chaligny, France.

<sup>12</sup> Bierlein J. D., and Vanherzeele H., « Potassium titanyl phosphate : properties and new applications », *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, p 622, (1989).

<sup>13</sup> Cheng L. K., *et al.*, « Crystal growth of KTP isomorphs from tungstate and molybdate fluxes », *J. Crystal Growth* **110**, p 697, (1991).

<sup>14</sup> NOCTILS : programme BRITE-EURAM de la communauté européenne (contrat n° BRPR CT 97 0349, projet n° BE 96-3956).

<sup>15</sup> Zysset B., Biaggio I., *et al.*, « Refractive indices of orthorhombic KNbO<sub>3</sub>. I. Dispersion and temperature dependence », *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, p 380, (1992).

<sup>16</sup> Kato K., « Parametric oscillation at 3.2  $\mu$ m in KTP pumped at 1.064  $\mu$ m », *IEEE-J. Quantum Elec* **27**, p 1137, (1991).

---

<sup>17</sup> Bierlein J. D., and Vanherzeele H., «Potassium titanyl phosphate : properties and new applications », J. Opt. Soc. Am. B **6**, p 622, (1989).

<sup>18</sup> Fenimore D. L., Schepler K. L., *et al.*, «Infrared corrected Sellmeier coefficients for KTA », J. Opt. Soc. Am. B **12**, p 794, (1995).

<sup>19</sup> FEE StruthStrasse 2, 55743 Idar-Oberstein, Allemagne.

<sup>20</sup> SNLO nonlinear optics code programmé par Smith A. V., Sandia National Laboratoriess, Albuquerque, NM 87185-1423.

<sup>21</sup> Measures R. M., «Laser remote sensing : fundamentals and applications », (Krieger, Malabar, Florida, 1992).

<sup>22</sup> Wiechmann W., Kubota S., *et al.*, « Refractive-index temperature derivatives of KTP », Opt. Lett. **18**, p 1208, (1993).

<sup>23</sup> Dmitriev V. G., Gurzadyan G. G., and Nikogosyan D. N., «Handbook of nonlinear optical crystals », (Springer, Berlin, 1997).

## Chapitre IV : Mesures lidar d'aérosols à 3,5 $\mu\text{m}$ lors d'un épisode de brume<sup>1,2,3</sup>

Les mesures lidar ont été réalisées sur le campus de la Doua, à Villeurbanne, durant un épisode de brume. Le but était de démontrer la faisabilité d'une mesure lidar dans l'infrarouge moyen avec l'OPO développé précédemment. Ces conditions météorologiques ont été choisies car elles fournissent une atmosphère relativement homogène, composée d'une seule classe de particules (gouttelettes d'eau largement dominante), avec des propriétés optiques bien connues (particules sphériques, d'indice de réfraction connu). La plage d'accordabilité de notre OPO étant 1-4  $\mu\text{m}$  (Cf Chap. III §II-D), la longueur d'onde dans l'infrarouge (3,5  $\mu\text{m}$ ) a été choisie pour que la transmission atmosphérique soit maximale. Ainsi, cette longueur d'onde correspond à la fenêtre atmosphérique où la transmission de l'atmosphère est la meilleure puisque la transmission est d'environ 90%, sur environ 2 km (Figure IV-1). Cette longueur d'onde permet aussi d'accéder au deuxième mode (micrométrique) de la distribution de taille : les particules grossières. Un algorithme calculant les sections efficaces de diffusion de Mie a été utilisé pour optimiser ces longueurs d'onde. D'une manière générale, la sensibilité est maximale lorsque le paramètre de taille  $x = 2\pi r/\lambda$  (avec  $r$  est le rayon de la particule) est compris entre 0,9 et 10. Ainsi en utilisant le lidar dans l'ultraviolet (à 400 nm, Cf Chap. II), on a une sensibilité sur les particules entre 50 nm et 0,6  $\mu\text{m}$ . En combinant cette longueur d'onde avec une longueur d'onde dans l'infrarouge, on accède aux particules entre 50 nm et 6  $\mu\text{m}$ . Des simulations ont donc été menées afin de juger de la sensibilité sur les différentes tailles dans l'infrarouge. Il faut cependant prendre garde au fait que, dans l'atmosphère, les aérosols se présentent sous la forme de distributions finies. Les simulations suivantes présentent le cas de l'efficacité d'extinction  $Q_{ext}$  des gouttelettes d'eau à une longueur d'onde de 3,5  $\mu\text{m}$  (Figure IV-2).

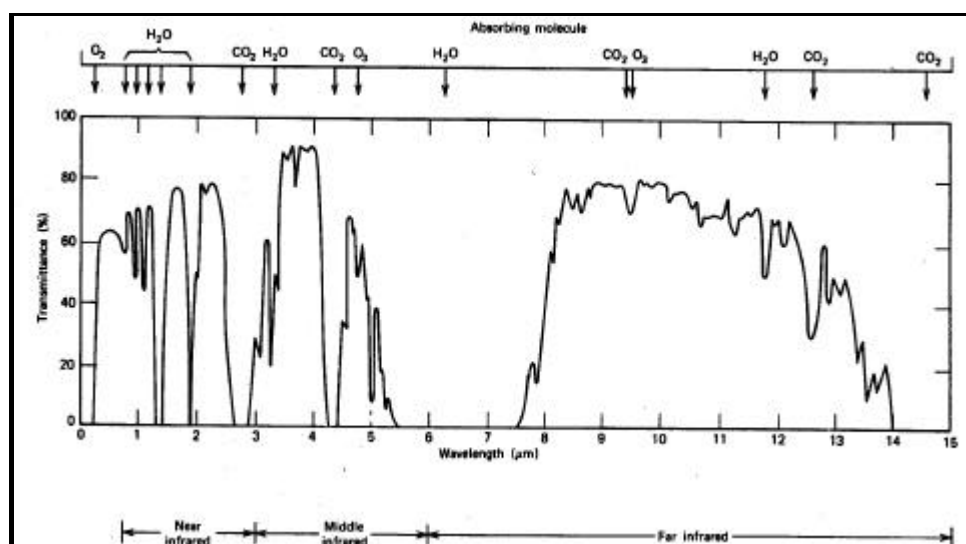


Figure IV-1. Transmission de l'atmosphère sur une longueur de 1828 m, au niveau de la mer<sup>4</sup>.

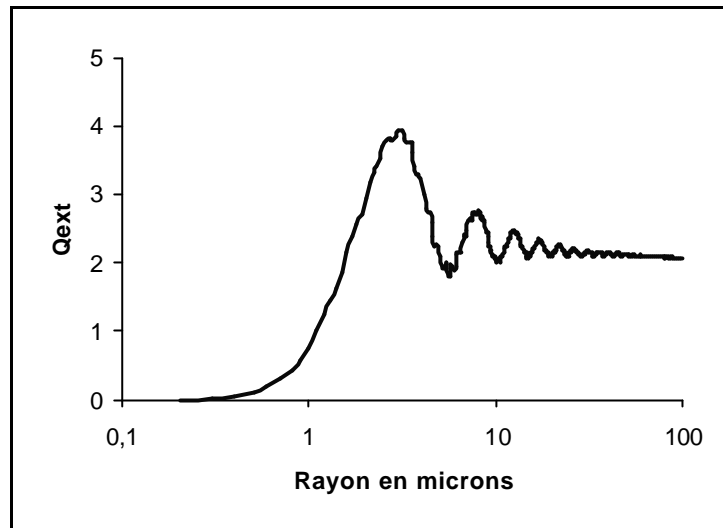


Figure IV-2. Efficacité d'extinction ( $Q_{ext}$ ) en fonction du rayon pour des gouttelettes d'eau à une longueur d'onde de  $3,5 \mu\text{m}$ .

## I. Dispositif expérimental

Pour réaliser ces mesures à  $3,5 \mu\text{m}$ , nous avons donc utilisé l'OPO présenté au chapitre III (§II-D), basé sur un cristal de  $\text{KNbO}_3$  (Figure IV-3) ( $6 \times 6 \text{ mm}$  d'ouverture,  $l = 13 \text{ mm}$ ), coupé à  $40,8^\circ$  par rapport à l'axe  $b$ , dans le plan  $bc$ . Pompé entre  $720 \text{ nm}$  et  $880 \text{ nm}$  par un laser Ti:Sa, déjà décrit dans le chapitre précédent, ce cristal, utilisé comme oscillateur paramétrique optique, permet de générer continûment des longueurs d'onde entre  $1$  et  $4 \mu\text{m}$ , avec une énergie de sortie totale de  $6 \text{ mJ}$  au maximum, pour une énergie de pompe de  $35 \text{ mJ}$  à  $800 \text{ nm}$ . L'efficacité de conversion est alors de  $17\%$  pour le signal, et l'énergie de la complémentaire est typiquement de  $1,5 \text{ mJ}$ . Le seuil d'oscillation est, quant à lui, relativement bas ( $6 \text{ MW/cm}^2$ ), pour une longueur de cavité ajustée au plus près du cristal. Enfin, la largeur spectrale du signal, mesurée avec un analyseur optique multicanaux (Princeton Instrument), est de  $3 \text{ nm}$  à  $1042 \text{ nm}$ , ce qui correspond à  $30 \text{ nm}$  pour la complémentaire (la largeur de la pompe étant de  $0,1 \text{ nm}$  à  $800 \text{ nm}$ ).

Des miroirs dichroïques, dont le substrat est en  $\text{CaF}_2$ , séparent la complémentaire, du signal et de la pompe, avec un revêtement hautement réfléchissant pour  $3,5 \mu\text{m}$  à  $45^\circ$  et transmettant les longueurs d'onde de la pompe et du signal. Cependant, à cause du faible seuil de dommage de ces miroirs, le diamètre du faisceau laser est augmenté d'un facteur 5 à l'aide d'un télescope. Ce télescope permet aussi de collimater le faisceau. A la sortie des deux miroirs dichroïques la divergence de la complémentaire est de  $1,8 \text{ mrad}$ , ce qui correspond au champ de vue du télescope de réception. Cette divergence a été mesurée avec des diaphragmes de différentes ouvertures et un mesureur d'énergie.

Notre système lidar se trouve dans une configuration coaxiale, avec un télescope de réception de type Newton ( $f = 1200 \text{ mm}$ ,  $\phi = 400 \text{ mm}$ ). Une photodiode InSb (Hamamatsu), refroidie à l'azote liquide, est placée au foyer. Cette photodiode a une aire active de  $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$  avec un champ de vue de  $60^\circ$  et une sensibilité de  $1,56 \cdot 10^6 \text{ V/W}$ . Un convertisseur courant-tension et un préamplificateur sont intégrés au Dewar pour réduire le bruit électronique. La bande passante de la photodiode avec le préamplificateur est de  $10 \text{ MHz}$ , ce qui limite la résolution spatiale de notre système lidar à  $15 \text{ m}$ . Enfin, un filtre passe-haut avec une fréquence de coupure à  $3 \mu\text{m}$  est placé devant la photodiode.

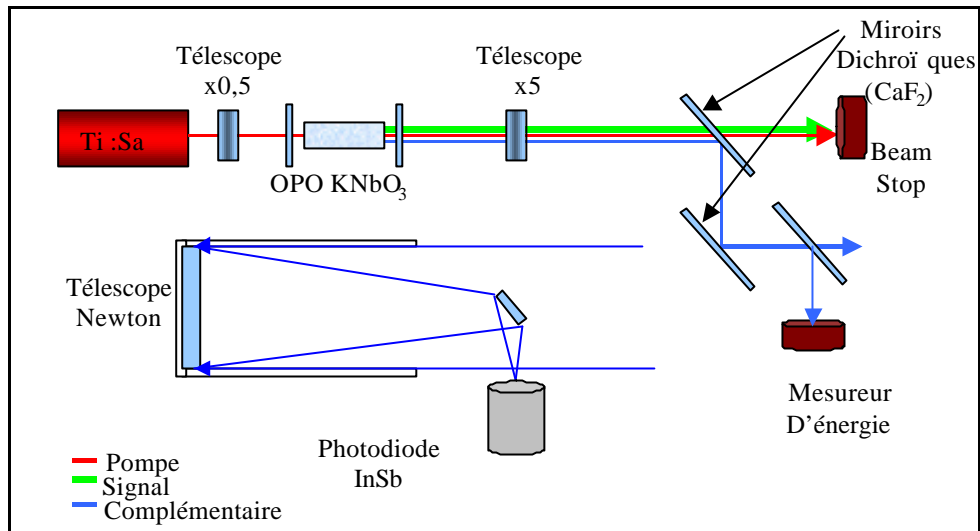


Figure IV-3. Dispositif expérimental utilisé pour les mesures à 3,5  $\mu\text{m}$ .

## II. Résultats et discussion

### A. Résultats qualitatifs tirés des mesures lidar

Les signaux lidar bruts à 3,5  $\mu\text{m}$  sont obtenus après une acquisition de 1000 coups sur un oscilloscope numérique. Le signal brut est alors multiplié par le carré de la distance puis traité suivant la procédure illustrée par la Figure IV-4. Tout d'abord, pour enlever le bruit électromagnétique résiduel provenant de l'alimentation et de la cellule de Pockels du laser Ti:Sa, un filtre numérique est appliqué à la partie réelle de la transformée de Fourier du signal brut. Un signal lidar ainsi exempt de ce bruit systématique est obtenu (vignette en haut à gauche). On prend ensuite le logarithme naturel du signal ainsi traité (vignette en bas à gauche). Enfin, connaissant l'angle que fait la direction de tir avec l'horizontale, le signal lidar peut être représenté, non plus en fonction de la distance, comme sur les vignettes précédentes, mais en fonction de l'altitude (vignette de droite et Figure IV-5). Il est important de noter qu'à ce stade, l'information obtenue est seulement qualitative mais pas quantitative car le signal n'est pas encore inversé (i.e. pas de mesures de  $\mathbf{b}$  et  $\mathbf{a}_{ext}$  et encore moins de mesures de concentration et de taille). Cependant, de nombreuses constatations peuvent déjà être faites.

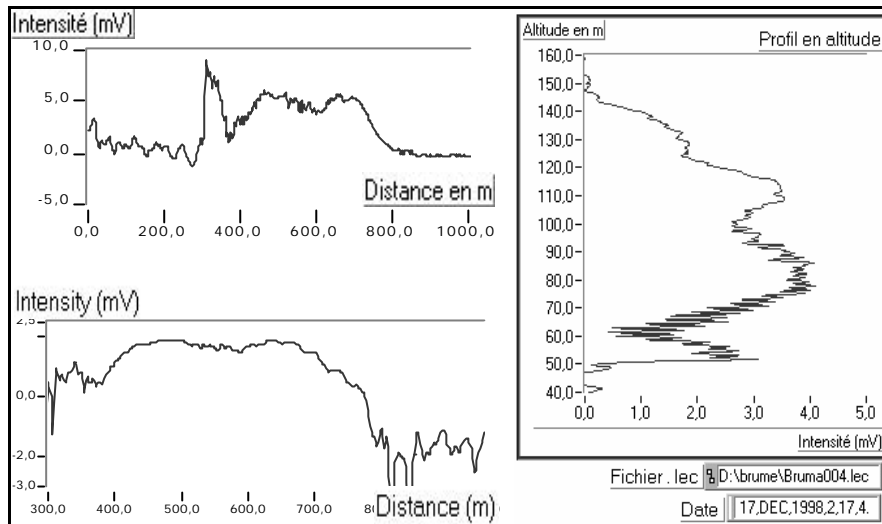


Figure IV-4. Les différentes étapes du traitement d'un signal lidar brut obtenu à 3,5  $\mu\text{m}$ .

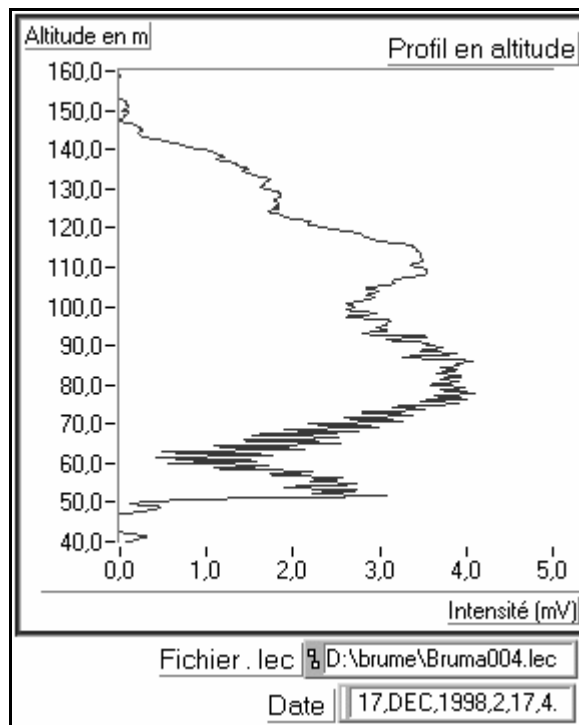


Figure IV-5. Exemple d'un profil lidar obtenu à 3,5  $\mu\text{m}$  en fonction de l'altitude après filtrage du bruit.

Tout d'abord, un signal lidar a été obtenu sur une distance de 1500 m, soit une altitude de 234 m compte tenu de l'angle de tir, et ceci malgré la traversée d'une couche de brume épaisse d'une centaine de mètres. Ceci montre l'avantage de s'être placé à une longueur d'onde de 3,5  $\mu\text{m}$ , nettement moins atténuée que les autres longueurs d'onde et qui permet ainsi de passer entièrement au travers de la couche de brume. La forte décroissance du signal lidar vers 140 m correspond au sommet de la couche. De plus, à l'intérieur de celle-ci, des stratifications sont observables à différentes altitudes (60, 100 et 130 m). Il n'est cependant pas possible de visualiser la couche sur les 50 premiers mètres car la compression géométrique de notre système provoque une décroissance sévère du signal lidar.

## B. Résultats quantitatifs : inversion des signaux lidar

Pour obtenir maintenant des informations quantitatives sur la concentration et la taille des gouttelettes d'eau, l'inversion proprement dite des signaux lidar a été effectuée. Pour cela, le même algorithme de Klett a été utilisé que lors de la campagne ELO, en faisant comme hypothèse que la seule contribution aux coefficients d'extinction  $a_{ext}$  et de rétrodiffusion  $b$  est la diffusion de Mie due aux gouttelettes d'eau. De plus, comme la couche de brume est d'épaisseur finie, le coefficient de rétrodiffusion  $b(z_m)$  au delà de cette couche (i.e. en fin de signal) est considéré comme nul. Pour utiliser cet algorithme, il est également nécessaire de connaître la valeur de l'indice de réfraction des particules présentes. L'évolution de l'indice de réfraction complexe d'une goutte d'eau en fonction de la longueur d'onde est présenté Figure IV-6. A  $3,5 \mu\text{m}$ , l'indice de réfraction complexe est  $m = 1,384 - 9,39 \cdot 10^{-3}i$ .

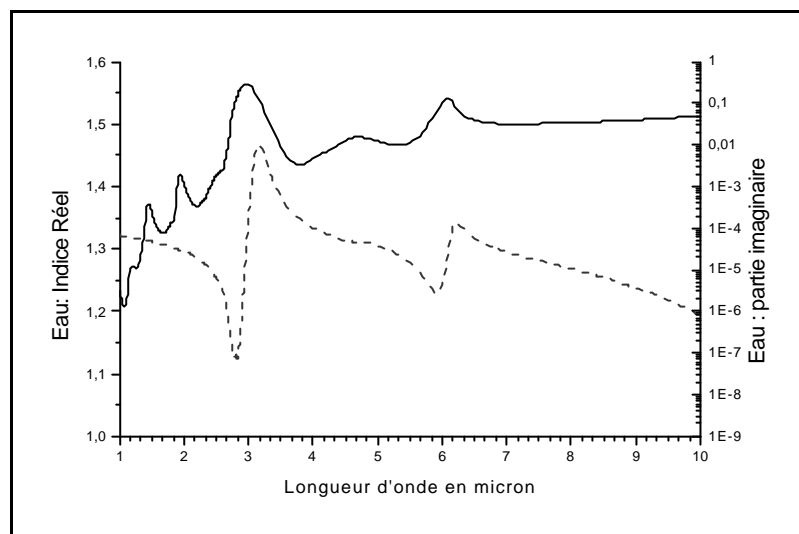


Figure IV-6. Evolution de l'indice de réfraction complexe de l'eau en fonction de la longueur d'onde, la courbe en pointillés correspond à la partie réelle et la courbe continue à la partie imaginaire<sup>5</sup>.

Afin d'évaluer le paramètre  $(a_{ext}/b)$  tout au long du trajet, celui-ci varie en fin de signal jusqu'à ce que notre algorithme d'inversion reproduise le plus fidèlement possible tout le profil lidar mesuré. Cette évolution du rapport  $a_{ext}/b$  avec la distance, obtenu avec notre algorithme d'inversion, est présentée. Tout au long du trajet dans la couche de brume, le rapport  $a_{ext}/b$  est constant et égal à  $14 \pm 2$  sr, ce qui signifie que la taille des particules ne change pratiquement pas avec l'altitude.



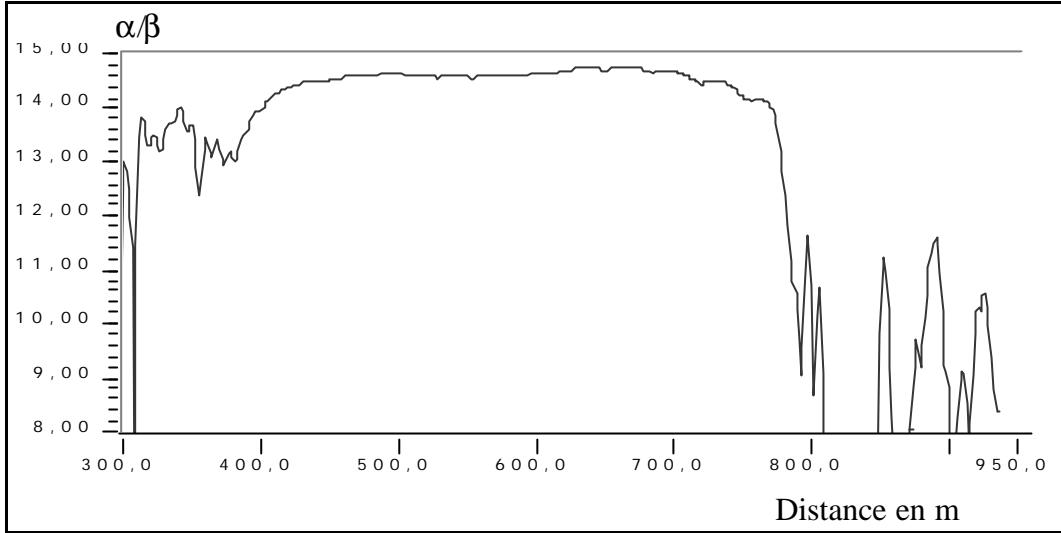


Figure IV-7. Evolution du rapport  $\alpha_{ext}/\beta$  avec la distance, obtenu avec notre algorithme d'inversion.

Avec l'inversion des données, les coefficients  $\mathbf{a}_{ext}$  et  $\mathbf{b}$  et le rapport  $\mathbf{a}_{ext}/\mathbf{b}$  sont connus. Le rayon le plus probable pour les particules peut alors être calculé. Pour cela, les sections efficaces d'extinction  $\mathbf{s}_{ext}(r)$  et de rétrodiffusion  $\mathbf{s}_{back}(r)$  sont calculées en fonction du rayon (pour  $\lambda = 3,5 \mu\text{m}$ ) avec la théorie de la diffusion de Mie (Cf Chap. I, §II-B). A la vue de ces valeurs, seules deux plages de rayons ( $0,3-0,6 \mu\text{m}$  et  $7-10 \mu\text{m}$ ) sont susceptibles de convenir pour obtenir le rapport  $\mathbf{a}_{ext}/\mathbf{b}$  trouvé expérimentalement. Etant donné les conditions dans lesquelles ont été effectuées les mesures, une distribution de taille de type log-normale, représentative d'une atmosphère brumeuse ou nuageuse (Cf Chap. I §IV-1), est choisie. Les sections efficaces de rétrodiffusion moyenne  $\overline{\mathbf{s}}_{Back}^{Aero}$  et d'extinction moyenne  $\overline{\mathbf{s}}_{Ext}^{Aero}$  sont alors calculées à partir des sections efficaces de rétrodiffusion et d'extinction et de la distribution de taille normalisées  $g(r)$  (équations IV-1 et IV-2). Le calcul est effectué pour différentes valeurs du rayon  $r_0$ , correspondant au maximum de la distribution, et de l'écart quadratique moyen  $\mathbf{e}$  de celle-ci.

$$\text{IV-1} \quad \mathbf{b}_{Aero}(z) = N_{Aero}(z) \cdot \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{Back}^{Aero}(r) \cdot g(r) dr = N_{Aero}(z) \cdot \overline{\mathbf{s}}_{Back}^{Aero}$$

$$\text{IV-2} \quad \mathbf{a}_{Aero}(z) = N_{Aero}(z) \cdot \int_0^{\infty} \mathbf{s}_{Ext}^{Aero}(r) \cdot g(r) dr = N_{Aero}(z) \cdot \overline{\mathbf{s}}_{Ext}^{Aero}$$

où  $N_{Aero}(z)$  est le nombre de particules total.

On obtient donc le rapport  $\overline{\mathbf{s}}_{Ext}^{Aero} / \overline{\mathbf{s}}_{Back}^{Aero}$  (qui est égal au rapport  $\mathbf{a}_{ext}/\mathbf{b}$ ), pour différents couples de valeurs  $\{r_0, \mathbf{e}\}$ . Les valeurs du rayon  $r_0$  sont prises sur les deux plages susceptibles de convenir. Il ressort de ces calculs que pour les distributions avec un rayon  $r_0$  compris entre 7 et 10  $\mu\text{m}$ , le rapport  $\mathbf{a}_{ext}/\mathbf{b}$  est toujours supérieur à 25 sr, quelque soit l'écart quadratique moyen. Pour les rayons  $r_0$  compris entre 0,3  $\mu\text{m}$  et 0,6  $\mu\text{m}$ , le rapport minimum obtenu est de 16 sr, pour une distribution log-normale avec un rayon  $r_0$  égal à 0,4  $\mu\text{m}$  et un écart quadratique moyen  $\mathbf{e}$  de 0,15 (Figure IV-8). Cette valeur de 16 sr se situe dans la marge d'erreur du rapport déterminé à partir de l'inversion lidar ( $\mathbf{a}_{ext}/\mathbf{b} = 14 \pm 2$  sr). Il faut souligner que les valeurs trouvées pour  $r_0$  et  $\mathbf{e}$  sont seulement les valeurs les plus probables. La valeur du rayon  $r_0$  est typique des valeurs obtenues pour la brume (où les rayons sont compris entre

0,03  $\mu\text{m}$  et 0,3  $\mu\text{m}$  ; le brouillard contenant des gouttelettes de rayons de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ )<sup>6</sup>. La concentration en  $\text{g}/\text{m}^3$  est calculée à partir de la distribution de taille normalisée. Connaissant  $\overline{\mathbf{s}}_{Ext}^{Aero}$  (à  $\mathbf{l} = 3,5 \mu\text{m}$ ) pour une distribution de taille des gouttelettes d'eau centrée sur un rayon  $r_0 = 0,4 \mu\text{m}$  ( $\overline{\mathbf{s}}_{Ext}^{Aero} = 27.10^{-15} \text{ m}^2$ ) et le coefficient d'extinction  $\mathbf{a}_{ext} = 0,5 \text{ km}^{-1}$  (d'où  $\mathbf{b} = 3,3.10^{-2} \text{ km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) la valeur de  $N_{Aero}(z)$  peut être estimée à  $18.10^3 \text{ part./cm}^3$  et la concentration maximale dans la couche de brume à  $5,3 \text{ mg}.\text{m}^{-3}$ . La profondeur optique, définie par :

$$\text{IV-3} \quad \mathbf{t}(l) = \int_0^L \mathbf{a}_{ext}(z) dz$$

est de 0,4 en prenant  $\mathbf{a}_{ext} = 0,5 \text{ km}^{-1}$  sur toute la couche de brume et  $L = 0,8 \text{ km}$  pour la distance sur laquelle le faisceau traverse cette couche.

Les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion sont en accord avec les valeurs attendues pour une brume épaisse<sup>7</sup> ( $\mathbf{a}_{ext} \approx 1 \text{ km}^{-1}$  et  $\mathbf{b}$  entre  $1.10^{-2}$  et  $5.10^{-2} \text{ km}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ). Par contre, la concentration de  $5,3 \text{ mg}/\text{m}^3$  est intermédiaire entre les concentrations trouvées pour les brouillards (comprises entre  $20 \text{ mg}/\text{m}^3$  et  $200 \text{ mg}/\text{m}^3$ ) et pour les brumes ( $0,1 \text{ mg}/\text{m}^3$ )<sup>6</sup>.

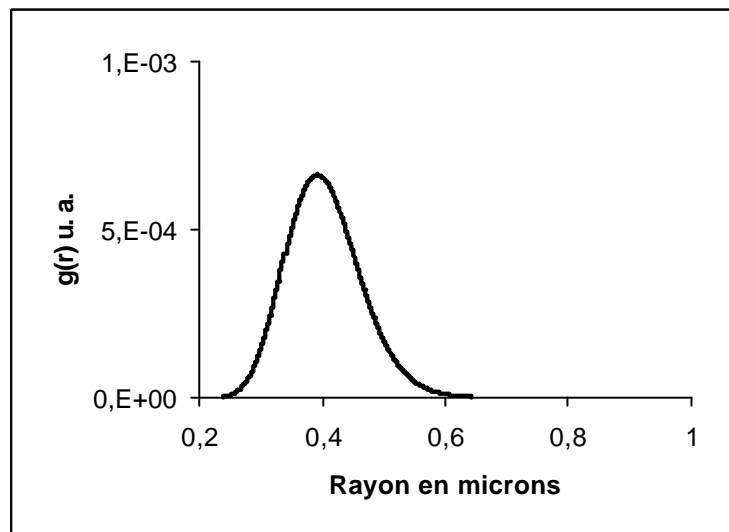


Figure IV-8. Distribution log-normale obtenue pour un rayon moyen  $r_0 = 0,39 \mu\text{m}$  et un écart quadratique  $e = 0,15$ .

Des cartographies 2D de la couche limite ont ensuite été effectuées en balayant l'angle de mesure verticalement. Après l'inversion des profils lidar obtenus pour différents angles de tir ( $8,8^\circ$ ,  $9,1^\circ$ ,  $9,5^\circ$ ,  $15,3^\circ$ ,  $22,2^\circ$ ), une carte à deux dimensions de la concentration en aérosols, sous forme d'un profil angulaire, est obtenue. Une telle carte, réalisée à partir de trois profils lidar provenant d'angles de tir différents, est présentée Figure IV-9. Notons que la transmission à  $3,5 \mu\text{m}$  est très bonne car le signal est toujours présent à la sortie de la couche.

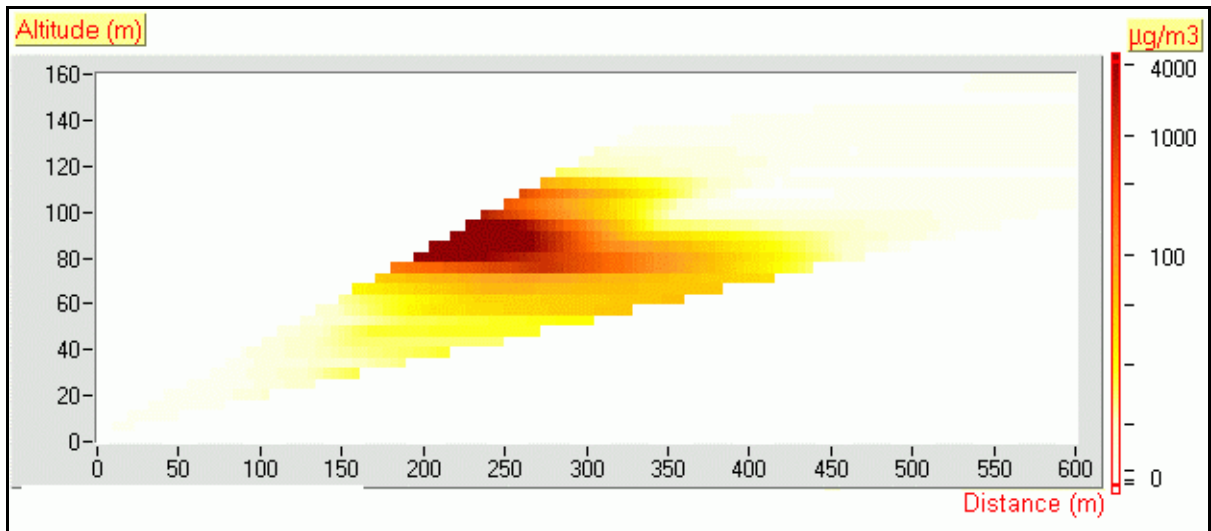


Figure IV-9. Profil angulaire de la concentration en gouttelettes d'eau

De même, nous avons cherché à caractériser l'évolution temporelle de la concentration des aérosols à partir de signaux lidar inversés, pris à des temps différents. La carte présentée Figure IV-10 est composée de cinq profils lidar enregistrés sur une période d'environ 30 minutes. Les différentes stratifications sont de nouveau clairement observables. De plus, les conditions météorologiques plutôt stables conduisent à des variations lentes, avec des constantes de temps de l'ordre de 10 minutes.

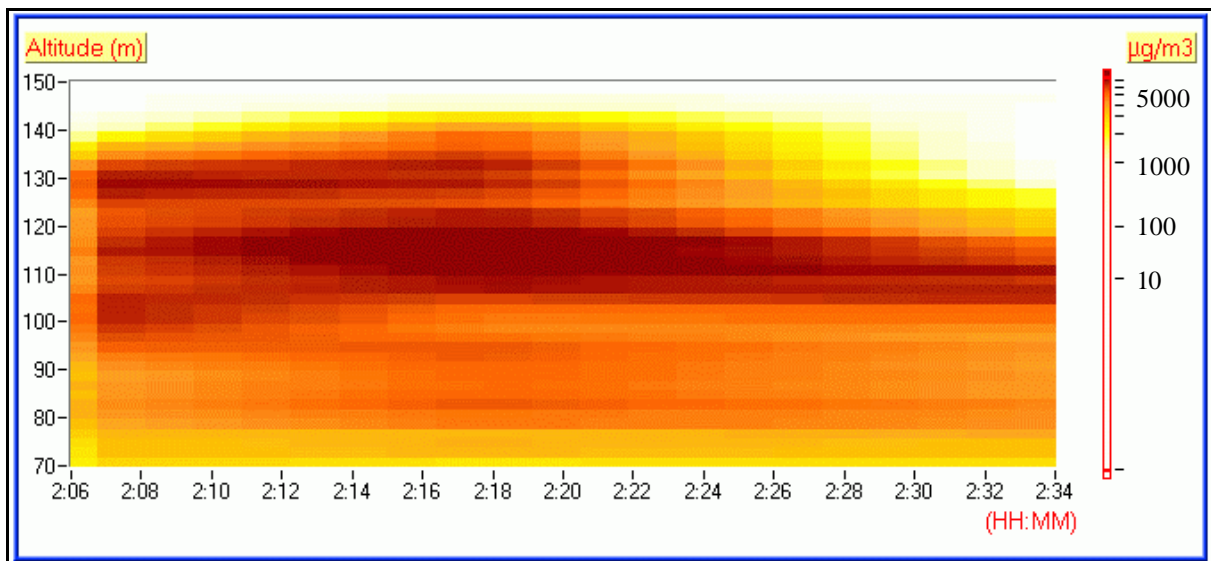


Figure IV-10. Evolution temporelle de la concentration en gouttelettes d'eau.

Enfin, étant donnée la concentration importante des gouttelettes dans la couche de brume, il est nécessaire d'estimer l'importance de la diffusion multiple. La longueur d'onde choisie dans l'infrarouge moyen permet d'avoir un coefficient d'extinction faible ( $a_{ext} = 0,5 \text{ km}^{-1}$ ), donc d'éviter la diffusion multiple. Une estimation, basée sur le travail de Bissonnette<sup>8</sup>, donne une contribution pour cette dernière de seulement 1% pour notre champ de vue de 1,8 mrad. Cette faible contribution permet une inversion classique des données lidar. Ceci n'est plus vrai dans l'ultraviolet et dans le visible, car il faut alors tenir compte de la diffusion multiple, le coefficient d'extinction étant plus important. La méthode d'inversion des signaux lidar est alors beaucoup plus compliquée car elle utilise des récepteurs avec des champs de vue

multiples<sup>9</sup>. De plus, cette méthode dépend de paramètres empiriques ayant des incertitudes importantes.

### III. Conclusion

Pour cette expérience, un système lidar détectant des aérosols dans l'infrarouge moyen a été développé pour la première fois. Ce lidar est basé sur un système utilisant un OPO en configuration « non-tracking ». Cette configuration apporte une accordabilité importante, allant de 1  $\mu\text{m}$  à 4  $\mu\text{m}$ , et facile à obtenir avec le changement de la longueur d'onde de pompe et non de l'angle du cristal biréfringent. Cette caractéristique est extrêmement utile pour la détection des aérosols sur une large bande de longueurs d'onde. De plus, cette expérience de mesures lidar infrarouge lors d'un épisode de brume constitue la première étape, grandeur nature, d'un système lidar de détection d'aérosols dans l'infrarouge en atmosphère claire. Cependant, il est nécessaire d'avoir des énergies de sortie plus importantes que celles utilisées jusqu'à présent car le signal rétrodiffusé est alors, pour ce type d'atmosphère, beaucoup plus faible. En effet, les concentrations attendues sont de l'ordre de 10 à 100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  soit un rapport 50 à 500 avec la concentration mesurée pour le moment (5  $\text{mg}/\text{m}^3$ ). Pour obtenir des énergies de sortie plus importantes, on peut, par exemple, utiliser, après l'OPO, des amplificateurs paramétriques ayant la même configuration, pour préserver les qualités d'accordabilité du système.

Une telle source infrarouge, utilisée en parallèle avec une source dans l'ultraviolet, basée sur le même laser Ti:Sa, permettra la réalisation d'un système unique de lidar aérosols UV-IR. Ce système accédera alors à la dynamique des différentes classes de particules (mode des particules grossières et mode des petites particules) et permettra ainsi d'observer les effets sur la distribution de taille, de processus comme la sédimentation ou le transport à longues distances.

Il serait évidemment très intéressant de disposer d'une source de lumière blanche allant de l'ultraviolet à l'infrarouge en vue d'un lidar aérosols multispectral. Ce système permettrait alors d'accéder à la distribution de taille des aérosols en ne faisant aucune hypothèse *a priori* sur sa forme (Cf Chap. I, §IV-B). Un diagnostic « tout-optique » de la distribution de taille des aérosols et de leur concentration serait alors disponible. Ceci est un des objectifs du projet Teramobile de lidar non linéaire, utilisant comme source, des filaments de lumière blanche générés dans l'air par un laser femtoseconde térawatt. Ce projet franco-allemand de lidar non linéaire est le sujet du chapitre suivant.

---

<sup>1</sup> Mondelain D., Thomasson A., *et al.*, « Frequency agile infrared lidar based on a nontracking KNbO<sub>3</sub> optical parametric oscillator », *Appl. Opt.* **39**, p 3620, (2000).

<sup>2</sup> Mondelain D., Vezin B., *et al.*, « Lidar infra-rouge basé sur un oscillateur paramétrique optique pour la détection des aérosols » *J. Phys. IV France* **10**, Pr8-157, (2000).

<sup>3</sup> Mondelain D., Thomasson A., *et al.*, « Haze measurements at 3,5 microns using an IR-Lidar based on a KNbO<sub>3</sub> OPO », 20<sup>th</sup> International Laser Radar Conference, (2000).

<sup>4</sup> Measures R. M., « Laser remote sensing : fundamentals and applications », (Krieger, Malabar, Florida, 1992).

<sup>5</sup> Wieliczka D., « Wedge shaped cell for highly absorbent liquids : infrared optical constants of water », *Appl. Opt.* **28**, p 1714, (1989).

<sup>6</sup> Seinfeld J. H., « Atmospheric chemistry and physics of air pollution », (Wiley, New-York, 1986).

<sup>7</sup> Hinkley E. D., « Laser monitoring of the atmosphere », (Springer-Verlag, Berlin, 1976).

<sup>8</sup> Bissonnette L. R., « Multiple scattering lidar equation », *Appl. Opt.* **35**, p 6449, (1996).

<sup>9</sup> Bissonnette L. R., and Hutt D. L., « Multiply scattered aerosol lidar returns : inversion method and comparison with *in situ* measurements », *Appl. Opt.* **34**, p 6959, (1995).

# **Chapitre V : Le projet Teramobile : propagation d'impulsions térawatts et lidar non linéaire**

Le projet Teramobile est un projet franco-allemand de grande envergure, faisant intervenir quatre laboratoires dont deux sont spécialisés dans la génération et la propagation d'impulsions ultrabrèves térawatt (Laboratoire d'Optique Appliquée (Ecole Nationale Supérieure des Techniques Avancées – Palaiseau), et Institut für Quantenelektronik (Université d'Iéna)) et les deux autres dans la caractérisation de l'atmosphère par lidar (Institut für Experimentalphysik (Université de Berlin), et notre groupe Lasers et environnement du Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (Université Lyon1)). Le projet, cofinancé par le CNRS et la DFG (Deutsche Forschungsgemeinschaft), comporte trois volets. Tout d'abord, il s'agit de mieux comprendre comment se propage, sur de grandes distances (plusieurs kilomètres), un faisceau laser femtoseconde térawatt dans l'atmosphère. Cette compréhension de la propagation est nécessaire en vue de différentes applications. Les effets hautement non linéaires liés à la propagation de ces faisceaux ultra-intenses peuvent ainsi ouvrir de nouvelles perspectives pour caractériser l'atmosphère et en particulier la pollution. Enfin, une dernière partie du projet, dont il ne sera pas question dans cette thèse, concerne le guidage et le contrôle du déclenchement de la foudre. Pour cela, un système mobile comprenant un laser femtoseconde térawatt et un système de détection lidar a été développé et construit. Notons que cette utilisation des impulsions ultrabrèves est un sujet entièrement nouveau et original.

La théorie de la propagation d'un faisceau térawatt dans l'air sera développée dans la première partie de ce chapitre. Le système Teramobile (lidar et conteneur) sera ensuite décrit en détails. Finalement, on présentera les résultats obtenus pour la formation et la propagation de filaments de lumière blanche et pour le lidar non linéaire.

## **I. Théorie de la propagation d'impulsions térawatts dans l'atmosphère**

La propagation d'impulsions lasers de grande puissance crête, dans des milieux transparents donne lieu à de forts effets non linéaires tels que le mélange à quatre ondes (Four Waves Mixing (FWM))<sup>1</sup>, les processus Raman stimulés<sup>2</sup>, l'auto-focalisation<sup>3</sup>, l'auto-modulation de phase (Self Phase Modulation (SPM))<sup>4,5,6</sup> et l'ionisation. Ces effets conduisent à de fortes modifications des caractéristiques de l'impulsion. Les différents processus non linéaires seront décrits plus en détails dans la suite de ce paragraphe. Depuis 1970, les filaments de lumière blanche suscitent un immense intérêt d'un point de vue théorique ainsi que pour leurs applications potentielles. Cependant, à cause de la puissance crête alors limitée, les expériences ne concernaient jusqu'à récemment que des milieux condensés. Le progrès observé sur le développement des lasers délivrant des impulsions ultracourtes a permis d'étendre ces résultats aux milieux dilués et notamment à la propagation dans l'atmosphère où les effets non linéaires dominent le comportement des impulsions lasers

ultracourtes térawatt. Des filaments de lumière blanche ont ainsi été observés sur des distances bien plus grande que la longueur de Rayleigh (jusqu'à plusieurs dizaines de mètres)<sup>7</sup>, avec un diamètre de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ <sup>8</sup>.

## A. Les mécanismes de base

Dans cette partie, seront passés en revue les processus principaux impliqués dans la propagation non linéaire d'impulsions lasers dans les milieux dilués. En même temps qu'une approche analytique, le sens physique de chaque processus sera discuté, de même que les approximations couramment faites lors de leur traitement numérique.

### 1. Les processus linéaires : diffraction, dispersion de la vitesse de groupe

#### a) Effet de la diffraction

Considérons une impulsion initiale gaussienne et collimatée, se propageant suivant  $z$ , avec une fonction d'enveloppe du champ électrique  $\mathbf{e}(z, r)$ . Cette impulsion subit une diffraction transversale lorsqu'elle se propage. D'après la théorie des faisceaux gaussiens, avec une enveloppe lentement variable, l'équation de propagation pour un faisceau stationnaire ( $\partial \mathbf{e} / \partial t = 0$ ) (la diffraction linéaire est la même pour une impulsion), dans un milieu linéaire sans pertes, s'écrit :

$$\text{V-1} \quad \nabla_{\perp}^2 \mathbf{e} + 2ik \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial z} = 0$$

où  $k = \mathbf{w}n_0/c$  est le nombre d'onde,  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide et  $\nabla_{\perp}^2 = (\partial^2 / \partial r^2) + (1/r)(\partial / \partial r)$ .

Les solutions sont alors de la forme :

$$\text{V-2} \quad \mathbf{e}(z, r) = A_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{-\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2} e^{iS(r,z)}$$

avec  $S$  la phase,

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2},$$

$$z_0 = \frac{\mathbf{P} \cdot w_0^2}{\mathbf{I}},$$

$w_0$  le « waist » du faisceau,

$A_0$  une constante qui correspond à l'amplitude maximale.

L'équation V-1 décrit la diffraction d'un faisceau avec un profil radial gaussien et un rayon initial  $w_0$  à  $z = 0$ , se propageant dans la direction  $z$ . Comme la propagation d'une impulsion

dans l'air nous intéresse plus particulièrement, l'indice de réfraction  $n_0$  sera pris, par la suite, égal à 1 et par conséquent  $\mathbf{w} \approx c.k$ .

Il est aussi utile de définir la longueur de Rayleigh (ou longueur de diffraction)  $L_R = k \cdot w_0^2 / 2$  qui représente la zone sur laquelle on peut considérer le plan d'onde comme quasi-plan. Pour un filament de diamètre 100  $\mu\text{m}$  à 800 nm,  $L_R \sim 1$  cm ; ce qui signifie que la diffraction seule limiterait la longueur des filaments à quelques centimètres.

## b) Dispersion de la vitesse de groupe

La dispersion de la vitesse de groupe a lieu à cause de la dépendance en longueur d'onde de l'indice de réfraction du milieu de propagation. Dans l'air, cette dépendance est bien décrite par la formule empirique de Rank<sup>9</sup> :

$$\text{V-3} \quad (n_0 - 1) \cdot 10^8 = 6432,8 + \frac{294810}{146 - k^2} + \frac{25540}{41 - k^2}$$

Ici, le nombre d'onde  $k$  s'exprime en  $\mu\text{m}^{-1}$ . L'indice de réfraction est plus petit pour les grandes longueurs d'onde que pour les courtes donc ces dernières se propagent moins vite que les grandes.

Or à cause de la relation de Fourier  $\Delta \mathbf{n} \cdot \Delta t = K$  (où  $K$  est une constante de l'ordre de l'unité qui dépend de la forme du faisceau,  $\Delta \mathbf{n}$  est la largeur spectrale à mi-hauteur et  $\Delta t$  la durée de l'impulsion à mi-hauteur), une impulsion courte doit nécessairement avoir un spectre large. Par conséquent, la largeur spectrale d'une impulsion laser est au minimum  $\Delta \mathbf{I} = K \cdot \mathbf{I}^2 / (\Delta t \cdot c)$ , ( $\Delta \mathbf{I} = 10$  nm pour une impulsion de 100 fs à 800 nm), impliquant un changement d'indice de réfraction de  $\Delta n_0 = 4 \cdot 10^{-5}$ . Il faut donc prendre en compte la dispersion en vitesse de groupe lors de l'étude de la propagation d'une impulsion laser sur de longues distances.

Le terme supplémentaire dans l'équation V-1 correspondant à la dispersion de la vitesse de groupe, s'exprime ainsi par :  $-\frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 \mathbf{e}}{\partial t^2}$ , avec  $k'' = \partial^2 k / \partial \mathbf{w}^2$  le coefficient de dispersion de la vitesse de groupe qui peut être estimé, pour l'air, à 0,2 fs<sup>2</sup>/cm à 800 nm<sup>10</sup>. Une impulsion de 60 fs, centrée à 800 nm et limitée en transformée de Fourier s'élargit ainsi de plus de 1 ps par kilomètre de propagation dans l'air.

## 2. Effet Kerr, auto-focalisation, raccourcissement de l'impulsion

Les hautes intensités conduisent aussi à un changement dans l'indice de réfraction, qui peut s'exprimer comme une série de Taylor :

$$\text{V-4} \quad n(\mathbf{w}) = n_0(\mathbf{w}) + n_2(\mathbf{w})I + n_4(\mathbf{w})I^2 + \dots,$$

où  $n_0(\mathbf{w}) = \sqrt{\Re\{1 + \mathbf{c}^{(1)}(\mathbf{w})\}}$  est l'indice de réfraction linéaire (avec  $\mathbf{c}^{(1)} = \mathbf{c}^{(1)} + i\mathbf{c}^{(1)}$ ),

$n_2(\mathbf{w}) = (3\Re\{\mathbf{c}^{(3)}(\mathbf{w}, -\mathbf{w}, \mathbf{w})\}) / (4n_0^2 \mathbf{e}_0 c) > 0$  est l'indice non linéaire du deuxième ordre (avec  $\mathbf{c}^{(3)} = \mathbf{c}^{(3)} + i\mathbf{c}^{(3)}$ ),

$I$  est l'intensité de l'impulsion.



L'absorption est négligeable ( $\chi^{(1)} = 0$ ) car le milieu est considéré comme transparent. Comme les faisceaux lasers sont transversalement non-uniformes et possèdent un profil d'intensité, celui-ci génère un profil radial de l'indice de réfraction non linéaire du matériau. Le centre du faisceau rencontre donc un indice plus élevé et traverse le milieu avec une vitesse plus faible. Par conséquent, le front d'onde du faisceau va devenir progressivement plus courbe (Figure V-1). Cette distorsion est identique à celle imposée par une lentille à gradient d'indice de focale positive<sup>11</sup> (lentille de Kerr).

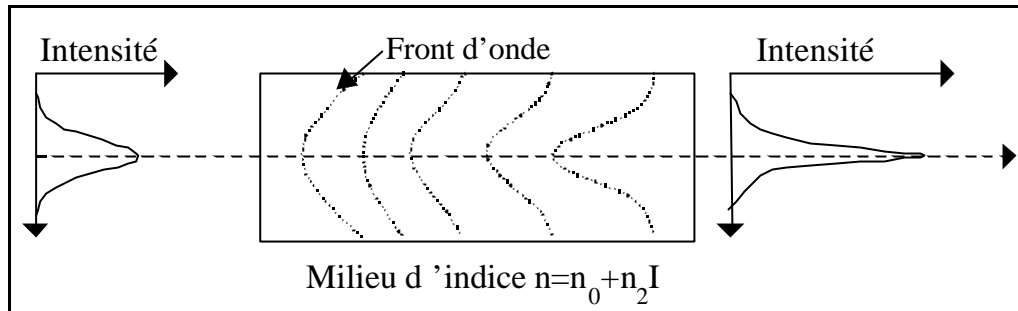


Figure V-1. Distorsion du front d'onde et focalisation d'un faisceau gaussien soumis à un effet d'autofocalisation lors de la traversée d'un milieu non linéaire.

Si le coefficient de réfraction non linéaire de l'air est égal à  $8 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}^{12}$  et la puissance intermédiaire est d'environ  $10^{15} \text{ W/cm}^2$  (correspondant à une impulsion d'énergie de 10 mJ, d'une durée de 100 fs, focalisée sur un diamètre de 100  $\mu\text{m}$ ), la différence d'indice entre le centre et le bord du faisceau est de l'ordre de  $10^{-3}$ . Sur 1 m d'air, la différence de chemin optique, qui est de  $10^{-3} \text{ m}$ , est donc comparable à 1 mm de BK7. Cependant, la lentille Kerr ne se comporte pas comme une lentille mince à cause de l'effet cumulatif : comme le faisceau laser est focalisé, l'intensité augmente et la lentille Kerr devient plus forte. Ceci conduit à un « effondrement catastrophique », où toute l'énergie du faisceau est focalisée en un point. Bien sûr cet effondrement catastrophique n'est pas observé car un mécanisme de défocalisation du faisceau, due à la diffraction, existe.

Enfin, les simulations montrent que l'auto-focalisation peut conduire à un raccourcissement temporel des impulsions<sup>11</sup>. Ceci peut être compris simplement en notant que seules les intensités  $I(t)$  les plus fortes sont focalisées par effet Kerr, raidissant ainsi le front montant de l'impulsion (Figure V-2). En conséquence, il est attendu que la durée des impulsions auto-guidées soit plus courte que l'impulsion de départ. Cependant, la partie de l'impulsion qui n'est pas dans le filament n'est pas raccourcie.

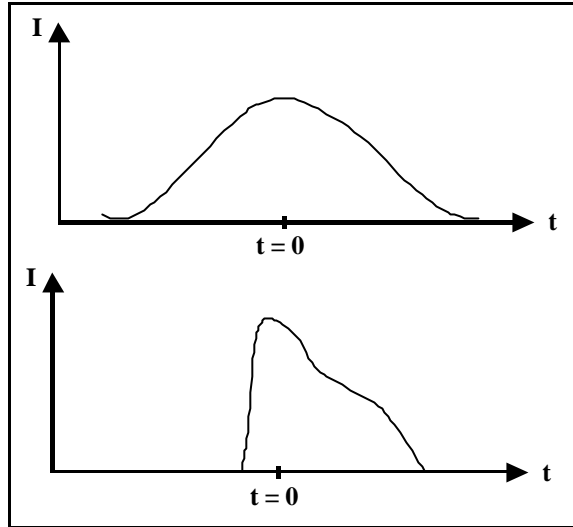


Figure V-2. Raccourcissement de l'impulsion due à l'effet Kerr.

Dans la description précédente il a été supposé que l'indice de réfraction du milieu de propagation peut être écrit comme une série de Taylor :  $n(\mathbf{w}) = n_0(\mathbf{w}) + n_2(\mathbf{w})I + n_4(\mathbf{w})I^2 + \dots$  dont seul le terme  $n_2$  (exceptionnellement le terme  $n_4$ <sup>10</sup>) est pris en compte. Cette hypothèse, impliquant que l'indice de réfraction a une réponse immédiate, est le plus souvent implicite dans les modèles, mais il faut garder à l'esprit qu'elle peut ne pas être valide pour des impulsions très brèves. En effet, l'effet Kerr électronique est le seul à avoir un temps de réponse de l'ordre de la femtoseconde, et donc à être traité comme un phénomène immédiat pour les impulsions ultra-courtes. Pour les gaz non atomiques tels que  $N_2$  et  $O_2$ , la rotation de la molécule ajoute une composante retardée à l'effet Kerr<sup>13</sup>. Cette composante Kerr retardée a le même ordre de grandeur que celle qui est instantanée. Elle s'établit instantanément, mais à cause du déphasage des nombreux modes de rotation impliqués, cette composante décroît exponentiellement sur une durée typique de 70 fs pour l'air<sup>14</sup>.

### 3. Ionisation multiphotonique

Les hautes intensités lasers peuvent donner naissance à une ionisation du milieu de propagation. Mais, aussi longtemps que la durée de l'impulsion reste plus courte que le temps de collision typique dans l'air, (quelques centaines de picosecondes dans des conditions standards<sup>15</sup>), seules l'ionisation multiphotonique et tunnel ont lieu, et l'ionisation par collision peut être négligée.

À 800 nm, 8 et 11 photons sont respectivement nécessaires pour une ionisation élémentaire de  $O_2$  ( $V_{ion.} = 12,1$  eV) et de  $N_2$  ( $V_{ion.} = 15,6$  eV), ce qui requiert des intensités de  $10^{13}$ - $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (pour une probabilité d'ionisation de  $10^{-5}$ - $10^{-4}$ )<sup>16</sup>, alors que dans l'ultraviolet respectivement 3 et 4 photons sont suffisants, ce qui correspond à des intensités de  $10^{10}$ - $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>. Ces intensités sont alors suffisantes pour générer un plasma.

La susceptibilité  $\mathbf{c}$  due à l'ionisation est donnée par :

$$V-5 \quad P_{NL} = \mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{c}_I \mathbf{e} = -\mathbf{e}_0 \cdot \frac{\mathbf{w}^2}{\mathbf{w}^2} \mathbf{e}$$

avec  $P_{NL}$  la polarisation non linéaire,  $\omega$  la pulsation du laser,  $\omega_p = \frac{e^2 \cdot N_e}{\epsilon_0 \cdot m}$  la fréquence de

plasma,  $N_e$  la densité d'électrons libres,  $e$  la charge de l'électron, et  $m$  sa masse. L'ionisation rapide du milieu conduit à la formation de plasma et à une augmentation drastique du coefficient d'absorption, qui à son tour donne lieu à un transfert d'énergie rapide du champ de radiation vers le milieu. Ce processus, appelé rupture induite par laser, se produit quand la densité des électrons libres est supérieure à une valeur critique  $N_{crit}$  définie par :

$$V-6 \quad N_{crit} = \frac{\epsilon_0 \cdot m \cdot \omega^2}{e^2}$$

$c_I$  est alors égale à :

$$V-7 \quad c_I = -\omega_p^2 / \omega^2 = -N_e / N_{crit}$$

La densité critique de plasma à 800 nm est  $N_{crit} = 1,7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ .

La dépendance de  $c_I$  avec le champ électrique provient de la dépendance en intensité du taux d'ionisation multiphotonique. Une équation cinétique simple peut être écrite pour la production d'électrons par l'impulsion laser pour chaque espèce à ioniser :

$$V-8 \quad dN_e(z,t) / dt = R(I)N(z)$$

où  $R(I)$  est le taux d'ionisation dépendant de l'intensité  $I$  et  $N$  est la densité des neutres dans le gaz. Dans le régime d'ionisation multiphotonique on a :<sup>17</sup>

$$V-9 \quad R(I) = R_T \left( \frac{I}{I_T} \right)^a = R_T \left( \frac{|\mathbf{e}|^2}{|\mathbf{e}_T|^2} \right)^a$$

où  $R_T$ ,  $I_T$  et  $\mathbf{e}_T$  sont des constantes à déterminer expérimentalement, et  $a$  est le nombre de photons nécessaires à l'ionisation. Pour ces constantes, les valeurs suivantes peuvent être prises à 800 nm<sup>16</sup> :

- $I_{T,O2} = I_{T,N2} = I_T = 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .
- $R_{T,N2} = 2,5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ ,  $R_{T,O2} = 2,8 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ .
- $a_{N2} \approx 7,5$  et  $a_{O2} \approx 6,5$  pour des intensités inférieures à  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

Ces valeurs sont plus basses que celles calculées à partir du nombre de photons nécessaires pour l'ionisation multiphotonique, qui est de 8 photons pour l'oxygène et de 11 photons pour l'azote à 800 nm. Ceci est donc une indication de la présence d'ionisation tunnel.

En fait, comme  $|\mathbf{e}|^2$  est une fonction dépendante du temps pour une impulsion courte, on obtient d'après les équations V-8 et V-9 :

$$V-10 \quad N_e = N \cdot R_T \int_0^t \left( \frac{|\mathbf{e}(t_1)|^2}{|\mathbf{e}_T|^2} \right)^a dt_1$$

La susceptibilité non linéaire due à l'ionisation multiphotonique est donc donnée par l'expression suivante, à partir de l'équation V-7 :

$$V-11 \quad \mathbf{c}_I = -\frac{N \cdot R_T}{N_{crit}} \int_0^{\tau} \left( \frac{|\mathbf{e}(t_1)|^2}{|\mathbf{e}_T|^2} \right)^a dt_1$$

Cette expression retardée donne lieu à une équation couplée : à chaque instant, il est possible de calculer l'ionisation, qui à son tour donne le taux d'ionisation, et permet de calculer l'intensité à la prochaine étape. Pour des raisons de simplicité, l'intégrale temporelle sur le taux d'ionisation multiphotonique sera approximée par un temps typique d'ionisation  $\mathbf{t}_I$  qui peut être de l'ordre de la durée d'une impulsion laser ou plus court. Ce qui donne alors :

$$V-12 \quad \mathbf{c}_I \approx -\frac{N \cdot R_T \cdot \mathbf{t}_I}{N_{crit}} \left( \frac{|\mathbf{e}|^2}{|\mathbf{e}_T|^2} \right)^a$$

Comme la contribution du plasma à l'indice de réfraction, est proportionnelle à  $N$ , car  $n_2 = (3\mathbf{c}^{(3)})/4n_0^2\mathbf{e}_0c = -(3N_e)/(4N_{crit}n_0^2\mathbf{e}_0c)$ , et de longue durée, elle introduit une partie retardée au changement de l'indice de réfraction non linéaire. Plus précisément, la décroissance du plasma peut être décrite en terme de cinétique de second ordre<sup>18</sup> :

$$V-13 \quad \frac{\partial N_e}{\partial t} = \mathbf{g}N_e - \mathbf{h}N_e - \mathbf{b}_{ep}N_eN_p$$

avec  $N_e$  est la densité d'électrons,

$\mathbf{g}$  le coefficient d'ionisation d'impacte, due au champ électrique externe,

$\mathbf{h}$  le coefficient d'attachement des électrons à  $O_2$ ,

$\mathbf{b}_{ep} = 2,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3/\text{s}$  le coefficient de recombinaison électron-ion pour l'air,

$N_p$  le nombre d'ions positifs.

On suppose que  $N_p = N_e$  et que l'ionisation de l'air est instantanée pour l'échelle de temps considérée ici ( $\sim \text{ns}$ ). Cette ionisation produit une densité électronique initiale  $N_{e,0}$ . Pour des densités initiales au-dessus de  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$  et pour des temps inférieurs à 10 ns, le processus de recombinaison est considéré comme le processus principal impliqué dans la relaxation du plasma donc :  $\partial N_e/\partial t = -\mathbf{b}_{ep}N_e^2$ . La loi de décroissance est alors :

$$V-14 \quad N_e(t) = N_{e,0} / (1 + N_{e,0} \cdot \mathbf{b}_{ep} \cdot t)$$

Pour des densités électroniques typiques de ces filaments de plasma observés,  $N_e \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , le temps de décroissance est de l'ordre de la nanoseconde, c'est à dire beaucoup plus long que la durée d'une impulsion. Donc, la densité de plasma s'accumule tout au long de la durée d'une impulsion.

La formation de plasma mineure en fait l'indice de réfraction à travers deux mécanismes : la libération d'électrons libres et la décroissance de la densité de particules neutres, résultant en une défocalisation. La formation de plasma ne mineure pas seulement la partie réelle de l'indice de réfraction, elle génère aussi une partie imaginaire. En utilisant un modèle de Drude d'électrons libres pour la partie imaginaire, l'indice de réfraction du plasma peut s'exprimer par<sup>19</sup> :

$$V-15 \quad \Delta n = (-1 + i \cdot \mathbf{n}_e / \mathbf{n}) \cdot N_e / 2N_{crit}$$

où  $n_e$  est la fréquence de collision électron-ion,  $\omega$  est la fréquence d'une impulsion laser. Cette expression est seulement valable pour un plasma peu dense, c'est à dire quand  $N_e \ll 2N_{crit}$ . Cette hypothèse, qui empêche le plasma de devenir opaque, est habituellement faite dans les modèles de propagation. Ceci permet de négliger les pertes en énergie dues à l'ionisation multiphotonique pour les calculs. Cette approximation est cependant à manipuler avec prudence dans le cas d'une propagation sur de longues distances.

Enfin, les simulations numériques suggèrent que l'ionisation multi-photonique contribue conjointement à l'élargissement spectral dans les filaments et au fractionnement de l'impulsion, avec l'automodulation de phase, le mélange à quatre ondes et la dispersion en vitesse de groupe<sup>20, 21, 22</sup>.

#### ***4. La filamentation : processus de réapprovisionnement***

Des expériences récentes ont montré que des impulsions lasers de haute puissance crête (de l'ordre du GW) génèrent des filaments stables de lumière qui se propagent dans l'atmosphère sur des distances de plusieurs dizaines de mètres<sup>7,8,42</sup> voir peut être plusieurs kilomètres dans le cas de puissance crêtes térawatts<sup>45</sup>. La compensation de l'autofocalisation par la défocalisation induite par le plasma, généré par ionisation multiphotonique, et conduisant à des filaments stables, est l'explication la plus convainquante.

Pour décrire la filamentation trois modèles ont été proposés. Pour le modèle du foyer mouvant<sup>42</sup> les différentes tranches de temps de l'impulsion focalisent à différentes distances qui dépendent de la puissance dans chaque tranche (équation V-33). Donc un mode confiné intense apparaît qui correspond en fait à la détection intégrée dans le temps des différents points focaux le long de l'axe de propagation. Dans le modèle d'auto-guidage<sup>8,14</sup> l'autofocalisation (due à l'effet Kerr) et la défocalisation par le plasma se combinent pour produire une structure guidante auto-induite, dans laquelle la lumière est guidée. Cette structure (analogue à un guide d'onde) consiste en un cœur faiblement ionisé entouré par une couche d'indice plus élevé. Le modèle de réapprovisionnement dynamique, qui sera décrit en détails par la suite, est un modèle alternatif de propagation longues distances provenant de simulations numériques.

Pour les trois modèles, la filamentation peut être vue comme étant gouvernée par un équilibre entre l'auto-focalisation (due à l'effet Kerr) et la défocalisation due à la diffraction naturelle et sur le plasma issu de l'ionisation multiphotonique (Figure V-3). Ainsi, initialement la dépendance en intensité de l'indice de réfraction dans l'air conduit à l'auto-focalisation. Une fois que l'intensité du laser a atteint la valeur nécessaire pour induire une ionisation partielle de l'air, la décroissance résultante de l'indice de réfraction due au plasma de faible densité conduit à un effet de défocalisation qui contrecarre l'auto-focalisation. Lorsque, à cause de la défocalisation, le diamètre du faisceau augmente, l'intensité retombe en dessous de la valeur nécessaire pour ioniser l'air et l'effet de défocalisation lié au plasma stoppe. Le processus d'auto-focalisation reprend alors le dessus et le cycle précédent recommence.

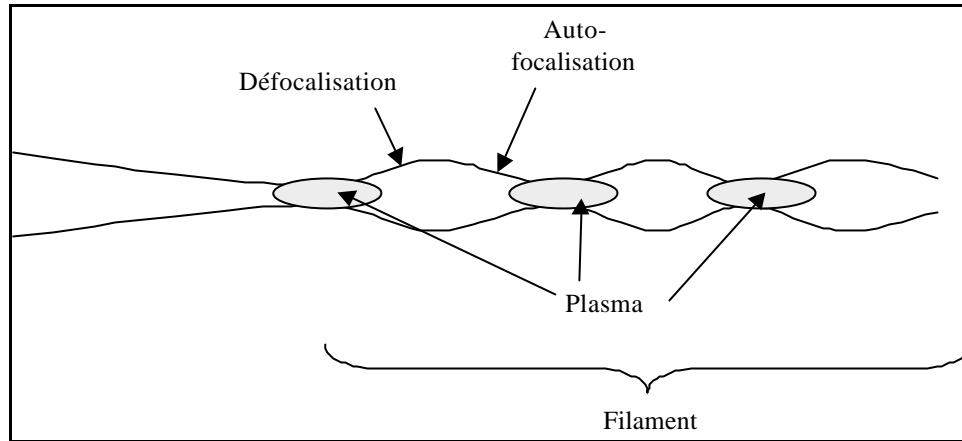


Figure V-3. Schéma de principe de la propagation d'un filament dans l'air.

Dans le filament, une intensité critique qui correspond à l'équilibre entre l'effet Kerr d'un côté, la diffraction et la défocalisation due à l'ionisation de l'autre, peut donc être définie. Celle-ci s'exprime par :

$$V-16 \quad I_{crit} = \frac{1}{n_2 \cdot k^2} \left( 1 + k^2 \cdot w^2 \frac{N}{N_{crit}} R(I_{crit}) \mathbf{t}_l \right)$$

avec  $w$  le rayon du filament et  $\mathbf{t}_l$  de l'ordre de la durée d'une impulsion (100 fs).

Dans notre cas, l'évaluation de la deuxième expression entre parenthèses, montre qu'elle est grande devant 1, l'unité correspondant à la diffraction dans l'air neutre. Ceci signifie donc que la diffraction classique n'est pas très importante pour la formation et le transport des filaments, qui sont donc gouvernés principalement par l'équilibre entre l'auto-focalisation due à la lentille de Kerr et la défocalisation induite par l'ionisation. L'introduction du taux d'ionisation multiphotonique conduit alors à :

$$V-17 \quad I_{crit} \approx I_T \left( \frac{\frac{n_2 \cdot I_T}{N}}{\frac{N}{N_{crit}} R_T \cdot \mathbf{t}_l} \right)^{\frac{1}{a-1}}$$

L'intensité critique a ainsi une valeur d'environ  $7 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .

Une puissance critique<sup>23</sup> ( $P_{crit} = 3,77 \cdot I^2 / 8 \mathbf{p} \cdot n_0 \cdot n_2$ ) pour laquelle l'effet d'autofocalisation prend le dessus sur la diffraction classique, peut aussi être introduite. Si la puissance totale dans le filament égale cette puissance critique, qui est d'environ 2 GW dans notre cas, le rayon du filament peut être estimé avec la formule :

$$V-18 \quad w \approx \sqrt{\frac{P_{crit}}{\mathbf{p} \cdot I_{crit}}}$$

Ce qui aboutit à un rayon de 30  $\mu\text{m}$  pour les paramètres de l'air. Ce rayon est très proche des rayons obtenus expérimentalement<sup>7,8</sup> compris entre 35 et 50  $\mu\text{m}$  et tend à confirmer que la diffraction peut être négligée en première approximation.

Des trois modèles, le modèle du foyer mouvant montre les limites les plus importantes pour l'interprétation de certains fait expérimentaux. Ainsi, si au départ, le faisceau est

légèrement focalisé avec une lentille, au lieu de se propager librement, la filamentation est observée expérimentalement même après le foyer de la lentille<sup>14</sup>. Ceci ne peut être expliqué par le modèle du foyer mouvant. Par rapport à l'auto-guidage, le troisième modèle présente une image plus dynamique du phénomène de filamentation et retrouve pour la longueur des filaments, par exemple, les résultats du foyer mouvant. Pour ces raisons, le modèle de réapprovisionnement dynamique sera décrit tel qu'il a été implémenté dans des modèles numériques récents<sup>24,25</sup> (Figure V-4).

A partir de  $z = 0$ , le raccourcissement de l'impulsion due à l'auto-focalisation contracte celle-ci temporellement, jusqu'à ce que cette contraction soit stoppée par la dispersion normale de la vitesse de groupe, qui a tendance à élargir la durée de l'impulsion. Ensuite à  $z = 0,4$  ( $z$  s'exprime en longueur de Rayleigh) la partie arrière de l'impulsion est diffractée par le canal de plasma créé par la partie avant et forme un anneau spatial, qui est susceptible d'expliquer le phénomène d'émission conique (Cf § I.A.6). Lorsque l'intensité de la partie avant de l'impulsion décroît à cause de la diffraction, le mécanisme de génération de plasma s'arrête. A partir de la puissance de l'impulsion qui provient de la diffraction de la partie arrière, un second pic se forme alors par auto-focalisation ( $z = 0,8$ ). On parle alors d'approvisionnement du second pic par la puissance provenant de la partie arrière de l'impulsion. Lorsque la propagation continue, le premier pic décroît, pendant que le second se développe puis décroît à son tour, dans un cycle.

Ces processus de décroissance de l'impulsion et de réapprovisionnement peuvent avoir lieu plusieurs fois à la suite, donnant l'impression d'avoir un filament. Les simulations numériques montrent que le filament a une longueur de l'ordre d'une longueur de Rayleigh<sup>10,25</sup>. La puissance qui peut être mise dans un seul filament dépend beaucoup du profil spatial du faisceau laser. Ainsi, si celui-ci a un profil propre, un seul filament peut être obtenu avec une puissance du faisceau qui peut aller jusqu'à 150 GW<sup>8</sup>. Mais, pour des impulsions avec des puissances crêtes plusieurs fois au-dessus de la puissance critique, même si le profil spatial du laser est parfaitement gaussien, la symétrie cylindrique du faisceau peut être brisée par une instabilité transverse modulée<sup>26</sup> due à la turbulence de l'air, conduisant le faisceau à se séparer spatialement en plusieurs filaments<sup>27</sup>.

Lors de la filamentation, le champ subit des pertes dues à la création du plasma mais aussi dues à l'absorption non linéaire provenant de la partie imaginaire de l'indice de réfraction de celui-ci. Des simulations montrent que seulement quelques pour-cent de l'énergie est perdue pendant chaque cycle<sup>27</sup>. La plus grande partie de l'énergie optique défocalisée reste donc disponible pour générer de nouveaux filaments.

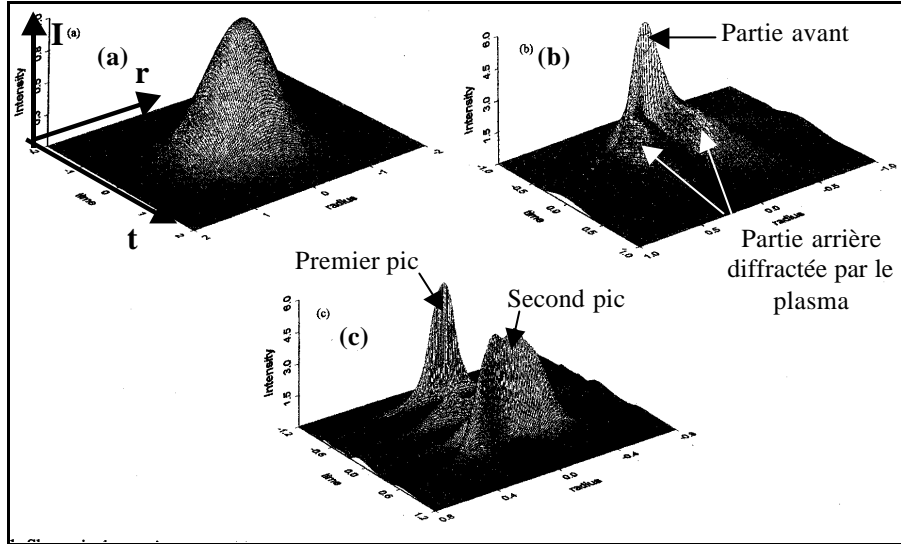


Figure V-4. Vue de la distribution d'intensité spatio-temporelle d'un faisceau initial gaussien se propageant dans l'air à (a)  $z = 0$ , (b)  $z = 0,4$ , (c)  $z = 0,8$  ( $z$  est en unité de longueur de Rayleigh). L'intensité est normalisée à l'intensité du pic d'entrée<sup>10</sup>.

### 5. L'automodulation de phase

Les intensités très importantes atteintes à l'intérieur des filaments sont suffisantes pour que l'automodulation de phase ait lieu. L'automodulation de phase est l'analogie spectrale de l'effet Kerr, ces deux effets étant générés par l'indice de réfraction non linéaire  $n_2$ . La partie non linéaire de l'indice de réfraction induit un changement de phase, qui à son tour génère un changement de fréquence. Le terme de déphasage induit par l'indice de réfraction d'ordre deux dans un milieu de longueur  $L$  s'écrit :

$$V-19 \quad \Delta \mathbf{j}_{SPM}(t) = \frac{2\mathbf{p}}{I_0} n_2 I(t) L$$

L'expression V-19, sans le signe négatif, qui s'écrit dans sa forme intégrale :

$$V-20 \quad B = \int_0^L \frac{2\mathbf{p}}{I} n_2 I(z, t) dz$$

est aussi appelée intégrale de rupture ou intégrale  $B$ .

La phase de l'onde en sortie du milieu dépend de l'intensité instantanée de l'impulsion. Les variations de l'amplitude de l'impulsion ont un effet sur la phase, on parlera alors d'automodulation de phase. Dans l'approximation quasi-continue, selon l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable, la pulsation est approximée à « chaque instant » par la dérivée temporelle de la phase :

$$V-21 \quad \Delta \mathbf{w}(t) = \mathbf{w}(t) - \mathbf{w}_0 = -\frac{\partial}{\partial t} \Delta \mathbf{j}(t)$$

La variation de la pulsation à la sortie du milieu sera donc :



$$V-22 \quad \Delta \mathbf{w}(t) = -\frac{2\mathbf{p}}{I_0} n_2 \frac{\partial I(t)}{\partial t} L$$

Ainsi, la pulsation dévie de celle de l'onde porteuse par un terme proportionnel au coefficient non linéaire, à la dérivée temporelle de l'intensité et à la longueur de propagation. Le front montant de l'impulsion génère une variation de pulsation de signe opposé à celle du front descendant. De nouvelles fréquences sont ainsi créées dans les différentes parties de l'impulsion. Rappelons que ceci n'est qu'une approximation car la notion de fréquence dépendant du temps n'a pas de sens mathématique.

De façon plus rigoureuse, le spectre est normalement donné par la transformée de Fourier :

$$V-23 \quad |E(\mathbf{w})|^2 = \left| \int_0^\infty \mathbf{e}(t) e^{-i\mathbf{w}_0 t + i\Delta j(t)} dt \right|^2$$

qui dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable peut être évaluée avec  $\mathbf{e}(t)$  à l'extérieur de l'intégrale.

La Figure V-5 montre cette variation de la fréquence dans le cas d'une impulsion de profil temporel gaussien. Dans le cas où  $n_2$  est positif (ce qui est le cas pour les matériaux transparents dans le visible et en particulier dans l'air), cette automodulation de phase va produire un glissement des fréquences situées sur le front avant de l'impulsion (Figure V-5) vers des fréquences plus courtes donc des longueurs d'onde plus grandes (infrarouges dans le cas d'impulsions incidentes à 800 nm). De même, les fréquences du front arrière de l'impulsion vont se décaler vers les fréquences plus grandes donc les longueurs d'onde plus courtes (visible et ultraviolet). Il en résulte un élargissement du spectre et donc la possibilité d'obtenir des impulsions plus courtes. Mais ce phénomène, ayant lieu dans des milieux dispersifs, s'accompagne en même temps d'un élargissement temporel de la durée d'impulsion. Il est à noter que l'élargissement spectral peut être de plusieurs dizaines de nanomètres voir de plusieurs centaines de nanomètres selon les milieux de propagation. On parle alors de continuum ou de supercontinuum de lumière blanche<sup>6,10,28,34</sup>.

L'auto-modulation de phase est généralement considérée, dans notre cas, comme le processus dominant impliqué dans la génération du continuum<sup>4,5,29</sup>. Ainsi, en partant d'une enveloppe gaussienne du champ  $E$  et en lui appliquant l'auto-modulation de phase, avec des paramètres typiques de nos expériences, le spectre correspondant a été calculé par transformée de Fourier. Ainsi, avec ce calcul, l'élargissement spectral généré par l'auto-modulation de phase au bout d'une distance de 100 m, pour une impulsion de départ à 800 nm, de 100 fs de durée et de  $2.10^{15}$  W/m<sup>2</sup> d'intensité crête, s'étendrait de 300 nm à 1,3 μm.

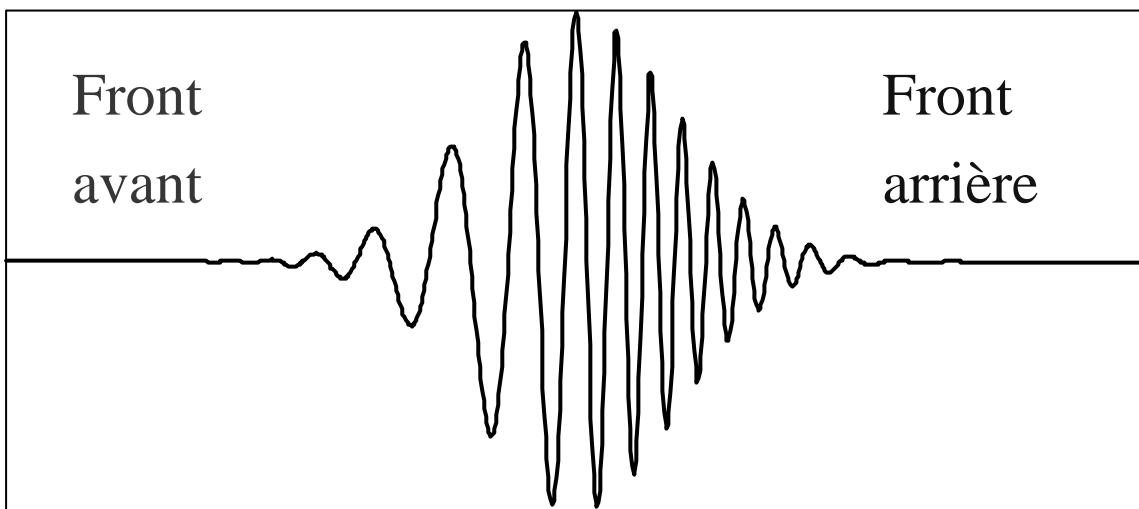
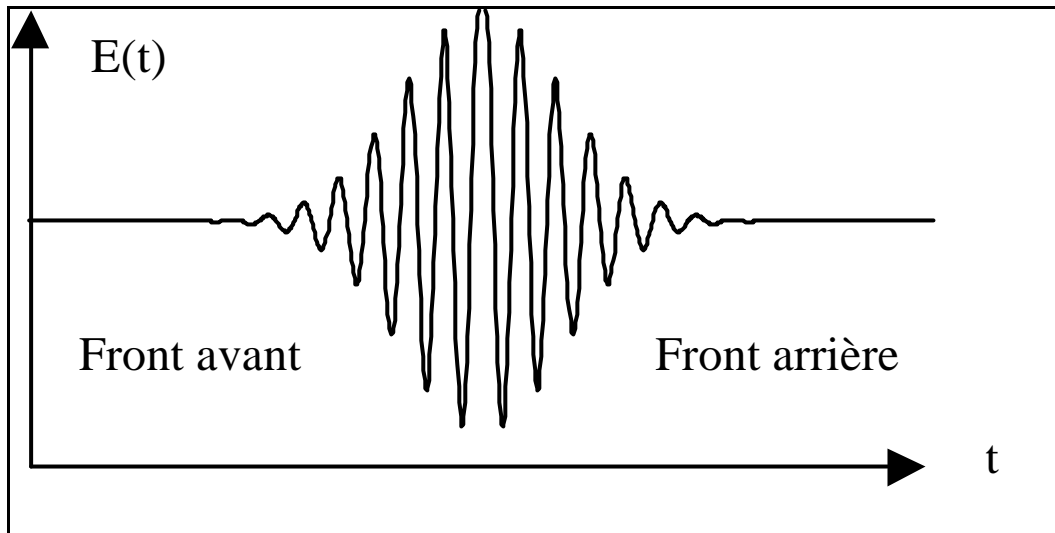


Figure V-5. En haut : Champ électrique de l'impulsion à l'entrée du milieu Kerr. En bas : Effet de l'auto-modulation de phase sur le champ électrique.

De plus, l'automodulation de phase, conjointement avec la dispersion de la vitesse de groupe, est à l'origine du fractionnement temporel de l'impulsion, lorsque ces dernières sont de quelques centaines de femtosecondes<sup>21,30</sup>. Ces effets ont ainsi été vérifiés expérimentalement pour des filaments dans des milieux condensés<sup>20,31</sup>, et plus tard dans l'air par Lange et al<sup>32</sup>.

## 6. L'émission conique

Les filaments s'accompagnent généralement d'une émission aux petits angles de la partie anti-Stokes du spectre de lumière blanche. Cette émission conique apparaît sur un écran comme un arc-en-ciel concentrique avec des couleurs allant du rouge à l'intérieur au bleu à l'extérieur (Figure V-6). Les différentes expériences réalisées<sup>7,33</sup> sur la dépendance en angle des différentes longueurs d'onde donnent des résultats similaires, avec un angle maximal pour l'émission conique, de  $0,12^\circ$  pour une longueur d'onde de 500 nm, la fondamentale étant centrée sur 800 nm. Il est à noter qu'aucun anneau correspondant à la partie Stokes du spectre de lumière blanche n'a pour le moment été observé et que l'émission conique a lieu tout au long du filament<sup>33</sup>. De plus, l'émission conique est un phénomène cohérent puisque

des interférences ont été observées lorsque les émissions coniques, provenant de deux filaments distincts, se recouvraient spatialement<sup>7</sup>.



Figure V-6. Photographie de l'émission conique d'un filament<sup>7</sup>. La tache blanche au centre correspond au filament.

Cette émission conique est difficile à interpréter, comme en témoignent les nombreuses hypothèses avancées. Certains ont tenté d'expliquer cette émission conique comme un processus Èerenkov<sup>34</sup>, ou comme un processus paramétrique à quatre photons<sup>35</sup>. Plus récemment, des calculs numériques ont permis de très bien reproduire les angles des différentes longueurs d'onde<sup>33</sup>. L'émission conique serait ainsi due à l'auto-modulation de phase dans le plasma produit par le filament. Ces calculs ne tiennent cependant pas compte des effets dus à la dispersion de la vitesse de groupe et notamment de la déformation de l'enveloppe pour les impulsions courtes.

La description de la filamentation ou de l'émission conique se fait donc à partir de simulations numériques. Dans le paragraphe suivant, l'équation de propagation sur laquelle se basent la plupart des modèles sera donc présentée.

## 7. L'équation de propagation

Comme les intensités considérées sont bien en-dessous des intensités relativistes, les effets de la composante magnétique de l'onde électro-magnétique peuvent être négligés. L'équation d'onde dans un milieu polarisable avec perte, s'écrit directement à partir des équations de Maxwell :

$$V-24 \quad \nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mathbf{m} \cdot \mathbf{s} \cdot \frac{\partial E}{\partial t} + \mathbf{m}_0 \cdot \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

avec  $\mathbf{s}$  la conductivité du milieu et  $\mathbf{m}$  la susceptibilité magnétique.

Ici, la propagation de l'impulsion se fait dans la direction  $z$  et le champ  $E$  est polarisé suivant  $x$ . La polarisation  $P$  se décompose en ses composantes linéaires et non linéaires :  $P = P_L + P_{NL} = \mathbf{e}_0 (\mathbf{c}_L + \mathbf{c}_{NL}) E$ . Toutes les quantités sont scalaires car le milieu est isotrope et le champ  $E$  est polarisé linéairement.

Lorsque le faisceau laser a une symétrie cylindrique, avec une variable radiale  $r$  lentement variable le champ  $E$  s'écrit comme :

$$V-25 \quad E(x, y, z, t) = \mathbf{e}(r, z, t) \cdot (e^{i(k \cdot z - \omega t)} + cc)$$

Avec l'approximation de l'enveloppe lentement variable, qui signifie que l'enveloppe  $\mathbf{e}$  change beaucoup plus lentement que l'oscillation de l'impulsion :

$$V-26 \quad |k \cdot \mathbf{e}| \gg \left| \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial s} \right|; |\mathbf{w} \cdot \mathbf{e}| \gg \left| \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} \right| \text{ avec } s = z \text{ ou } r.$$

Et en séparant le laplacien en sa partie transverse et longitudinale dans l'équation V-24 ainsi qu'en remplaçant  $P$  en fonction de  $E$ , on obtient alors :

$$V-27 \quad \nabla_{\perp}^2 E + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \mathbf{m}_0 \cdot \mathbf{s} \cdot \frac{\partial E}{\partial t} - \frac{1}{c^2} \cdot (1 + \mathbf{c}_L + \mathbf{c}_{NL}) \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0$$

avec  $\mathbf{c}_L = \mathbf{c}^{(1)}$  la susceptibilité électrique linéaire et  $\mathbf{c}_{NL} = \mathbf{c}^{(3)} |E|^2$ .

Enfin, en introduisant l'indice de réfraction linéaire et en tenant compte de V-26, l'équation devient :

$$V-28 \quad \boxed{\nabla_{\perp}^2 \mathbf{e} + 2i \left( k \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial z} + \frac{\mathbf{w} n_0^2}{c^2} \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} \right) + i \cdot \mathbf{w} \cdot \mathbf{m}_0 \cdot \mathbf{s} \cdot \mathbf{e} + \frac{\mathbf{w}^2}{c^2} \mathbf{c}_{NL} \cdot \mathbf{e} = 0}$$

Cette équation est appelée équation de Schrödinger non linéaire. Ici, la contribution non linéaire de l'indice de réfraction est, par hypothèse, bien plus petite que sa contribution linéaire et la dispersion de la vitesse de groupe est négligée. Cette dernière approximation n'est valable que sur les premières dizaines de mètres.

Le premier terme  $\nabla_{\perp}^2 \mathbf{e}$  de l'équation V-28 tient, bien sûr, compte de la diffraction du faisceau. La dispersion étant négligée, l'impulsion se propage dans le milieu en gardant sa forme aussi longtemps que  $\mathbf{s}$  et  $\mathbf{c}_{NL}$  ne dépendent pas de  $z$ . Si  $\mathbf{e}$  est de la forme :

$$V-29 \quad \mathbf{e}(r, z, t) = \mathbf{e} \left( r, z - \frac{c}{n_0} t \right)$$

Son insertion dans l'équation V-28 montre que :

$$V-30 \quad k \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial z} = - \frac{\mathbf{w} n_0^2}{c^2} \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t}$$

Et il ne reste alors qu'une équation dépendant seulement des coordonnées radiales. Dans notre approximation une impulsion reste stable dans sa forme temporelle lorsqu'elle se propage, ce qui n'est pas le cas en réalité.

Le terme non linéaire contenant  $\mathbf{c}_{NL}$  décrit l'auto-focalisation due à l'effet Kerr optique ( $\mathbf{c}^{(3)}$ ) aussi bien que l'auto-défocalisation causée par l'ionisation multiphotonique.

$$V-31 \quad \mathbf{c}_{NL} = \mathbf{c}^{(3)} |\mathbf{e}|^2 + \mathbf{c}_I \left( |\mathbf{e}|^2 \right)$$

En utilisant l'équation V-12 on obtient :

$$V-32 \quad \mathbf{c}_{NL} \approx \mathbf{c}^{(3)} |\mathbf{e}|^2 - \frac{N.R_T.t_1}{N_{crit}} \left( \frac{|\mathbf{e}|^2}{|\mathbf{e}_T|^2} \right)^a$$

Dans cette équation les deux contributions à  $\mathbf{c}_{NL}$  sont de signes opposés. Le signe positif de la non-linéarité Kerr conduit à une augmentation de l'indice de réfraction non linéaire pour les hautes intensités, la non-linéarité due à l'ionisation a l'effet opposé et défocalise le faisceau laser.

Il est à noter que l'équation de Schrödinger non linéaire V-28 est basée sur l'hypothèse d'une enveloppe lentement variable et sur plusieurs approximations<sup>36</sup>. La dispersion de la vitesse de groupe a ainsi été négligée. L'hypothèse de l'enveloppe lentement variable ne reste valable que pour des durées d'impulsion supérieures à 10 fs dans le visible. Cependant, des impulsions, initialement plus longues, peuvent se compresser jusqu'à avoir des fronts de montée ou de descente aussi courts et pour lesquels l'approximation de l'enveloppe lentement variable n'est plus valide. De plus, il faut aussi prendre en compte l'auto-raccourcissement de l'impulsion.

Même si les effets linéaires et non linéaires sont bien compris individuellement, il est très difficile d'avoir une vision exacte de la filamentation où tous ces effets ont lieu en même temps et interagissent entre eux. Les simulations numériques pour de longues distances demandent des temps de calcul considérables. Cependant, certaines formules sont utilisables en première approximation. Ainsi, la distance  $z_f$  à laquelle s'autofocalise un faisceau initialement gaussien de puissance  $P$  est donnée par une formule obtenue numériquement<sup>23</sup> :

$$V-33 \quad \frac{1}{z_f(P)} = \frac{1}{f} + \frac{\sqrt{(\sqrt{P/P_{crit}} - 0,852)^2 - 0,0219}}{0,367.k.a^2}$$

avec  $f$  la distance focale de la lentille de focalisation,  $a$  le rayon du faisceau laser et  $P_{crit}$  la puissance critique définie précédemment. Le milieu est ici isotrope, le champ transverse et la réponse du milieu instantanée, donc  $n_2 I$  ne dépend pas explicitement du temps. De plus, on fait l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable.

Les expériences restent évidemment nécessaires pour avoir une idée plus précise de certaines caractéristiques très importantes pour notre application lidar comme le spectre à l'intérieur du filament, et la distance de filamentation. De plus, la dépendance angulaire du continuum généré, qui est fondamentale pour le lidar, n'a jamais été étudiée. Pour réaliser certaines de ces expériences, impossibles en laboratoire, comme la propagation horizontale sur de longues distances, et surtout pour utiliser les filaments de lumière blanche comme source pour un lidar multispectral, il a été nécessaire de construire un système comprenant un laser térawatt et une détection lidar embarqués. Ce système, appelé Teramobile, va être décrit dans la partie suivante.

## II. Le système Teramobile

Le système Teramobile est constitué d'une chaîne laser femtoseconde térawatt et d'un système de détection lidar se trouvant logés, ensemble, dans un conteneur standard ISO 20 pour que le système soit mobile. Cette mobilité est très importante car elle permet de réaliser

des campagnes de mesures sur des sites très différents, adaptés aux types d'expériences désirées. Par exemple, le système peut être placé sur des sites sensibles, en terme de pollution, pour faire des campagnes lidar ou être amené dans un lieu spécialisé pour réaliser des expériences utilisant la haute tension. Cependant, le fait que le système soit dans un conteneur va imposer de nombreuses contraintes sur la conception du laser en lui-même (réduction de la taille...). Il est ainsi très difficile de garder une grande stabilité thermique, nécessaire au fonctionnement du laser, à cause de l'espace restreint dont on dispose et de la chaleur produite par le système laser.

## A. La chaîne laser

La chaîne laser utilisée pour le projet a été construite par Thales Laser (Figure V-7). Cette chaîne a été adaptée d'un laser commercial mais elle est beaucoup plus compacte (2x3 m). Elle comprend différents éléments (Figure V-8), dont les rôles et les caractéristiques seront décrits plus en détails dans les paragraphes suivants. Le premier élément est un oscillateur Ti:Sa à auto-blocage des modes (FemtoSource Compact Pro) qui délivre des impulsions de quelques nanojoules et d'environ 30 fs. Il est ensuite nécessaire d'amplifier l'énergie du faisceau pour avoir en sortie de la chaîne des impulsions de plusieurs centaines de millijoules et de 65 fs de durée. Pour pouvoir amplifier sans endommager les optiques, l'impulsion doit être étirée avant de l'amplifier. Plusieurs étages d'amplification sont utilisés à la suite : un amplificateur régénératif et deux amplificateurs à quatre passages. Enfin, après avoir obtenu l'énergie désirée, l'impulsion est compressée. L'ensemble étireur-amplificateurs-compresseur constitue ce que l'on appelle l'amplification à dérive de fréquence (Chirped Pulse Amplifier (CPA))<sup>37</sup> (Figure V-9).



Figure V-7. Photographie de l'ensemble de la chaîne laser du Teramobile avant qu'elle ne soit placée dans le conteneur.

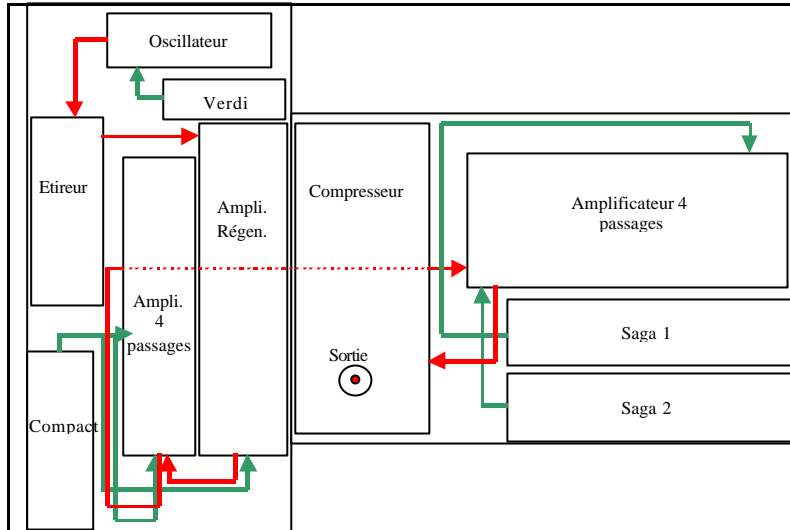


Figure V-8. Schéma simplifié de la chaîne femtoseconde térawatt utilisée dans le Teramobile. En vert sont représentés les faisceaux de pompe et en rouge le trajet d'impulsion femtoseconde.

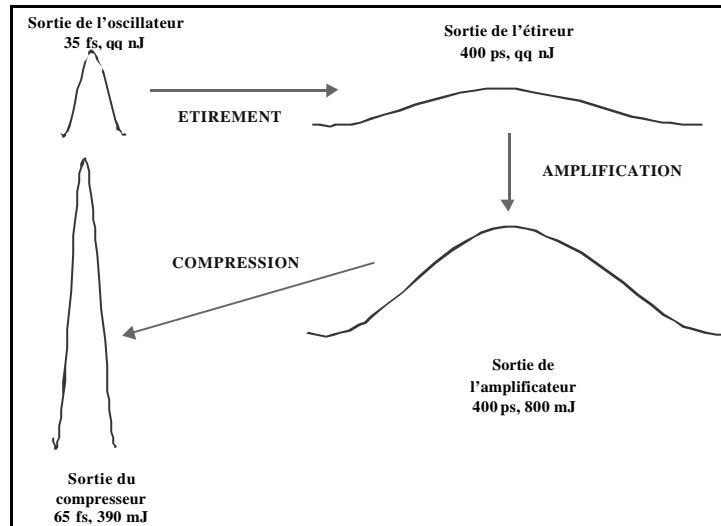


Figure V-9. Principe de l'amplification à dérive de fréquences (CPA) et caractéristiques du système Teramobile.

### 1. L'oscillateur FemtoSource Compact Pro

Dans la première partie de ce paragraphe le principe général d'obtention des impulsions femtosecondes sera détaillé, puis le cas particulier de blocage des modes sur lequel repose notre oscillateur sera décrit.

Considérons  $m$  modes longitudinaux d'une cavité avec des oscillations sinusoïdales de fréquences angulaires  $\omega_i$ , de phases identiques au temps  $t = 0$  et d'amplitude égale  $E$ . De plus, supposons que  $\omega_{i+j} - \omega_i = j \cdot \Delta\omega$ ,  $j$  étant un entier et  $\Delta\omega$  un intervalle spectral fixe. A  $t = 0$ , l'amplitude résultante est  $E_T = m \cdot E$ , puisque toutes les composantes sont alignées suivant l'axe réel de la représentation de Fresnel (Figure V-10-a). A un temps  $D$  plus tard, le vecteur résultant a tourné d'un angle égal à  $\omega_i \cdot D$  et la différence d'angle  $q$  entre deux modes adjacents sera  $q = \Delta\omega \cdot D$  (Figure V-10-b). Quand  $q = 2\pi/m$  l'amplitude résultante  $E_T$  est

nulle (Figure V-10-c). Ceci se produit à chaque temps  $\Delta t = \Delta t$ , avec  $\Delta t = 2p/m\Delta w$ . Plus le nombre de modes  $m$  est grand, plus le temps  $\Delta t$  pour que l'amplitude passe de son maximum à zéro est court, et donc plus l'impulsion est brève. A chaque fois que  $q = 2jp$ ,  $E_T$  atteint de nouveau son maximum, et ceci arrivera à chaque temps  $T = 2jp/\Delta w$  (Figure V-10-d). Pour résumer, pour un grand nombre de modes  $m$  et un intervalle spectral  $\Delta w$ , l'amplitude résultante atteindra périodiquement son maximum, avec une période  $T$  et tombera à zéro très vite au temps  $j.T + \Delta t$ . Cette représentation simple illustre le rôle de la phase dans les interférences constructives et destructives entre les différents modes. Notons que dans le cas d'une cavité résonante de longueur  $l$ ,  $\Delta w = 2pc/2l$  et donc  $T = 2l/c$ . La sortie du laser consiste ainsi en une séquence périodique d'impulsions au lieu de juste une seule impulsion. La largeur temporelle de chaque impulsion sera inversement proportionnelle au nombre de modes contribuant à l'oscillation. Les impulsions qui sont obtenues en supposant que les phases initiales sont rigoureusement égales sont dites limitées en transformée de Fourier et le laser est dit à blocage des modes.

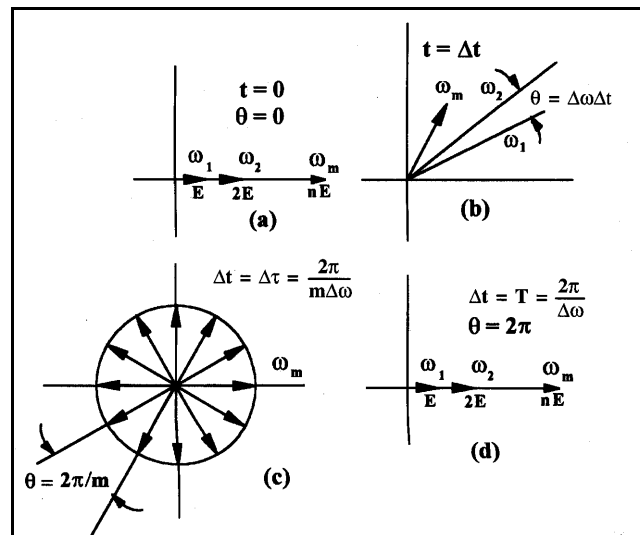


Figure V-10. Représentation de Fresnel de  $m$  modes. La somme des vecteurs représente l'amplitude du champ à l'intérieur de la cavité laser à différents temps, quand tous les modes sont supposés être en phase au temps  $t = 0$ .

Plusieurs méthodes existent pour obtenir ce blocage des modes<sup>38</sup> : soit des méthodes actives résultant par exemple de la modulation des pertes de la cavité à l'aide d'un cristal acousto-optique, soit des méthodes passives résultant de l'insertion d'un absorbant saturable dans la cavité pour sélectionner une seule impulsion. On va maintenant décrire brièvement le principe de notre oscillateur qui repose sur un laser Ti:Sa à auto-blocage des modes, cas particulier de la méthode passive.

Dans une cavité avec les bonnes conditions pour l'auto-blocage des modes, les impulsions se raccourcissent temporellement et stabilisent leur durée. En fait, le changement de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité dans le milieu amplificateur a des conséquences très importantes sur la structure temporelle de l'onde laser. L'intensité  $I(t)$  étant une fonction variant rapidement avec le temps, les variations de l'indice de réfraction avec l'intensité suivent l'équation :  $n = n_0 + n_2 I(t)$  qui implique un changement rapide dans la phase de l'onde en fonction du temps. Cette auto-modulation de la phase élargit le spectre et raccourcit ainsi sa durée. Un équilibre est alors atteint entre ce processus de raccourcissement et la dispersion de la vitesse de groupe, qui tend à rallonger l'impulsion mais qui est compensée dans notre cas par un jeu de miroirs dispersifs. La compensation entre ces deux phénomènes donne



naissance à une impulsion qui voyage dans la cavité en gardant sa forme. Cette impulsion est appelée un quasi-soliton. Ici, le contrôle de la vitesse de groupe à l'intérieur de la cavité par les miroirs dispersifs est donc essentiel.

La Figure V-11 montre la configuration en X du FemtoSource Compact Pro. Le cristal de Ti:Sa est pompé par un laser continu à travers un miroir de couplage. Dans notre cas, un laser de pompe YAG:Nd<sup>3+</sup> de 5 W (Verdi de Coherent) est utilisé. Le jeu de miroirs dispersifs sert à compenser la dispersion de la vitesse de groupe due au cristal de Ti:Sa. L'utilisation de ces miroirs intra-cavité à la place de prismes permet d'obtenir un meilleur contrôle de la dispersion, une stabilité et une reproductibilité plus grande. Le processus d'auto-blocage des modes provient du milieu amplificateur (ici le Ti:Sa). Ce milieu amplificateur est non linéaire, ce qui implique que son indice de réfraction est fonction de l'intensité (Effet Kerr, Cf § I.A.2). L'indice de réfraction n'est donc pas homogène lorsqu'une onde gaussienne passe à travers le milieu. Si  $n_2$ , le coefficient non linéaire de l'indice de réfraction, est positif, la réfraction est alors plus forte sur l'axe du faisceau. Ainsi, le milieu amplificateur se comporte comme une lentille convergente qui focalise le faisceau. L'auto-focalisation est plus importante pour les fortes intensités, ce qui signifie que les maxima d'intensité de la cavité laser seront beaucoup plus focalisés que les minima, pour lequel la focalisation sera négligeable. Ces forts maxima d'intensité sont habituellement moins sujets aux pertes dans la cavité que les plus faibles intensités et donc croissent au détriment de celles-ci.

Ce type de laser a cependant le défaut de ne pas fonctionner en régime pulsé spontanément. Aussi longtemps qu'aucune fluctuation importante d'intensité n'augmente jusqu'à créer un effet de lentille Kerr suffisamment fort, le régime continu prévaut sur le régime pulsé. Pour amorcer le régime pulsé, on peut alors perturber légèrement la longueur de la cavité (en déplaçant un des miroir) pour créer une impulsion d'intensité qui déclenchera le processus. Ce type de blocage des modes par lentille Kerr conduit à d'excellents résultats pour la durée d'impulsion (durée courte), aussi bien que pour la stabilité, ce qui fait qu'il est aujourd'hui parmi les systèmes les plus répandus.

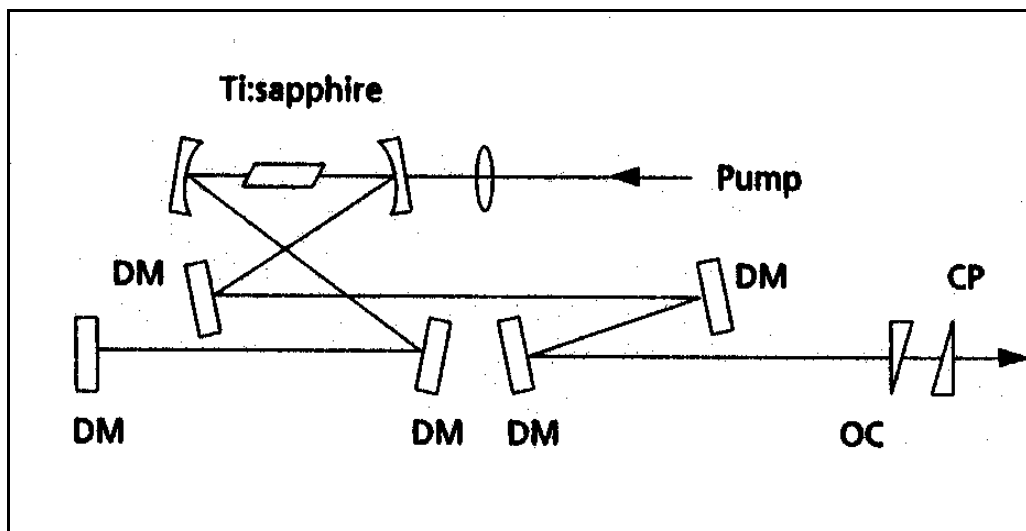


Figure V-11. Schéma de la cavité en X du FemtoSource Compact Pro. Les miroirs dispersifs sont notés DM, le miroir de sortie OC et la lame de compensation CP.

L'oscillateur utilisé dans le système Teramobile produit une impulsion d'environ 30 fs de durée et de 32 nm de largeur spectrale, centrée sur 792 nm. En sortie de l'oscillateur la puissance moyenne est de 550 mW lorsque la cavité fonctionne en régime continu et de 450 mW en régime pulsé avec une fréquence de 76 MHz. La taille du faisceau est alors de 1 mm de diamètre en sortie de l'oscillateur. Le faisceau est ensuite étiré avant d'être amplifié.

## 2. L'étireur

L'étireur permet d'allonger temporellement les impulsions en faisant parcourir aux différentes longueurs d'onde des chemins optiques différents. Pour cela il est nécessaire d'utiliser des systèmes dispersifs en longueurs d'onde tels que des réseaux, qui sont plus dispersifs que les prismes. Pour ensuite comprimer l'impulsion il faut un système dont le signe de la dispersion est l'opposé de l'étireur. Pour des raisons de place et de taille des optiques le compresseur est constitué de deux réseaux parallèles. L'étireur (Figure V-12), qui doit avoir une dispersion de signe opposée est lui constitué par un système de deux réseaux  $R_1$  et  $R_2$  entre lesquels est intercalé un système optique afocal de grandissement  $-1$  composé, par exemple, de deux lentilles identiques, de distance focale  $f$  ou d'un miroir et d'une lentille. Le deuxième réseau est orienté de façon à être parallèle à l'image du premier réseau à travers le système afocal. Les deux réseaux sont dit anti-parallèles. Le dièdre sert à replier le faisceau diffracté sur lui-même, et donc à éviter le phénomène de décalage spectral latéral, grâce à un second passage sur les réseaux de diffraction. De plus, le faisceau est décalé en hauteur pour pouvoir ressortir du système en un point différent de l'entrée. Le trajet des courtes longueurs d'onde ( $\lambda_0$ ) est plus long que celui des plus grandes longueurs d'onde ( $\lambda_1$ ). L'impulsion laser, en sortie de l'étireur est donc étalée dans le temps car les courtes longueurs d'onde prennent du retard sur les grandes longueurs d'onde. Ceci permet de diminuer l'intensité crête et donc de pouvoir amplifier les impulsions sans endommager les optiques. Dans notre cas, la durée passe ainsi d'environ 30 fs à 400 ps, soit un étirement de plus de 10000 fois et donc l'intensité crête est diminuée d'autant. La largeur de bande diminue un peu à cause des coupures sur le réseau  $R_2$ .

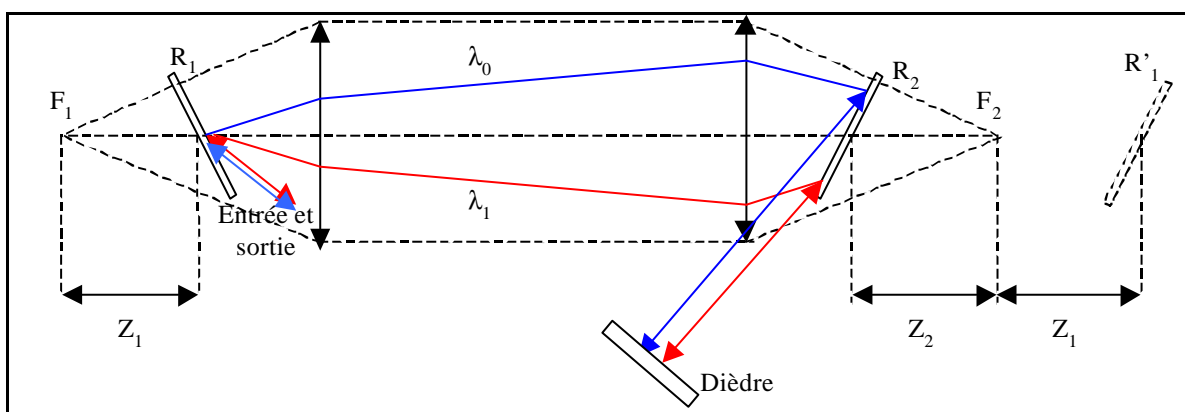


Figure V-12. Schéma de principe d'un étireur vu de dessus. L'entrée et la sortie se font au même endroit mais pas à la même hauteur grâce au dièdre.

## 3. Amplificateur régénératif

L'amplificateur régénératif est basé sur le piégeage d'une impulsion dans un résonateur laser (Figure V-13). Ici, une onde polarisée horizontalement arrive sur le polariseur avec un angle de Brewster et est donc réfléchi. Après un double passage dans la cellule de Pockels, initialement réglée pour être équivalente à une lame quart-d'onde, avec une tension appliquée  $HV_{off}$ , l'onde reste polarisée horizontalement et est de nouveau réfléchi par le polariseur sans avoir pénétré dans la cavité résonante. Par contre, lorsque la cellule de Pockels devient équivalente à une lame demi-onde, en changeant la tension appliquée sur son cristal non linéaire ( $HV_{on}$ ), l'onde, après son double passage dans la cellule, est polarisée verticalement et

l'impulsion pénètre alors dans la cavité résonante et reste piégée jusqu'à ce qu'elle ait extrait toute l'énergie emmagasinée dans le milieu amplificateur (ici un cristal de Ti:Sa). L'impulsion est ensuite extraite en appliquant de nouveau la tension  $HV_{off}$  sur le cristal de la cellule de Pockels qui redevient équivalente à une lame quart-d'onde.

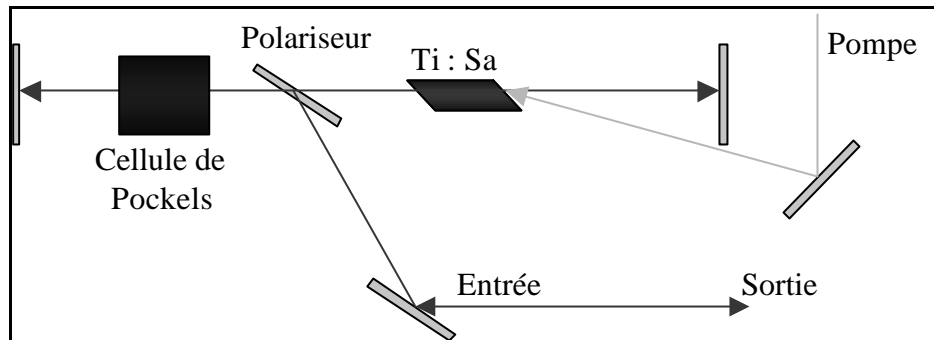


Figure V-13. Schéma de principe d'un amplificateur régénératif.

Dans notre cas, l'amplificateur régénératif est pompé à 532 nm, par une partie de l'énergie (40 mJ) d'un YAG:Nd<sup>3+</sup> (Compact de Thales Laser) qui délivre en tout 300 mJ à 10 Hz. Le reste de l'énergie sert à pomper le premier amplificateur à quatre passages décrit dans le paragraphe suivant. A la sortie de l'amplificateur régénératif l'énergie est de l'ordre de 1 mJ à 10 Hz avec une durée de 200 ps. Il est à noter que la largeur spectrale n'est plus que de 16 nm au lieu d'environ 30 nm à la sortie de l'oscillateur. Ce rétrécissement spectral est dû principalement à l'effet du gain dans le Ti:Sa, comme on va le voir à la fin du paragraphe suivant.

#### 4. Amplificateur multipassages

Dans ce type d'amplificateurs (Figure V-14), les différents passages dans le milieu amplificateur sont séparés géométriquement. Le nombre de passage est limité par la géométrie du système et par la difficulté croissante de focaliser tous les passages en un seul point du cristal. Le nombre typique de passages va de quatre à huit. Pour des gains plus élevés, plusieurs amplificateurs multipassages peuvent être mis en cascade. Cette technique est simple et peu chère mais nécessite des réglages fins, et le cristal est utilisé près de son seuil de dommage pour garder un gain assez haut, nécessaire compte tenu du nombre limités de passages.

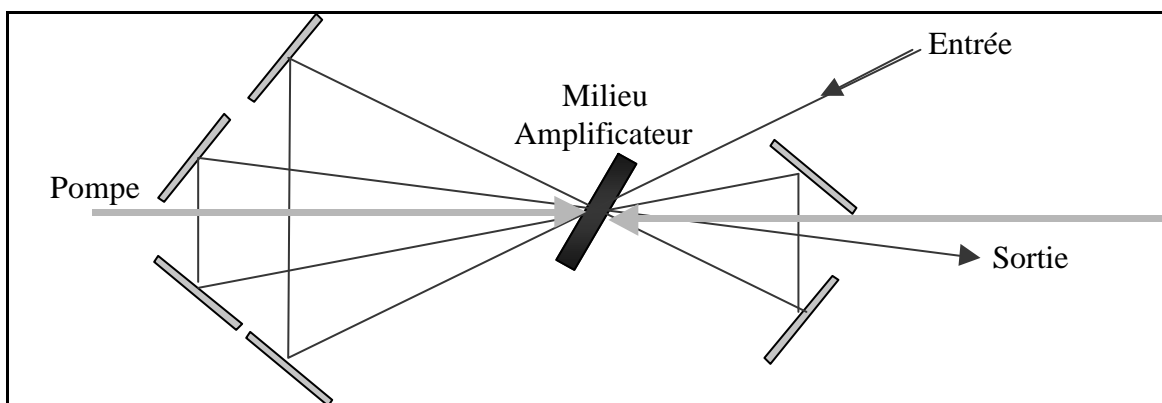


Figure V-14. Schéma type d'un amplificateur à quatre passages.

Dans notre système, deux amplificateurs à quatre passages sont utilisés en cascade. Le premier amplificateur est pompé symétriquement par 200 mJ d'énergie dans le vert, provenant du YAG:Nd<sup>3+</sup> Compact. Le deuxième amplificateur est pompé symétriquement par deux lasers YAG:Nd<sup>3+</sup> de 1 J chacun (Saga de Thales-Optics). A la sortie du dernier amplificateur l'énergie atteint 800 mJ avec une durée d'impulsion étirée qui est toujours de 200 ps.

Les amplificateurs présentés ici (régénératif et multipassages) peuvent être utilisés pour n'importe quel type d'impulsion et n'importe quel milieu laser et ne sont pas spécifiques aux impulsions ultra-courtes. Mais lorsque des impulsions femtosecondes doivent être amplifiées des problèmes nouveaux surviennent. En plus du problème des intensités crêtes élevées, un problème de largeur de bande se pose. En effet, la largeur de bande de l'amplificateur doit être assez grande pour amplifier tout le spectre de l'impulsion. Or la largeur de bande du gain effectif de l'amplificateur est bien plus étroite que son spectre de fluorescence. Ceci est dû au très haut gain vu par l'impulsion et peut être vu comme un filtre spectral. A chaque passage, les longueurs d'onde correspondant au pic du gain sont plus amplifiées que celles situées sur les bords de la courbe de gain. Passage après passage, ceci conduit à une réduction des ailes du spectre de l'impulsion comparé à sa partie centrale.

Après amplification, il faut utiliser un compresseur à réseau pour de nouveau avoir une impulsion de quelques dizaines de femtosecondes. La largeur spectrale de l'impulsion est de 14 nm

## 5. Le compresseur

Le compresseur utilisé dans notre chaîne laser est un compresseur classique à deux réseaux en double passage (Figure V-15). Le compresseur, symétrique de l'étireur, est constitué de deux réseaux parallèles ; après deux diffractions, les différentes composantes spectrales du faisceau émergent parallèlement de l'ensemble mais sont décalées latéralement les unes par rapport aux autres. Un prisme en toit constitué de deux miroirs formant un dièdre dont l'angle est de 90°, permet de changer la hauteur des faisceaux sur les réseaux et de les faire ressortir du système avec une répartition homogène des différentes composantes spectrales.

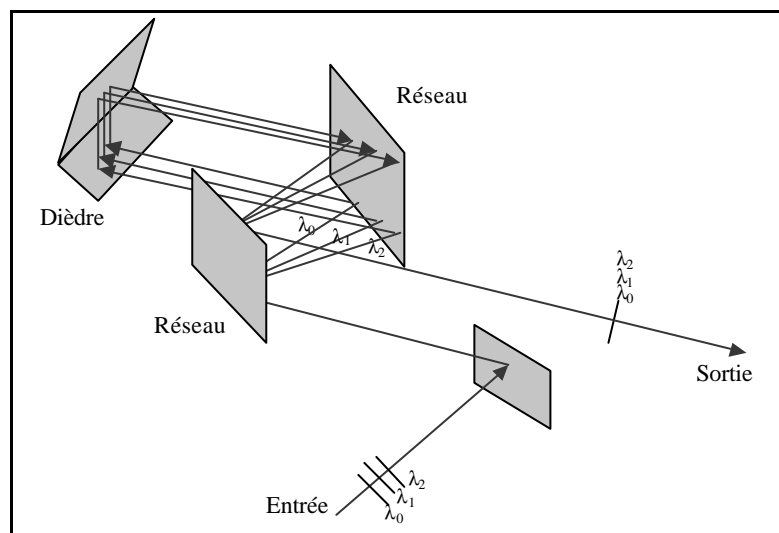


Figure V-15. Schéma type d'un compresseur à deux réseaux en double passage.

Dans notre cas, à la sortie du compresseur, on obtient une impulsion de 65 fs (Figure V-16) avec une énergie de 390 mJ à 10 Hz, soit plus de 5,5 TW de puissance crête. L'efficacité de notre compresseur est cependant moins élevée que pour les compresseurs habituels qui sont

sous vide. La largeur spectrale est de 14 nm (Figure V-17). La valeur de  $DnD$  est égale à 0,44, ce qui signifie que notre impulsion est quasiment limitée en transformée de Fourier. En effet, pour un profil du faisceau de la forme sécante hyperbolique la valeur minimale que peut prendre  $DnD$  est égale à 0,315. A la sortie du compresseur le faisceau a un diamètre de 55 mm, puis un télescope d'émission (x3) est utilisé pour focaliser à notre gré le faisceau dans l'atmosphère.

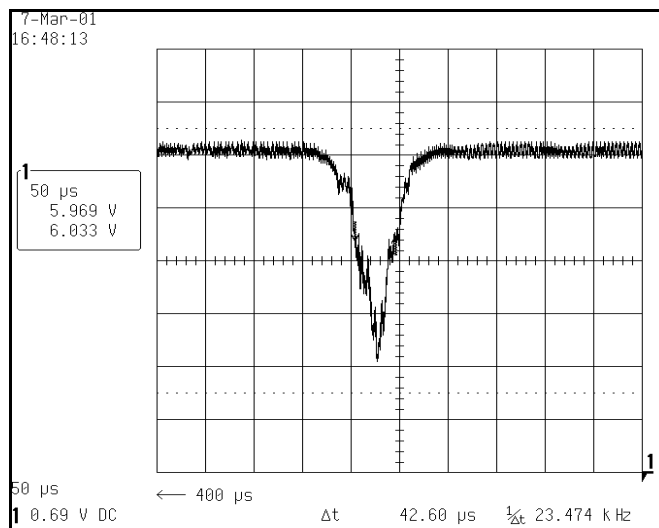


Figure V-16. Trace d'auto-corrélation mesurée à la sortie du compresseur. La largeur à mi-hauteur de l'auto-corrélation est de 42  $\mu$ s, ce qui correspond à  $\Delta\tau = 97$  fs après calibration. La durée de l'impulsion est alors de  $\Delta t = 65$  fs après déconvolution avec une fonction  $\text{sech}^2$  ( $\Delta t = \Delta\tau/1,55$ ).

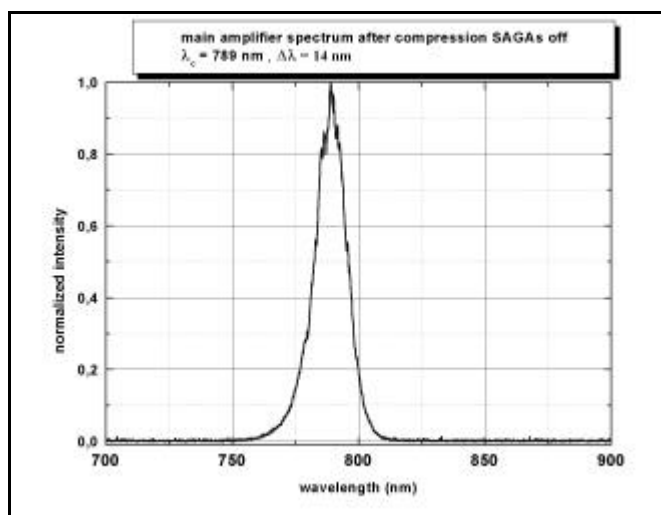


Figure V-17. Spectre mesuré à la sortie du compresseur de la chaîne laser.

Pour les besoins de nos expériences, la dispersion de la vitesse de groupe dans l'air peut être plus ou moins pré-compensée. Cette pré-compensation consiste, en fait, à faire prendre du retard ou de l'avance aux grandes longueurs d'onde de l'impulsion par rapport aux courtes. Elle sera exprimée en terme de durée d'impulsion initiale à la sortie du compresseur. L'impulsion peut être pré-compensée négativement (grandes longueurs d'onde en retard sur les courtes) ou positivement (grandes longueurs d'onde en avance sur les courtes). Si l'on utilise une pré-compensation négative et comme les grandes longueurs d'onde se propagent plus vite dans l'atmosphère que les plus courtes, toutes ces composantes vont se retrouver,

sans retard les unes par rapport aux autres, à une certaine distance où l'intensité crête sera alors maximale.

## **B. Le laboratoire mobile**

Le système Teramobile étant appelé à être transporté par camion, par bateau ou par train comme fret standard, il a été nécessaire de choisir un conteneur standard ISO 20 qui a donc des caractéristiques imposées :

- Longueur : 6058 mm, largeur : 2438 mm, hauteur : 2591 mm.
- Poids à vide : 6,3 tonnes.
- Charge utile : 9,7 tonnes.

Les dimensions restreintes à l'intérieur du conteneur ne sont pas allées sans poser des problèmes de place disponible pour le système laser qui ont été difficilement résolus. L'intérieur du conteneur est partagé en deux pièces (Figure V-18) : le laboratoire, qui comprend le système laser proprement dit et le télescope d'émission, et la salle de contrôle, qui sert de sas et où sont placés les systèmes de réception lidar, les instruments de mesure ainsi que l'armoire électrique et des rangements. Le rôle de sas joué par la salle de contrôle est très important pour le contrôle thermique du laboratoire, nécessaire à la stabilité du laser y compris lors des expériences sur le terrain. Le sas garanti aussi une plus grande propreté du laboratoire. Le conteneur possède quatre hublots (deux latéraux et deux sur le toit) pour permettre d'émettre le faisceau laser à l'extérieur, soit horizontalement, soit verticalement et coaxial ou non avec l'optique de réception lidar (Figure V-19).

Du fait que le conteneur est appelé à fonctionner dans un environnement extérieur dont la température (spécifiée de  $-20^{\circ}\text{C}$  à  $+35^{\circ}\text{C}$ ) et l'humidité (spécifiée de 0 à 100% d'humidité relative) varient fortement il a été nécessaire de l'isoler thermiquement et de le protéger de la corrosion. Le conteneur est aussi doté d'une climatisation et d'un circuit de refroidissement pour les appareils scientifiques (essentiellement le système laser). Une climatisation performante est nécessaire pour évacuer les grandes quantités de chaleur dégagées par les différentes alimentations électriques des lasers de pompe (<3 kW).

Enfin, le conteneur doit être autonome en eau et en électricité, c'est pourquoi un groupe de refroidissement extérieur à eau en circuit fermé et un groupe électrogène de 40 kW pour l'électricité ont été prévus.

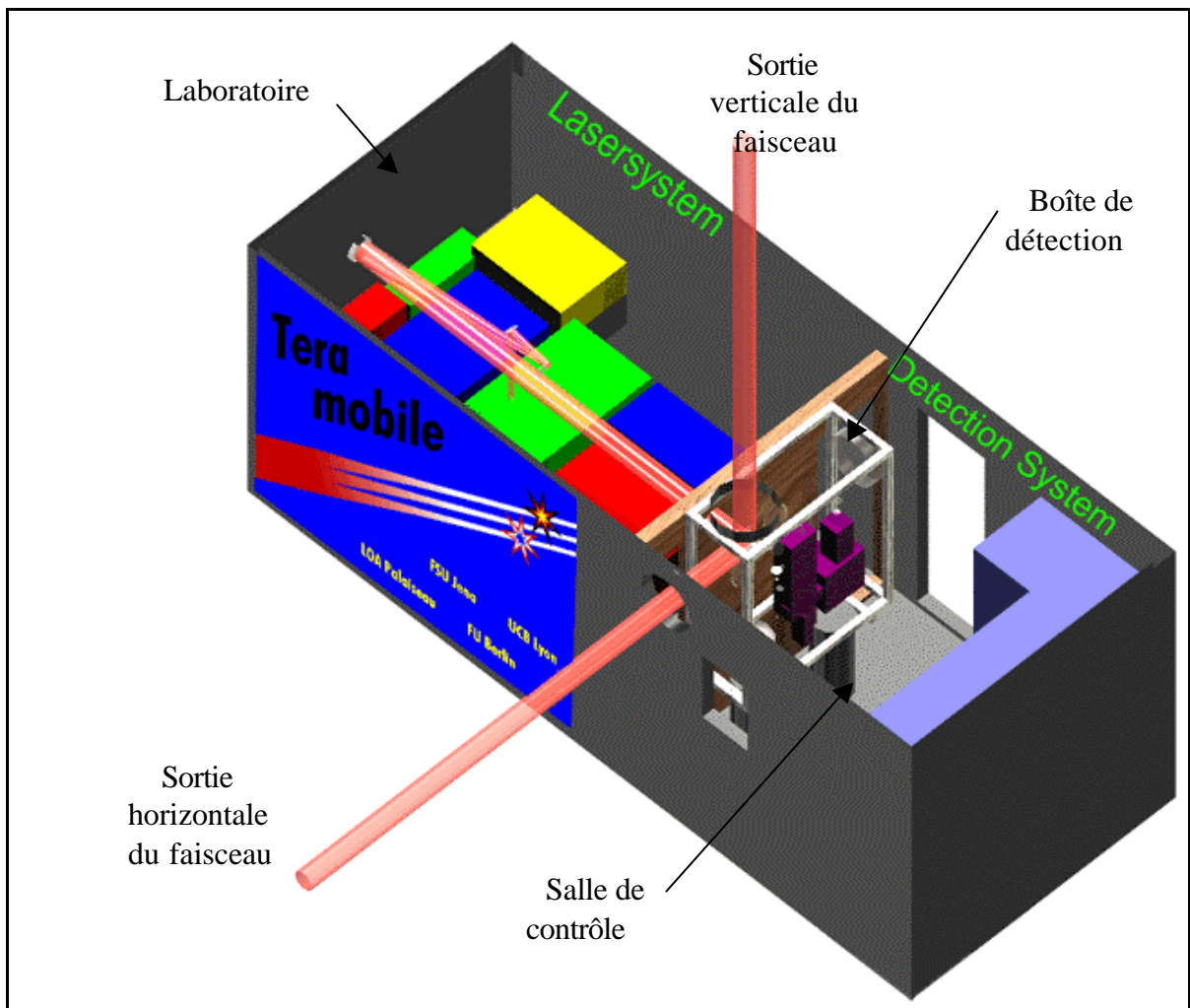


Figure V-18. Disposition intérieure du conteneur ISO 20 utilisé pour le projet Teramobile.



Figure V-19. Vue du conteneur du Teramobile.

Le système de détection lidar (Figure V-20) se trouve dans la salle de contrôle du conteneur. Il comprend un miroir de renvoi qui se trouve dans l'axe du télescope de détection et qui permet de diriger le faisceau, provenant du télescope d'émission, soit horizontalement, soit verticalement. Le télescope de détection a un miroir primaire de 400 mm de diamètre et une focale de 1200 mm. Un système d'imagerie permet de faire une image du foyer du

télescope sur la fente d'un spectromètre visible et infrarouge (Chromex 500ism). Derrière la fente de sortie de ce spectromètre on dispose de deux lignes de détection pour le visible et le proche infrarouge : une première ligne avec une caméra CCD intensifiée (Princeton) qui permet la détection simultanée d'une portion de spectre et une deuxième ligne plus sensible, avec un photomultiplicateur (Hamamatsu) allant jusqu'à 1,7  $\mu\text{m}$ . Pour l'infrarouge on dispose d'une photodiode Si à avalanche et de la photodiode InSb, décrite dans le chapitre précédent.

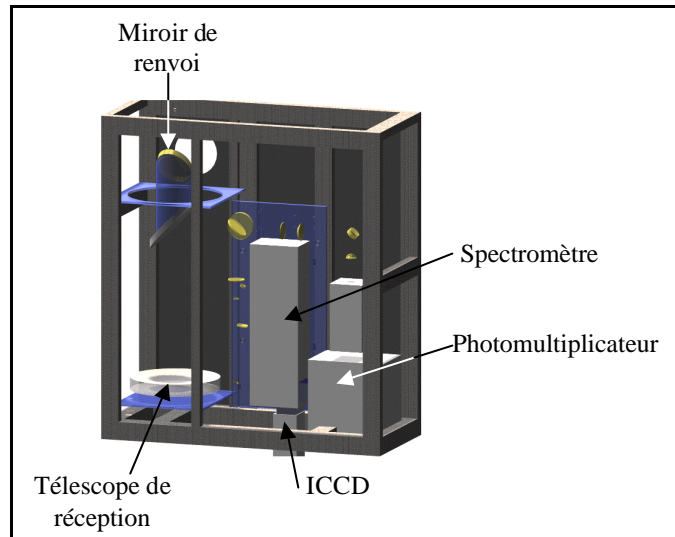


Figure V-20. Schéma de la boîte de détection du système Teramobile.

### C. Laboratoire mobile d'analyse

Enfin, pour étudier la propagation sur les longues distances notre équipe a construit un laboratoire mobile d'analyse à l'intérieur d'une remorque (Figure V-21). Cette remorque peut ainsi être déplacée le long du faisceau à l'aide d'un véhicule tracteur. Sur le toit de la remorque, peut être placé horizontalement ou verticalement un bras motorisé le long duquel se déplace un chariot lui aussi motorisé, supportant une fibre optique liquide. Le bras et le chariot sont commandés depuis l'intérieur de la remorque avec un ordinateur. La fibre liquide de 5 m est reliée à un spectromètre disposé sur une table optique à l'intérieur de la remorque et à la sortie duquel différents détecteurs peuvent être mis. Ces détecteurs sont ensuite reliés à un oscilloscope. Ce laboratoire mobile permet ainsi de réaliser des profils spatiaux et des profils de dépendances angulaire à différentes longueurs d'onde. L'autonomie de la remorque est assurée par un groupe électrogène de 6 kW.





Figure V-21. Vue arrière du laboratoire mobile d'analyse.

Le Teramobile est le premier lidar térawatt mobile qui ait jamais été construit. Sa construction s'est terminée en mars 2001. Ce système unique au monde va permettre d'étudier la propagation d'un faisceau ultra-court de haute puissance par des expériences impossibles à réaliser en laboratoire. A terme, il permettra aussi de mener des campagnes de mesures lidar sur différents sites grâce à sa mobilité. Les expériences présentées dans la partie suivante ont utilisé pour certaines le système Teramobile. Cependant, comme la construction du système s'est achevée récemment d'autres expériences présentées ont été faite à l'aide de systèmes térawatt fixes, de même type.

### **III. Caractérisation des filaments de lumière blanche se propageant dans l'air**

Les expériences exposées ici ont consisté à étudier certaines caractéristiques importantes de la filamentation utiles pour son application à un lidar multispectral. Le continuum de lumière blanche à l'intérieur des filaments, sa dépendance angulaire ainsi que la distance à laquelle le filament se forme ont ainsi été mesurés.

#### **A. Expériences sur le spectre du continuum généré par un laser térawatt femtoseconde focalisé dans l'atmosphère<sup>28</sup>**

##### ***1. Introduction***

Comme cela a été présenté dans les chapitres précédents, le domaine infrarouge est très important pour les expériences lidar que ce soit pour détecter les aérosols mais aussi de nombreux polluants gazeux. Ceci est spécialement intéressant dans la région 3-3,5  $\mu\text{m}$ , où les lasers pulsés accordables et avec des énergies importantes sont difficiles à obtenir (Cf Chapitre III), et où un nombre important de polluants gazeux (spécialement les COV) ont de forts recouvrements de leurs bandes d'absorption. Il est donc très utile de caractériser le continuum généré par un faisceau térawatt focalisé dans l'air. Dans ce but, au cours des

expériences auxquelles j'ai pris part, le spectre de ce continuum de lumière blanche et l'influence de la puissance du laser sur celui-ci ont été étudiés. Dans les expériences décrites dans le paragraphe suivant, aucun filament n'est formé et le continuum provient simplement d'un faisceau térawatt focalisé de manière à créer de la lumière blanche par SPM. Même si ces expériences n'utilisent pas de filaments, elles permettent cependant de voir le potentiel de la génération de lumière blanche de façon simple sans les problèmes liés aux fortes intensités crêtes à l'intérieur du filament.

## 2. Dispositif expérimental

Pour ces expériences, réalisées avant que notre système Teramobile ne soit disponible, deux systèmes lasers femtosecondes similaires à celui-ci ont été utilisés. Les caractéristiques de ces deux lasers sont reportées dans le Tableau V-1.

Système	A (ENSTA-Palaiseau)	B (IOQ-Iéna)
Energie (mJ)	60	200
Durée de l'impulsion (fs)	35	100
Diamètre du faisceau (mm)	25	35

Tableau V-1. Récapitulatif des caractéristiques des deux chaînes lasers utilisées lors des expériences sur le spectre.

Les deux systèmes produisent une puissance crête d'environ 2 TW à 800 nm, mais à cause des différentes durées de l'impulsion, les temps de montée et de descente de l'intensité sont différents pour les deux systèmes. Plusieurs systèmes de détection ont été utilisés pour couvrir tout le domaine de longueurs d'onde étudié. Pour le visible, on a utilisé un analyseur optique multicanaux (Chromex 500 IS,  $f/8$ ) qui a une bande de détection entre 400 et 1000 nm, un réseau de 150 traits/mm, avec une résolution de  $1,28 \text{ cm}^{-1}$ . Le détecteur est une Si-ICCD-576 (Princeton Instruments), refroidie à l'eau, avec une matrice de  $576 \times 394$  pixels. Dans l'infrarouge, un spectromètre à prisme (Zeiss, 400 nm - 2,7  $\mu\text{m}$ , résolution  $<5 \text{ nm}$ ) et un spectromètre à prisme double passage Perkin-Elmer ( $f = 270 \text{ mm}$ , prismes en LiF, transmission jusqu'à 10  $\mu\text{m}$ ) ont été équipés d'un détecteur au germanium (0,8  $\mu\text{m}$  - 2,7  $\mu\text{m}$ ) et d'une photodiode InSb Hamamatsu refroidie à l'azote liquide (1,5  $\mu\text{m}$  - 5,6  $\mu\text{m}$ ). Des filtres interférentiels infrarouges (Corion) ont été utilisés pour supprimer la longueur d'onde fondamentale du laser (800 nm). Les efficacités de détections normalisées des différentes chaînes de détections sont présentées Figure V-22.

Dans notre expérience, le laser est focalisé avec une fine lentille de verre (BK7) de 10 m de focale. Grâce au large diamètre du faisceau laser (25 mm) et à la faible épaisseur de la lentille (3 mm), aucun continuum n'est généré dans cette lentille. La génération du continuum a lieu dans la région du foyer. Des mesures de puissance avant et après le foyer montrent que les pertes d'énergie dues aux processus de génération du continuum au niveau du foyer sont négligeables. Les mesures spectrales ont été effectuées à une distance totale d'environ 30 m de la lentille, qui correspond à environ 20 m de propagation après le foyer. A cette distance le faisceau laser a un diamètre de 20 à 25 cm. Toutes les mesures spectrales ont été réalisées en réfléchissant une petite partie de la lumière, vers la fente d'entrée du spectromètre utilisé, avec un miroir aluminium positionné dans le faisceau. Les configurations expérimentales et les détecteurs sont identiques pour les deux systèmes lasers.

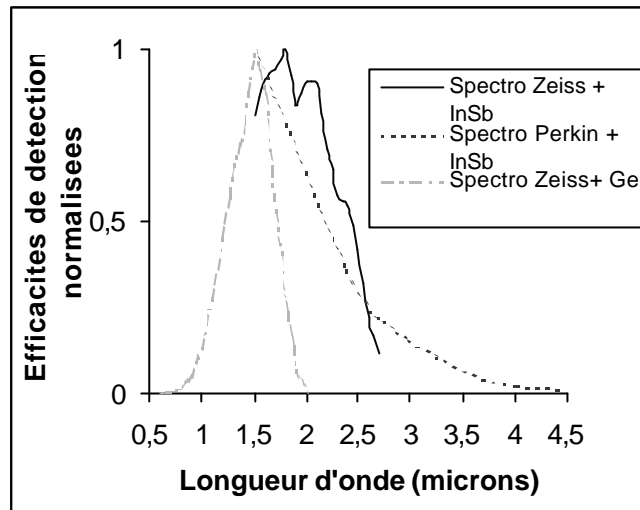


Figure V-22. Efficacités de détection normalisées pour les différentes chaînes de détection.

### 3. Résultats

La Figure V-23 montre la distribution spectrale du continuum de lumière blanche généré dans l'air par le système laser A pour une durée de l'impulsion de 115 fs après la lentille de focalisation, et sans pré-compensation à la sortie du compresseur. Le spectre total est composé d'un assemblage de quatre spectres (300-900 nm ; 700-1800 nm ; 1,5-2,7  $\mu\text{m}$  ; 1,5-4,5  $\mu\text{m}$ ) mesurés avec les quatre systèmes de détection présentés plus haut. Ces spectres ont un recouvrement qui permet de les assembler. Le continuum ainsi détecté est très large : il s'étend de 300 nm à 4,5  $\mu\text{m}$ . Dans l'infrarouge, où nos mesures sont les premières à avoir été effectuées dans l'air, une décroissance exponentielle sur 4 ordres de grandeur est observée, jusqu'à 2,5  $\mu\text{m}$ . De 2,5  $\mu\text{m}$  à 4,5  $\mu\text{m}$ , une décroissance plus faible est enregistrée, d'environ un ordre de grandeur. Au dessus de 4,5  $\mu\text{m}$ , l'intensité spectrale est trop faible pour pouvoir la distinguer du bruit du détecteur. Superposées sur ce spectre du continuum, la bande d'absorption de l'eau autour de 2,5  $\mu\text{m}$  est visible. Ceci suggère que l'utilisation d'un continuum de lumière blanche multispectrale, comme source de lumière, pour la détection spectroscopique à distance par lidar<sup>45</sup>, peut être étendue dans l'infrarouge.

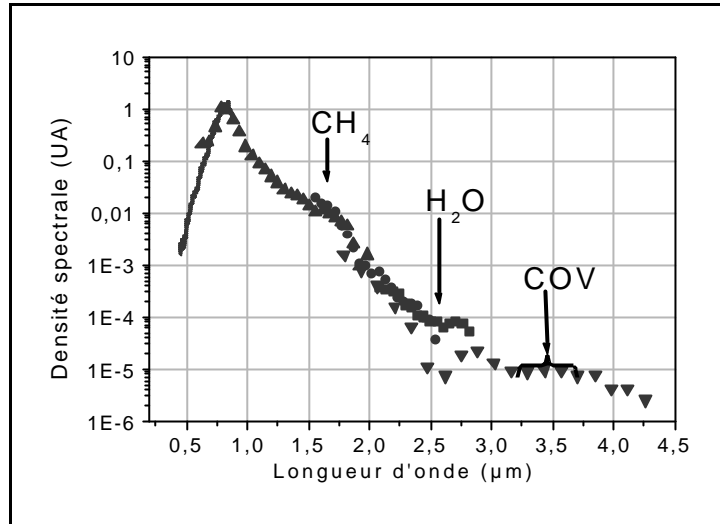


Figure V-23. Spectre du continuum de lumière blanche du filament. Les bandes d'absorption de méthane, de l'eau et des COV sont indiquées.

Nous avons aussi étudié l'influence de l'énergie de l'impulsion incidente grâce au système B. Pour une augmentation initiale d'intensité d'un facteur 2 (Figure V-24), la décroissance en longueur d'onde est plus faible. L'efficacité totale est supérieure d'un ordre de grandeur environ pour une puissance de 2 TW.

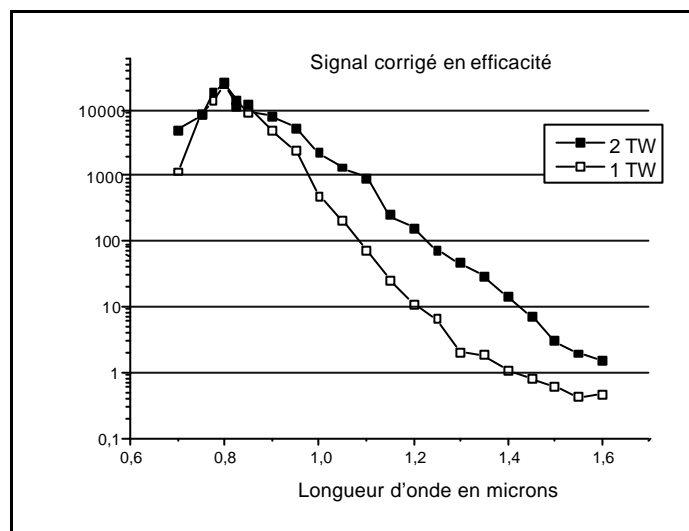


Figure V-24. Comparaison du spectre du continuum en fonction de la puissance pour le système B.

#### 4. Discussion

L'élargissement spectral généré par la SPM et obtenu par le calcul (Cf §I.A.5), est en accord semi-quantitatif avec les expériences précédentes :

- le spectre de lumière blanche, calculé après 20 m de propagation, s'étend entre quelques centaines de nanomètres et 5 µm.

- le système laser A, avec des impulsions plus courtes, a une plus grande efficacité pour la génération de lumière blanche que le système B. En effet, à puissance crête égale, comme les impulsions du système A sont plus courtes que celles du système B, la dérivée de

l'intensité par rapport au temps est plus grande pour les premières. Comme l'élargissement spectral est proportionnel à cette dérivée (équation V-22), la lumière blanche est plus facilement générée.

Ces calculs renforcent l'hypothèse selon laquelle l'auto-modulation de phase est le processus principal dans la génération du continuum de lumière blanche dans l'air. Pour le vérifier une mesure de la dépolarisation pourrait être réalisée, sachant que le plasma émet de manière isotrope.

La génération d'un continuum est très intéressante en vue d'une application lidar aérosols multispectral. On dispose en effet d'une source unique s'étendant continuellement de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen. Cette source permet aussi dans l'infrarouge d'atteindre les raies du méthane vers  $1,67 \mu\text{m}$ , de HF vers  $2,38 \mu\text{m}$  et les bandes des COV entre 3 et  $4 \mu\text{m}$ . Cependant, la décroissance de la partie Stokes du spectre, qui est très rapide, pose des problèmes car la lumière envoyée aux longueurs d'onde supérieures à  $3 \mu\text{m}$  est alors très faible.

## **B. Evolution du spectre d'un filament en fonction de la distance de propagation**

Afin de compléter les mesures précédentes mais aussi pour comprendre comment se construit le continuum, une expérience préliminaire a été réalisée pour mesurer l'évolution du spectre en fonction de la distance de propagation depuis le début du filament.

### ***1. Dispositif expérimental***

Pour cette expérience, la chaîne laser de notre groupe a été utilisée. Cette chaîne est basée sur un oscillateur « fait maison » et une chaîne d'amplification très proche de celle du Teramobile mais avec un amplificateur à quatre passages en moins. Le faisceau de sortie est légèrement focalisé par un miroir sphérique de 10 m de rayon de courbure. Le faisceau initial a un diamètre de 12 mm, l'énergie d'une impulsion, mesurée après le miroir sphérique, est de 6 mJ, avec une durée de 120 fs, à 810 nm. La filamentation démarre un peu avant le foyer géométrique et le filament reste bien collimaté pendant la propagation. Comme l'intensité à l'intérieur du filament est trop forte pour pouvoir y placer un spectromètre ou un miroir de renvoi on a placé une pointe d'aluminium dans l'émission conique, à proximité du filament. La pointe n'est donc pas dans le filament lui-même, ce qui permet d'éviter la génération d'effets non linéaires parasites sur celle-ci. Cette pointe diffuse alors la lumière qui est collectée par une fibre optique couplée à l'entrée d'un spectromètre (MS 257 d'Oriel Instruments) équipé d'un photomultiplicateur. Cette pointe est placée sur un rail, de telle sorte que l'on puisse la déplacer selon la direction de propagation du faisceau. Pour des contraintes techniques la distance de déplacement de la pointe est comprise entre 20 cm et 2,5 m en aval du foyer.

Bien que la pointe ne collecte pas directement le spectre dans le filament mais seulement l'émission conique. Le spectre émis par le filament est réellement mesuré dans sa partie UV-visible. En effet, la lumière qui se retrouve dans l'émission conique provient entièrement de la lumière générée à l'intérieur du filament (Cf §I.A.6). De plus, placé perpendiculairement au faisceau du laser, notre pointe intègre radialement la lumière présente dans l'émission conique. Elle nous affranchit ainsi de sa structure spatiale, et en particulier des anneaux de l'émission conique, ce qui est vérifié dans les spectres obtenus.

Toutes les mesures ont été effectuées avec le même réseau du spectromètre et le même gain pour le photomultiplicateur. L'efficacité de détection spectrale de l'ensemble fibre-spectromètre-photomultiplicateur a été mesurée (Figure V-25) à l'aide d'une lampe halogène calibrée en température, assimilée à un corps noir.

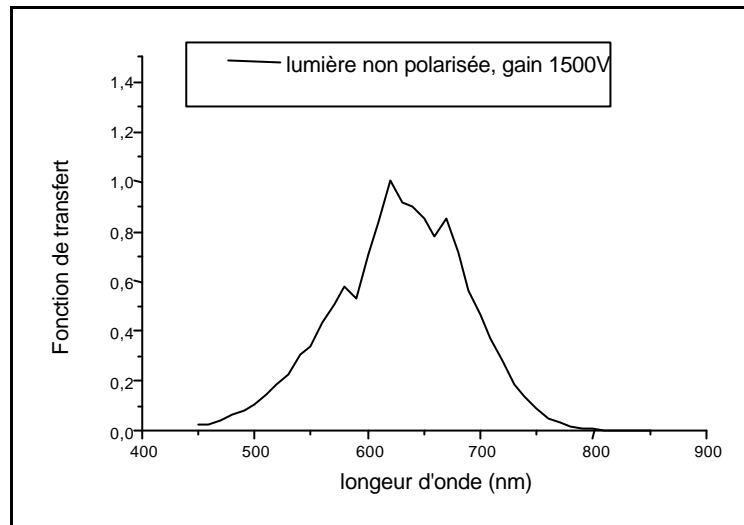


Figure V-25. Efficacité de détection spectrale pour de la lumière non polarisée.

## 2. Résultats et interprétation

L'évolution du spectre en fonction de la distance au foyer est présentée Figure V-26. Le plateau, dans la partie anti-Stokes du spectre, précédemment observé par Rairoux *et al.*<sup>45</sup> est bien visible. Ce plateau est dû essentiellement à l'auto-raccourcissement de l'impulsion comme le montre les calculs de Aközbek *et al.*<sup>10</sup>. De plus, cette expérience prouve que le spectre n'évolue plus après une distance de plus de 20 cm en aval du foyer. Autrement dit, dans des conditions où un filament est formé, la lumière blanche reste produite au niveau du foyer et est ensuite transportée à l'intérieur du filament. Ce résultat a récemment été confirmé par des simulations numériques<sup>10</sup> (Figure V-27) qui montrent qu'après de 1,2 fois la longueur de Rayleigh, le spectre du continuum de lumière blanche émis se stabilise pour prendre la forme trouvée avec nos mesures. Or, dans notre cas la longueur de Rayleigh du filament est de quelques centimètres. Des mesures complémentaires au voisinage immédiat du foyer seront nécessaires pour observer la construction du spectre du continuum.

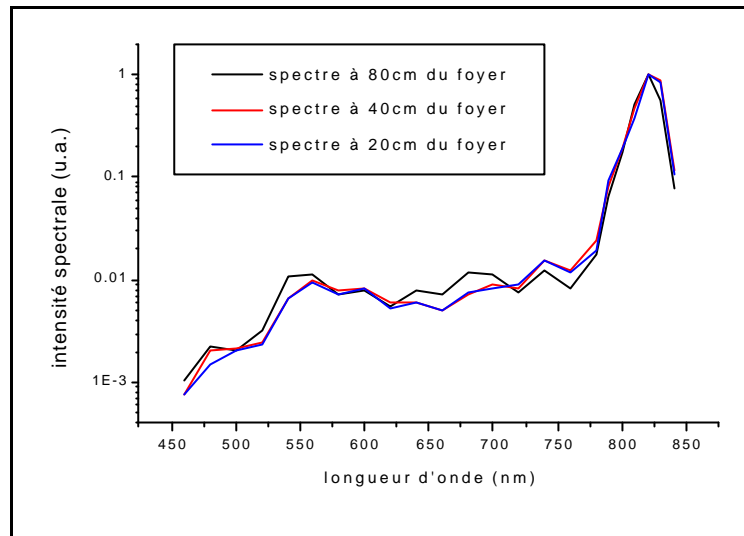


Figure V-26. Spectres obtenus en diffusant la lumière de l'émission conique à différentes distances du foyer.

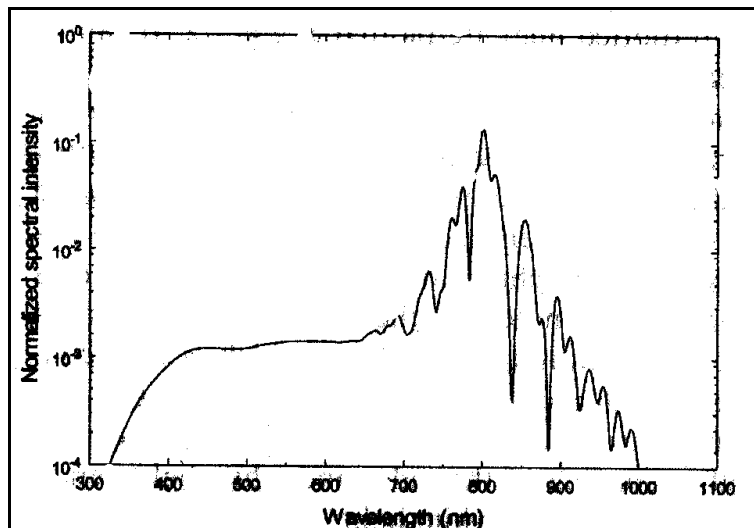


Figure V-27. Spectre normalisé, calculé par Aközbek *et al.*<sup>10</sup>, à une distance  $z = 1,1$ . Ces simulations numériques tiennent compte de termes de correction d'ordres supérieurs (focalisation spatio-temporelle, auto-raccourcissement) dans l'équation de Schrödinger non linéaire. De plus, elles vont au-delà des approximations habituelles de l'enveloppe lentement variable, en utilisant l'approche de Brabec and Krausz<sup>39</sup>.

### C. Longueur des filaments et distance de filamentation

Le filament de lumière blanche est une source lumineuse intéressante pour faire du lidar. Il serait donc très utile de pouvoir déplacer la distance à laquelle le filament et donc la source de lumière blanche se produisent. Lors de cette expérience, débutée à Palaiseau et terminée à Berlin, avec la chaîne laser du projet Teramobile, la propagation d'impulsions femtoseconde a été étudiée sur 300 m dans l'air. Les résultats les plus significatifs ont concerné la filamentation sur une distance de 90 m d'un faisceau parallèle ( $\Phi = 5$  cm), de 3 à 4 TW de puissance crête, se propageant horizontalement. Une étude systématique a été réalisée à l'aide de photographies numériques du faisceau projeté sur un écran tous les 5 m (dont un exemple est donné Figure V-28) et pour différentes pré-compensation de la dispersion de la vitesse de

groupe. Il est à noter que pour ces puissances crête plusieurs fois supérieures à la puissance critique le régime est un régime de multi-filamentation.

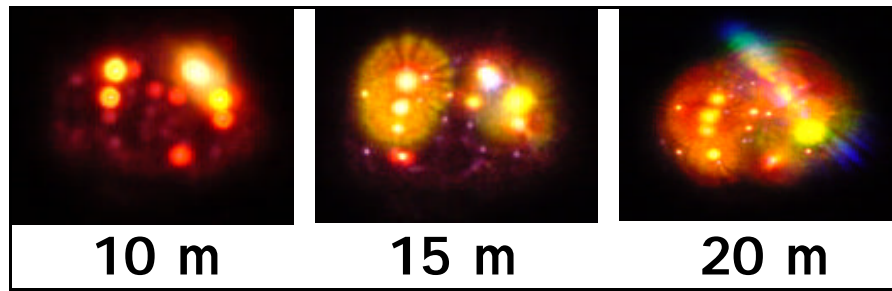


Figure V-28. Photographies, sur un écran, des filaments à différentes distances sans pré-compensation de la dispersion de la vitesse de groupe. A 10 m, six filaments sont clairement visible sous forme de points très lumineux. A 15 m et 20 m, huit filaments sont bien visibles, entourés pour certains d'entre eux d'une émission conique. A 20 m, des interférences entre deux émissions coniques sont apparentes.

Les résultats sur la distance de filamentation et la longueur du régime de multi-filamentation en fonction de la pré-compensation de la dispersion de la vitesse de groupe sont résumés dans le Tableau V-2. La durée initiale de l'impulsion a été mesurée avec un auto-corrélateur monocoup en fonction des différentes pré-compensation de la dispersion de la vitesse de groupe. Sans pré-compensation, la durée minimale est de 180 fs. Lorsque le compresseur est déréglé de 1 mm, la durée de l'impulsion augmente de 43 fs. Le signe entre parenthèse correspond au signe de la pré-compensation. La distance  $z_f$  est calculée avec l'équation V-33.

Durée initiale de l'impulsion	481 fs (+)	266 fs (+)	309 fs (-)	524 fs (-)	739 fs (-)
Distance $z_f$ calculée	99 m	73 m	79 m	103 m	124 m
Distance de filamentation	Vers 20 m $\pm 5$ m	5 à 10 m	10 à 15 m	Vers 35 m $\pm 5$ m	Vers 80 m $\pm 5$ m
Longueur du régime multifilaments	Environ 15 m	Environ 25 m	Environ 40 m	Plus de 55 m	

Tableau V-2. Résumé des résultats obtenus pour la distance de filamentation et pour la longueur du régime de multifilamentation. Le signe entre parenthèse correspond au signe de la pré-compensation.

Dans notre cas, le rapport  $P/P_{crit}$  est de plusieurs centaines, même pour des pré-compensations très importantes. L'autofocalisation a donc lieu dès la sortie du laser et l'effet de la diffraction est négligeable. Le calcul de la distance de focalisation  $z_f$  qui tient compte de l'autofocalisation devrait donc donner une première idée de la distance de filamentation (le filament démarrant dans la région du foyer). Or, la filamentation a lieu à une distance beaucoup plus proche que la distance  $z_f$  (Tableau V-2). Ceci montre que cette relation ne permet pas de reproduire la propagation de nos impulsions.

Seule la résolution numérique de l'équation de propagation non linéaire peut interpréter nos résultats. En particulier, pour les puissances importantes, les inhomogénéités du profil spatial et les turbulences de l'atmosphère jouent un grand rôle en créant des variations locales de l'intensité. Les surintensités créées peuvent alors être à l'origine d'un filament.



Même si le nombre de données est plus limité, on constate que la longueur du régime de multi-filamentation augmente avec la pré-compensation. Cette longueur passe ainsi de 25 m, pour une distance de 11 mm entre les réseaux, à plus de 55 m pour une distance de 21 mm entre les réseaux. On peut, pour mieux comprendre cette augmentation de la longueur du régime de multifilamentation, faire un parallèle avec le cas où le faisceau est focalisé par une lentille. Dans ce cas, plus la focale de la lentille est courte et moins le filament est long car l'équilibre entre l'autofocalisation et la diffraction par le plasma est alors plus difficile à maintenir. Dans notre cas, plus la pré-compensation est faible et plus le faisceau focalise près.

Enfin, le nombre de filaments observés, au maximum du régime de multi-filamentation, se situe entre 15 et 20 et ne semble pas dépendre de manière importante de la pré-compensation.

Bien sur, une étude sur de plus grandes distances de propagation (de l'ordre du kilomètre) est prévu et nous permettra de confirmer ou d'infirmer ces tendances.

## **D. Dépendance angulaire du continuum généré dans l'air par un laser térawatt ultracourt<sup>40</sup>**

### ***1. Introduction***

Lors d'expériences préliminaires conduites par les groupes de Iéna et de Berlin en 1999 de la lumière blanche rétrodiffusée a été détectée jusqu'à une altitude de 12 km<sup>41</sup> : une telle portée, avec la relativement faible efficacité de conversion du laser dans le continuum, a beaucoup surpris. Afin de tenter de comprendre ce résultat, la distribution angulaire de la diffusion de la lumière du filament a été mesurée. Il est en particulier intéressant de savoir si la lumière blanche est générée vers l'avant, transportée à haute altitude et rétrodiffusée par la diffusion classique Rayleigh-Mie ou s'il existe un processus de rétroémission du filament lui-même. Il y a pour le moment un manque important de données expérimentales et d'études théoriques sur cette dépendance angulaire, et plus particulièrement dans la direction de la rétrodiffusion. Pourtant, cette propriété est très intéressante pour une application telle que le lidar utilisant la lumière blanche induite par une impulsion laser.

### ***2. Dispositif expérimental***

Pour ces expériences, un dispositif expérimental similaire aux mesures de l'évolution du spectre du filament (§ III.A.2) a été utilisé. Cependant, au lieu de la pointe et de la fibre, un goniomètre est monté sur un moteur pas à pas qui est installé 1,5 m en aval du foyer géométrique, avec son axe de rotation qui se trouve à la verticale du filament (Figure V-29). Sur le goniomètre, est placée une fibre liquide de 6 mm d'ouverture dont le champ de vue est limité à 0,86° par un tube métallique ( $L = 800$  mm,  $\Phi_{\text{int}} = 6$  mm) placé à son extrémité et dirigé vers le point d'intersection du filament et de l'axe de rotation du goniomètre. L'entrée du tube se situe à une distance de 200 mm de l'axe de rotation du goniomètre. Cette configuration permet de se rapprocher jusqu'à un angle de 3,5° de l'angle de rétrodiffusion (180°). La fibre transmet la lumière collectée jusqu'à un photomultiplicateur (Hamamatsu), et un filtre bleu-vert est placé devant celui-ci pour avoir une bande de détection entre 300 et 600 nm, c'est-à-dire sur le plateau du spectre de la lumière blanche émise par le filament. Le faisceau laser peut être polarisé soit verticalement (polariseur réflectif) soit horizontalement,

permettant une analyse dans le plan parallèle à la polarisation de la lumière incidente (plan-p), aussi bien que dans le plan perpendiculaire (plan-s).

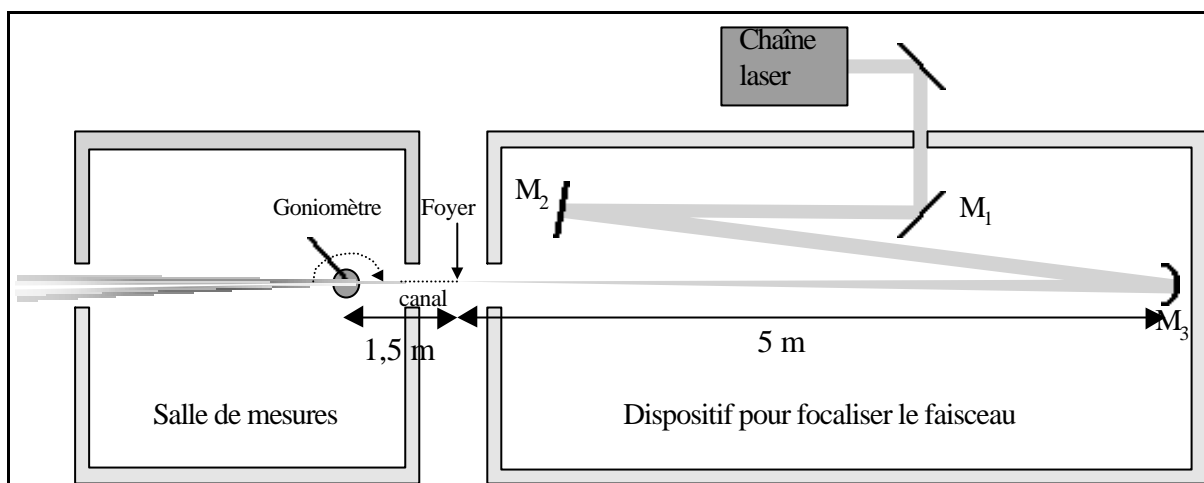


Figure V-29. Dispositif expérimental utilisé lors de la mesure de la dépendance angulaire de la diffusion non linéaire.

### 3. Résultats

#### a) Calibration

Le système de détection est calibré en mesurant la distribution angulaire de la lumière diffusée par un faisceau de faible énergie se propageant linéairement. Pour cela, on a doublé le faisceau de départ en plaçant un cristal doubleur de KDP après le miroir sphérique  $M_3$ . La fondamentale est alors séparée de la seconde harmonique (405 nm, ~10% d'efficacité de conversion) par un miroir dichroï que. La divergence du faisceau doublé est de  $0,065^\circ$  et l'énergie dans le bleu est trop faible (0,5 mJ) pour qu'il y ait filamentation. De plus, une hotte à flux laminaire placée au-dessus de la zone de mesure, permet d'éliminer la plus grande partie des aérosols se trouvant dans cette zone et de ne mesurer, si on le souhaite, que la diffusion Rayleigh. Les résultats obtenus pour la diffusion linéaire Rayleigh (avec hotte) et Rayleigh+Mie (sans hotte) sont présentés Figure V-30. Pour prendre en compte le fait que la longueur de la portion de filament vu par le dispositif dépend de l'angle  $\mathbf{q}$  les valeurs données par le photomultiplicateur sont divisées par un facteur géométrique qui est  $1/\sin \mathbf{q}$  ce qui permet de comparer les résultats avec le profil angulaire attendu pour la diffusion Rayleigh (Cf Chap. I, § II-C). Lorsque l'atmosphère est sans aérosol, les résultats obtenus se superposent très bien avec distribution angulaire de la diffusion Rayleigh. Lorsque la hotte est éteinte on détecte alors une distribution angulaire correspondant à une diffusion de Mie due aux aérosols atmosphériques. Une augmentation nette, caractéristique de la diffusion vers l'avant, correspondant à des particules de taille importante est visible.

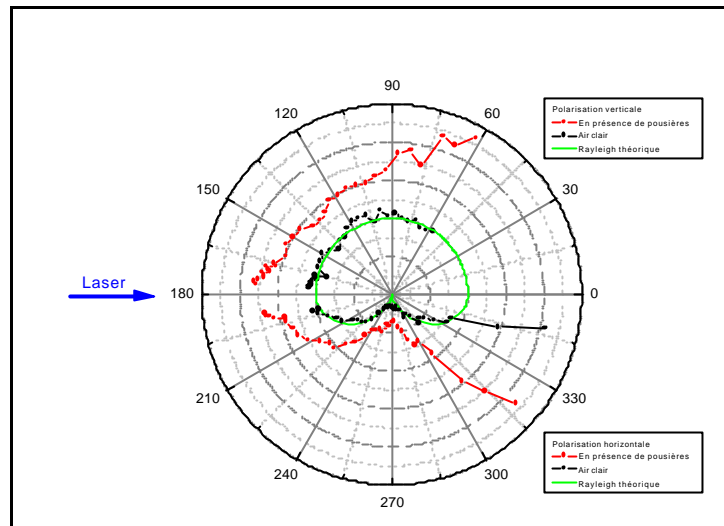


Figure V-30. Mesures des diffusions linéaires Rayleigh et Rayleigh+Mie pour les plans *s* et *p*.

### b) Distribution angulaire de la diffusion de la lumière blanche

Ces données sur la diffusion linéaire sont utilisées comme référence pour les comparer avec les distributions angulaires de la diffusion de la lumière blanche émise par le filament. En enlevant le cristal doubleur et le miroir dichroïque, on obtient un seul filament de lumière blanche avec une émission conique. La divergence de l'anneau extérieur de l'émission conique est de  $0,10^\circ$ , ce qui est en accord avec la valeur de  $0,12^\circ$  généralement mesurée<sup>7,42</sup>. Les distributions angulaires obtenues pour la diffusion linéaire et l'émission de lumière blanche sont présentées Figure V-31 et Figure V-32. Pour comparer la dépendance angulaire de l'émission de la lumière blanche à la diffusion linéaire, les données sont normalisées arbitrairement, de telle sorte que pour chaque plan de polarisation, les deux courbes aient les mêmes valeurs autour de la direction transverse ( $90^\circ$ ). Cette normalisation permet une comparaison de la rétrodiffusion, pour des diffusions transverses identiques.

Remarquons sur les Figure V-31 et Figure V-32, dans la direction proche de la rétrodiffusion ( $176,5^\circ$ ), que les signaux pour la lumière blanche sont toujours supérieurs (d'un facteur 2) aux signaux linéaires et ce quelque soit la polarisation du laser et la présence ou non d'aérosols. Les statistiques sur les mesures, pour un angle donné, montrent que l'écart quadratique moyen est de 20% autour de la direction de rétrodiffusion et de 10% dans la direction transverse. L'augmentation observée dans le cas de la lumière blanche est donc supérieure aux fluctuations mesurées. Le fait qu'une augmentation similaire soit observée avec ou sans la présence d'aérosols montre que cet effet n'est pas dû aux aérosols. L'effet n'est détecté qu'à l'intérieur d'un petit cône autour de la direction de rétrodiffusion (au-delà de  $170^\circ$ ).

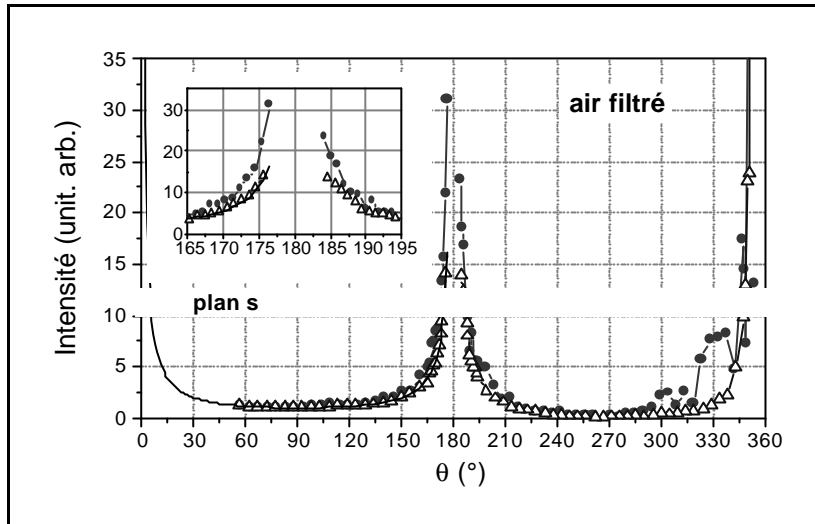


Figure V-31. Comparaison de la diffusion linéaire (triangles) et de l'émission de lumière blanche (cercles) pour les plans *s* et *p* dans le cas d'un air sans aérosols.

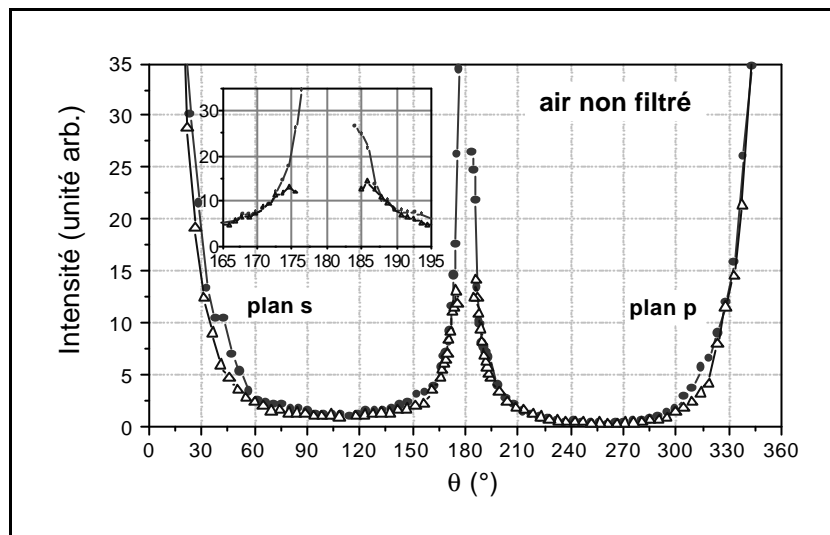


Figure V-32. Comparaison de la diffusion linéaire (triangles) et de l'émission de lumière blanche (cercles) pour les plans *s* et *p* dans le cas d'un air non filtré.

Afin d'étudier la dépendance spectrale de l'effet d'émission préférentielle vers l'arrière, la lumière blanche diffusée a aussi été mesurée dans la bande 600-650 nm, en utilisant des filtres interférentiels devant le photomultiplicateur. Les mesures ont été réalisées sans la hotte à flux laminaire. Les résultats obtenus sont présentés Figure V-33 avec ceux de la bande bleu-vert. Des facteurs de normalisation sont appliqués dans chaque plan de polarisation pour avoir un signal identique pour la rétrodiffusion dans chacune des bandes. Cette normalisation est, bien sûr, arbitraire. Il apparaît néanmoins que pour un même signal rétrodiffusé, la diffusion dans la direction transverse décroît dans la bande rouge. Ceci peut facilement s'expliquer par la dépendance de la diffusion Rayleigh et Mie en fonction de la longueur d'onde respectivement en  $1/\lambda^4$  et en  $1/\lambda^i$  ( $i$  variant de 1 à 2). Cela implique que le rapport entre la rétrodiffusion de la lumière blanche et la rétrodiffusion linéaire augmente avec la longueur d'onde. On peut extrapoler ceci à l'infrarouge, où les diffusions Rayleigh et Mie sont beaucoup moins efficaces. Sur la même figure, la bande 600-650 nm montre un pic autour de  $0^\circ$  beaucoup plus étroit que pour la bande bleu-vert, ce qui s'explique par l'efficacité plus faible de la diffusion Mie.

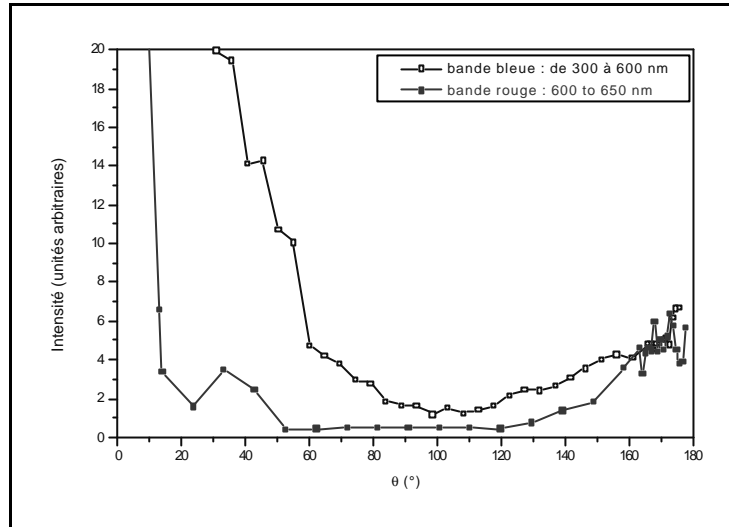


Figure V-33. Comparaison de l'émission de lumière blanche dans la bande bleu-verte et dans la bande rouge pour de l'air non filtré et dans le plan  $s$ .

#### 4. Interprétation

L'émission du continuum de lumière blanche du filament est donc supérieure d'un facteur 2 à la diffusion Rayleigh-Mie dans une direction de  $176,5^\circ$ . L'intensité augmente de façon rapide dans la région proche de la rétrodiffusion, ce qui pourrait conduire à une plus forte augmentation à  $180^\circ$ . Cette augmentation pourrait être confirmée par de très récents résultats préliminaires, qui suggèrent une accélération de la croissance de l'émission de lumière blanche en se rapprochant de la rétrodiffusion au-delà de  $178^\circ$ . Quoi qu'il en soit, ces mesures démontrent qu'une rétro-émission a lieu à l'intérieur du filament. Ceci implique que le continuum détecté dans une expérience lidar de lumière blanche n'est pas seulement le résultat de la diffusion linéaire Rayleigh-Mie d'un continuum précédemment émis dans la direction du laser mais qu'il existe une contribution liée à un processus de rétro-émission de lumière blanche directe. Le fait qu'une augmentation similaire soit observée avec et sans aérosols montre que ces derniers ne jouent pas de rôle dans l'augmentation de la rétro-émission de lumière blanche. La comparaison entre la diffusion élastique et la rétro-émission de lumière blanche additionnelle montre qu'elles sont du même ordre de grandeur à  $176,5^\circ$ . Pour le moment seules des hypothèses peuvent être émises sur le phénomène à l'origine de cette rétro-émission.

Ainsi, d'après le modèle simple de la filamentation décrit au paragraphe I.A.4, la propagation du filament est à l'origine d'une inhomogénéité longitudinale de l'intensité, qui crée une succession de zones plus ionisées donc de sauts ou gradients d'indice sur lesquels une réflexion partielle peut avoir lieu. L'efficacité de rétrodiffusion Rayleigh pour nos conditions expérimentales dans la bande bleu-vert est de  $2,5 \cdot 10^{-7}$ . Cette efficacité est définie comme étant le produit du coefficient de rétrodiffusion ( $\mathbf{b} = 4,9 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$  à  $405 \text{ nm}$ <sup>43</sup>), par une longueur de diffusion (ici 50 cm) et par un angle solide de détection (ici 0,1 sr). Or, les mesures montrent que l'auto-reflexion est au moins (cas à  $176^\circ$ ) du même ordre de grandeur que la rétrodiffusion Rayleigh. Avec la formule de Fresnel on peut alors estimer que le saut d'indice doit être d'au moins  $2,5 \cdot 10^{-7}$ . Ceci correspond à une densité d'électrons libres  $N_e$  de l'ordre de  $10^{15} \text{ e}^-/\text{cm}^3$  (avec  $\mathbf{a}_{\text{diff}}^{\text{molef}}(\mathbf{I}) = N_{\text{molef}} \mathbf{s}_{\text{diff}}^{\text{molef}}(\mathbf{I})$ ). Cette densité électronique est en bon accord avec les valeurs trouvées par d'autres méthodes<sup>16</sup>.

Des calculs à une dimension sont en cours qui permettront d'évaluer l'ordre de grandeur de cette lumière réfléchi. De plus, d'autres modèles, à deux ou trois dimensions, seront nécessaires pour simuler la distribution angulaire et expliquer pourquoi cette rétro-émission est aussi piquée vers l'arrière.

Des processus de génération de conjugaison de phase via la diffusion stimulée arrière pourraient être envisagés pour expliquer l'effet observé. Mais, compte tenu de la durée de l'impulsion, très courte, aucune contribution significative de la rétrodiffusion Raman stimulée n'est attendue<sup>44</sup>.

Dans tous les cas cet effet est susceptible d'expliquer pourquoi il est possible d'observer de la lumière blanche rétrodiffusée jusqu'à 12 km malgré une efficacité de conversion faible du laser dans le continuum.

## **E. Conclusion**

De toutes nos études sur la propagation d'un faisceau térawatt femtoseconde, plusieurs conclusions importantes peuvent être tirées. Tout d'abord, le spectre du continuum de lumière blanche peut s'étendre du visible à l'infrarouge moyen, ce qui permet d'envisager son utilisation comme source pour un lidar aérosol multispectral. Ce spectre recouvre en plus les bandes d'absorption de très nombreux polluants gazeux et notamment des composés organiques volatils. Il pourrait donc aussi être possible d'utiliser cette source de lumière blanche pour réaliser un lidar permettant de détecter plusieurs polluants en même temps. De plus, la distance à laquelle les filaments commencent, se règle en agissant sur la pré-compensation de la dispersion de la vitesse de groupe. Une source de lumière blanche dont l'altitude est réglable est ainsi disponible. Finalement, la mise en évidence d'un effet de rétro-émission de la lumière blanche en régime non linéaire, est très intéressante en configuration lidar. Dans la partie suivante, les premiers résultats obtenus lors d'expériences de lidar non linéaire seront décrits.

# **IV. Expériences lidar térawatt**

## **A. Introduction**

Nous avons vu que les impulsions lasers de haute puissance crête qui se propagent librement dans l'air produisent un continuum de lumière blanche à partir d'une distance réglable. Ce continuum peut être utilisé pour une nouvelle application lidar combinant les avantages du lidar classique et des techniques d'absorption longue distance comme le DOAS. En effet, en mesurant la lumière blanche rétrodiffusée par l'atmosphère en fonction du temps et de la longueur d'onde (avec un spectromètre résolu en temps) la résolution temporelle est accessible grâce aux signaux lidar classiques mais aussi, la résolution spectrale, grâce au continuum. On peut ainsi réaliser, un lidar multispectral, permettant d'accéder aux distributions de taille et aux concentrations des aérosols.

De plus, plusieurs polluants gazeux tels que les COVs, qui ne sont pas accessibles pour le moment avec les techniques DIAL classiques (Cf Annexe A) pourraient être détectés grâce au large spectre de la lumière blanche du lidar térawatt. En effet, celui-ci rend le lidar multispectral insensible aux interférences entre polluants contrairement à la technique DIAL qui n'utilise que deux longueurs d'onde. L'humidité et à la température de l'atmosphère sont

par exemple accessibles simultanément grâce à un ajustement de la forme des bandes d'absorption de l'eau par rapport à une base de donnée.

Une étude antérieure a montré<sup>45</sup> que la génération à distance d'une source de lumière blanche peut être utilisée pour mesurer plusieurs gaz atmosphériques en fonction de la distance. Les rapports de mélange de la vapeur d'eau et de O<sub>2</sub> ont ainsi pu être mesurés à différentes altitudes, grâce à leurs spectres dans le visible et le proche infrarouge intégrés sur une distance plus ou moins grande. Il a aussi été démontré qu'il était possible d'atteindre des altitudes de 12 km avec le continuum de lumière blanche comme le prouve les profils lidar présentés sur la Figure V-34. Sur cette figure, deux signaux lidar sont présentés : sur celui de gauche on distingue une augmentation du signal due à des nuages de moyenne altitude (entre 6 et 8 km) et sur celui de droite, des cirrus de haute altitude (>12 km) sont visibles. La faisabilité d'un lidar térawatt multi-composants a ainsi été démontrée dans le visible.

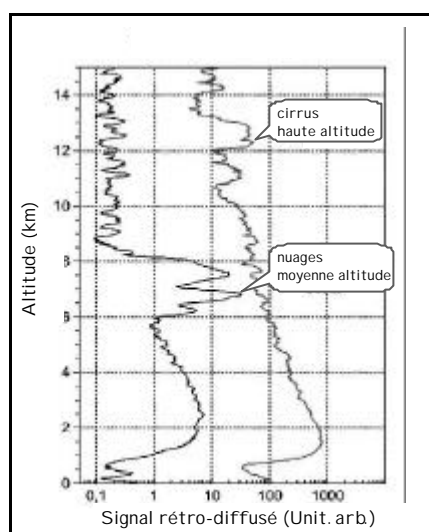


Figure V-34. Deux profils différents (avec et sans nuages d'altitude moyenne) obtenus en intégrant spectralement la lumière blanche, générée par un laser térawatts femtosecondes, entre 550 et 700 nm.

## B. Premiers résultats lidar obtenus avec le système Teramobile

Les premières expériences lidar utilisant le système Teramobile ont eu lieu au mois d'avril 2001 et ont surtout eu pour but de mettre au point et de se familiariser avec le système. Pour cela, le faisceau est dirigé verticalement à l'aide du miroir de renvoi. Le système de réception est, lui, composé d'un télescope ( $\phi = 400$  mm,  $f/3$ ) dont le foyer est imagé sur la fente d'entrée d'un spectromètre couplé à une CCD (§ II.B). L'intégration sur différentes tranches temporelles du signal lidar reçu se fait à l'aide d'une porte temporelle (type BoxCar). Des signaux lidar ont ainsi été détectés sur plusieurs kilomètres, à 800 nm, que ce soit avec le compresseur (régime femtoseconde) ou sans celui-ci (régime picoseconde).

En intégrant le signal, le spectre de O<sub>2</sub> vers 762 nm a pu être enregistré (Figure V-35). Cette figure représente un signal lidar (intégré entre 300 m et 1800 m grâce à la porte temporelle) et résolu spectralement. On observe bien la forte absorption de ce signal autour de 762 nm, correspond à une bande de l'oxygène.

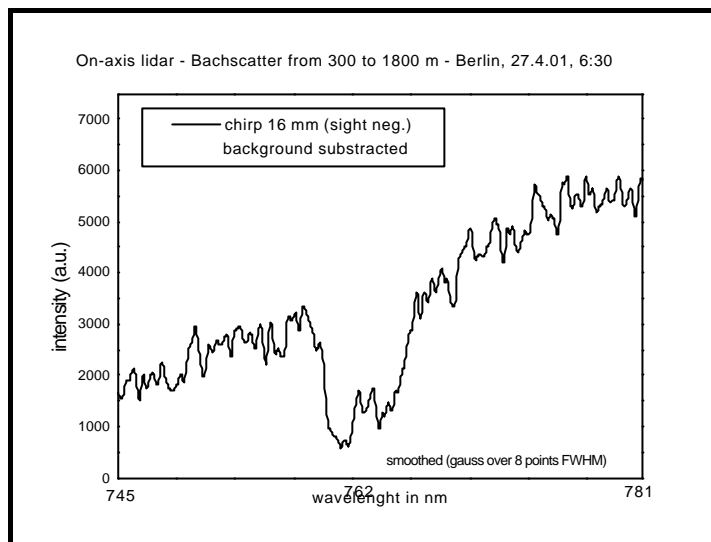


Figure V-35. Spectre de O<sub>2</sub> vers 762 nm obtenu à partir d'un signal lidar intégré entre 300 m et 1800 m. Le bruit de fond a été soustrait et le signal a été lissé.

Il est bien évident que les résultats obtenus ne sont qu'une étape et ont servi à se familiariser avec les systèmes d'émission et de réception du Teramobile. Le prochain objectif sera de réaliser les premières mesures lidar multispectrales d'aérosols dans le proche infrarouge sur un nuage avec une barrette InGaAs (plage de détectivité entre 0,9 et 1,7  $\mu\text{m}$ ). Elles permettront de valider un algorithme d'inversion et donneront accès à la distribution de taille et à la concentration des gouttelettes d'eau à l'intérieur du nuage. On pourra ensuite réaliser des mesures en atmosphère claire (sans nuage) et les étendre dans l'infrarouge moyen et le visible.

D'autre part, il sera intéressant d'effectuer des expériences lidar de détection de gaz vers 1,6  $\mu\text{m}$ , pour détecter les bandes d'absorption du méthane. Il sera très attractif de réaliser ensuite des mesures dans l'infrarouge moyen (spécialement entre 3 et 4  $\mu\text{m}$ ), où la majorité des polluants atmosphériques présentent des bandes d'absorption. Cependant, les nombreuses interférences spectrales entre les composants absorbants, le très faible coefficient de rétrodiffusion à ces longueurs d'onde (autour de  $10^{-10} \text{ cm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ ) et la forme du spectre (décroissance exponentielle dans l'infrarouge) rendent ces mesures difficiles, même s'il est possible de surmonter certaines de ces difficultés en utilisant le lidar, couplé avec un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)<sup>46</sup>.

## V. Conclusion

Le Teramobile est pour le moment un système unique au monde qui a nécessité un travail important lors de sa construction et de sa mise au point. Les expériences préliminaires de propagation d'une impulsion femtoseconde térawatt dans l'air que nous avons réalisées ont permis de mettre en évidence plusieurs caractéristiques. Il est ainsi possible de générer un continuum de lumière blanche qui peut s'étendre de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen lorsque le faisceau laser est focalisé. Ce continuum est entièrement créé sur la première longueur de Rayleigh à l'intérieur du filament puis se propage. La distance à partir de laquelle le filament est produit est réglée avec la pré-compensation de la dispersion de la vitesse de groupe. De plus, un effet nouveau de rétroémission du filament a été mis en évidence. Cet effet, de l'ordre de grandeur de la rétrodiffusion classique (pour un angle de  $176^\circ$ ) est très important pour les applications lidar.



Ces caractéristiques du filament de lumière blanche font de celui-ci une excellente source pour des applications de lidar aérosols multispectral permettant d'accéder aux distributions de taille et aux concentrations des aérosols sans aucune hypothèses *a priori*. Cette source est aussi avantageuse pour détecter par lidar plusieurs polluants gazeux en même temps et ainsi éviter les problèmes d'interférences qui se posent, notamment dans l'infrarouge moyen.

Bien entendu de nombreuses expériences sont encore à réaliser. Une des prochaines étapes sera de réaliser des mesures lidar multispectrales d'aérosols dans le proche infrarouge, sur un nuage, qui permettront de valider un algorithme d'inversion et donneront accès à la distribution de taille et à la concentration des gouttelettes d'eau. Ensuite, des mesures en atmosphère claire (sans nuage) et leur extension dans l'infrarouge moyen et le visible pourront être effectuées. Enfin, des expériences complémentaires de propagation sur de grandes distances (de l'ordre du kilomètre) ainsi que sur la rétroémission seront aussi nécessaires pour une meilleure compréhension physique et une meilleure utilisation du filament.

---

<sup>1</sup> Alfano R. R., and Shapiro S. L., « Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass », *Phys. Rev. Lett.* **24**, p 584, (1970).

<sup>2</sup> Smith W. L., Liu P., and Bloembergen N., « Superbroadening in H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O by self-focused picosecond pulses from a YAG:Nd laser », *Phys. Rev. A* **15**, p 2396, (1977).

<sup>3</sup> Strickland D., and Corkum P. B., « Resistance of short pulses to self-focusing », *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, p 492, (1994).

<sup>4</sup> Alfano R. R., and Shapiro S. L., « Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses », *Phys. Rev. Lett.* **24**, p 592, (1970).

<sup>5</sup> Alfano R. R., and Shapiro S. L., « Direct distortion of electronic cloud of rare-gas atoms in intense electric fields », *Phys. Rev. Lett.* **24**, p 1217, (1970).

<sup>6</sup> Brodeur A., and Chin S. L., « Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media. » *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, p 637, (1999).

<sup>7</sup> Nibbering E. T. J., Curley P. F., *et al.*, « Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air. » *Optics Letters* **21**, p 62, (1996).

<sup>8</sup> Braun A., Korn G., *et al.*, « Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulse in air. » *Optics Letters* **20**, p73-75, (1995).

<sup>9</sup> Cheung J. L., Hartings J. M., *et al.*, « Vol. II : Optics of small particles, interfaces and surfaces » in « Handbook of optical properties », Hummel R. E., Wissmann P. Eds. (CRC Press, New York, 1997).

<sup>10</sup> Aközbek N., Scalora M., *et al.*, « White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air », *Opt. Commun.* **191**, p 353, (2001).

<sup>11</sup> Shen Y., « The principles of nonlinear optics, » (Wiley, New-York, 1984).

<sup>12</sup> Xin-Mia-Zhao, and Rambo P., « Effect of oxygen on the laser triggering of lightning » *Opt. Soc. Am.CLEO'95* +**455**, p 182, (1995).

<sup>13</sup> Nibbering E. T. J., Grillon G., *et al.*, « Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N<sub>2</sub>, and O<sub>2</sub> by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses », *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, p 650, (1997).

<sup>14</sup> Lange H. R., Grillon G., *et al.*, « Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air : moving focus or pulse self-guiding ? », *Optics Letters* **23**, p 120, (1998).

<sup>15</sup> Morgen M, Price W., *et al.*, « Femtosecond Raman-induced polarization spectroscopy studies of rotational coherence in O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, and CO<sub>2</sub> », *Chem. Phys. Lett.* **209**, p 1, (1993).

---

<sup>16</sup> Kasparian J., *et al.*, «The critical laser intensity of self-guided filaments in air», *Applied Phys. B* **71**, p 877, (2000).

<sup>17</sup> Talebpour A., Petit S., and Chin S. L., « Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti:Sa laser pulse in air », *Optics Commun.* **163**, p 29, (1999).

<sup>18</sup> Tzortzakis S., Prade B., *et al.*, « Time-evolution of the plasma channel at the trail of the self-guided IR femtosecond laser pulse in air », *Optics Comm.* **181**, p 123, (2000).

<sup>19</sup> Krueer W. L., «The physics of the plasma interactions » (Addison-Wesley, Redwood City, California, 1966).

<sup>20</sup> Ranka J. K., Schirmer R. W., and Gaeta A. L., « Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media. » *Phys. Rev. Lett.* **77**, p 3783, (1996).

<sup>21</sup> Rothenberg J. E., « Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media. » *Optics Letters* **17**, p 583, (1992).

<sup>22</sup> Zozulya A. A., «Propagation dynamics of intense femtosecond pulses: multiple splittings, coalescence, and continuum generation. » *Phys. Rev. Lett.* **82**, p1430, (1999).

<sup>23</sup> Marburger J. H., « Self-focusing : Theory », *Prog. Quantum Electron.* **4**, p 35, (1975).

<sup>24</sup> Mlejnek M., Wright E. M., *et al.*, «Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air », *Optics Letters* **23**, p 382, (1998).

<sup>25</sup> Mlejnek M., Wright E. M., *et al.*, « Power dependence of dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air », *Optics Express* **4**, p 223, (1999).

<sup>26</sup> Campillo A. J., Shapiro S. L., *et al.*, « Periodic breakup of optical beams due to self-focusing », *Appl. Phys. Lett.* **23**, p 628, (1973).

<sup>27</sup> Mlejnek M., Kolesik M., *et al.*, «Optically turbulent Femtosecond light guide in air », *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2938, (1999).

<sup>28</sup> Kasparian J., Sauerbrey R., *et al.*, « Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere », *Optics Lett.* **15**, p 1397, (2000).

<sup>29</sup> Nishioka H., Odajima W., *et al.*, « Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt Ti:sapphire laser pulses. » *Optics Letters* **20**, p 2505, (1995).

<sup>30</sup> Ranka J. K., and Gaeta A. L., « Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses », *Optics Letters* **23**, p 534, (1998).

<sup>31</sup> Diddams S. A., Eaton H. K., *et al.*, « Amplitude and phase measurements of femtosecond pulse splitting in nonlinear dispersive media », *Optics Letters* **23**, p 379, (1998).

---

<sup>32</sup> Lange H. R., *et al.*, « Proceedings of the XIth conference on ultrafast phenomena », p 115, (Springer Verlag, 1998).

<sup>33</sup> Kosareva O. G., Kandidov V. P., *et al.*, « Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air », *Optics Letters* **22**, p 1332, (1997).

<sup>34</sup> Golub I., « Optical characteristics of supercontinuum generation », *Optics Letters* **15**, p 305, (1990).

<sup>35</sup> Xing Q., Yoo K. Y., and Alfano R. R., « Conical emission by four-photon parametric generation by using femtosecond laser pulses », *Applied Optics* **32**, p 2087, (1993).

<sup>36</sup> Chiron A., Lamouroux B., *et al.*, « Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases », *The European physical journal D* **6**, p 383, (1999).

<sup>37</sup> Salin F., « How to manipulate and change the characteristics of laser pulses », in « Femtosecond Laser pulses : principles and experiment », Rullière C. ED., (Springer, Berlin, 1998).

<sup>38</sup> Ducasse A., Rullière C, *et al.*, « Methods for the generation of ultrashort laser pulses : Mode-Locking », in « Femtosecond laser pulses », Rullière C. ed., (Springer-Verlag, Berlin, 1998).

<sup>39</sup> Brabec T., and Krausz F., « Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime », *Phys. Rev. Lett.* **78**, p 3282, (1997).

<sup>40</sup> Yu J., Mondelain D., *et al.*, « Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air », *Optics Letters* **26**, p 533, (2001).

<sup>41</sup> Wöste L., Wedekind C., *et al.*, « Femtosecond atmospheric lamp », *Laser und Optoelektronik* **29**, p 51, (1997).

<sup>42</sup> Brodeur A., Chien C. Y., *et al.*, « Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air. », *Optics Letters* **22**, p 304, (1997).

<sup>43</sup> Measures R. M., « Laser remote sensing », (Krieger, Malabar (Florida), 1992).

<sup>44</sup> He G. S., and Liu S. H., « Physics of nonlinear optics », (World Scientific, Singapur, 1999).

<sup>45</sup> Rairoux P., Schillinger H., *et al.*, « Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses », *Appl. Phys. B* **71**, p 573, (2000).

<sup>46</sup> Douard M., Bacis R., *et al.*, « Fourier-transform lidar », *Opt. Lett.* **20**, p 2140, (1995).

# Conclusion générale

Au cours de ces travaux de recherche, plusieurs méthodes de mesures d'aérosols par lidar ont été mises en œuvre. Tout d'abord, une méthode utilisant un lidar mono-fréquence dans l'ultraviolet, couplé à la micro-analyse de filtres impactés, nous a permis d'accéder à l'évolution des concentrations spatialement et temporellement de façon continue sur deux jours. Ces mesures ont ensuite pu être comparées avec les valeurs données par des capteurs aux sols. De plus, une comparaison a été effectuée au cours du temps, entre l'altitude de la couche limite donnée par un modèle météorologique et celle déterminée expérimentalement par la méthode du point d'inflexion. Cependant la méthode utilisée nécessite l'impaction de filtres puis l'étude de ceux-ci par microscopie électronique à balayage et enfin le comptage des particules pour accéder à la distribution de taille des aérosols. Il faut ensuite utiliser des algorithmes adaptés pour évaluer les sections efficaces de diffusion de cet ensemble. Enfin, une hypothèse forte est faite en prenant le rapport des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion constant en fonction de l'altitude.

Pour éliminer ces contraintes, il est possible d'utiliser un lidar aérosols UV-IR. L'ultraviolet étant sensible aux petites particules et l'infrarouge moyen étant sensible aux particules micrométriques, un tel lidar permet d'accéder à la dynamique de ces deux modes de particules. Notre extension infrarouge est basée sur des oscillateurs paramétriques optiques pompés par un laser Ti:Sa. Plusieurs cristaux (KTP, KTA, KNbO<sub>3</sub>) ont été testés et permettent d'obtenir des longueurs d'onde accordables entre 1 et 4 μm. Pour valider cette extension, des mesures lidar à 3,5 μm ont été réalisées sur des gouttelettes d'eau lors d'un épisode de brume. Cette longueur d'onde, obtenue avec un cristal de KNbO<sub>3</sub>, a été choisie pour que la transmission soit maximale, ce qui a permis de traverser entièrement la couche de brume. L'évolution temporelle de la concentration des gouttelettes d'eau a pu être mesurée en fonction de l'altitude. La prochaine étape sera donc la réalisation effective d'un lidar UV-IR qui permettra d'observer les effets sur la distribution de taille, de processus comme la sédimentation ou le transport à longue distance.

Parallèlement un lidar non linéaire (le projet Teramobile), utilisant comme source des filaments de lumière blanche générés dans l'air par un laser femtoseconde térawatts a été construit. Il est évidemment très intéressant de disposer d'une telle source en vue d'un lidar aérosols multispectral. Ce système offre la possibilité d'accéder à la distribution de taille des aérosols en ne faisant aucune hypothèse *a priori* sur sa forme. Dans ce but nous avons étudié les caractéristiques de cette source notamment du point de vue spectral et de la dépendance angulaire du continuum ; un effet nouveau de rétroémission du filament a ainsi été mis en évidence. Une prochaine étape va être de réaliser des mesures lidar multispectrales d'aérosols dans le proche infrarouge, sur un nuage, qui permettront de valider un algorithme d'inversion et donneront accès à la distribution de taille et à la concentration des gouttelettes d'eau. Ensuite, des mesures en atmosphère claire (sans nuage) et leur extension dans l'infrarouge moyen et le visible pourront être effectuées.

# **Annexes**

## Annexe A : Mesure des concentrations de polluants gazeux : la méthode DIAL

Pour pouvoir déterminer la concentration d'un polluant gazeux il faut utiliser, en plus de la diffusion, le processus d'absorption moléculaire : on parle alors de lidar à absorption différentielle (DIAL pour Differential Absorption Lidar)<sup>1,2,3</sup>. Cette méthode qui repose sur l'émission simultanée de deux impulsions laser dans l'atmosphère est la plus sensible dans la troposphère. Le choix des longueurs d'onde utilisées est établi en fonction du spectre d'absorption du polluant recherché ainsi que des possibles molécules interférentes présentes au moment de la mesure. L'une des longueurs d'onde appelée  $I_{ON}$  sera choisie comme fortement absorbée par le polluant ; l'autre, appelée  $I_{OFF}$  le sera au contraire beaucoup moins. Pour minimiser les problèmes d'interférences avec les autres molécules présentes, ces deux longueurs d'onde seront choisies pour donner des valeurs d'absorption similaires avec les interférents. Enfin, elles sont suffisamment proches pour que l'on puisse supposer que les propriétés de diffusion des aérosols aux deux longueurs d'onde sont identiques.

La méthode DIAL permet d'avoir accès à la concentration pour un polluant donné en fonction de la distance  $z$ . En effet, les deux équations lidar pour  $I_{ON}$  et  $I_{OFF}$  s'écrivent :

$$A-1 \quad I(z, I_{ON}) = I_0(0, I_{ON}) \frac{A_0}{z^2} \mathbf{b}(z, I_{ON}) \Delta z \mathbf{c}(z, I_{ON}) \exp\left(-2 \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(z, I_{ON}) dz\right)$$

$$A-2 \quad I(z, I_{OFF}) = I_0(0, I_{OFF}) \frac{A_0}{z^2} \mathbf{b}(z, I_{OFF}) \Delta z \mathbf{c}(z, I_{OFF}) \exp\left(-2 \int_0^z \mathbf{a}_{ext}(z, I_{OFF}) dz\right)$$

Le rapport de ces deux équations vaut :

$$A-3 \quad \frac{I(z, I_{ON})}{I(z, I_{OFF})} = \mathbf{g} \cdot \frac{\mathbf{b}(z, I_{ON}) \Delta z \cdot \mathbf{k}(I_{ON})}{\mathbf{b}(z, I_{OFF}) \Delta z \cdot \mathbf{k}(I_{OFF})} \exp\left(-2 \int_0^z (\mathbf{a}_{ext}(z, I_{ON}) - \mathbf{a}_{ext}(z, I_{OFF})) dz\right)$$

$$\text{Avec } \mathbf{g} = \frac{I_0(0, I_{ON}) Y_{ON}(z)}{I_0(0, I_{OFF}) Y_{OFF}(z)}.$$

En prenant le logarithme et en différenciant par rapport à la distance  $z$ , et si les deux longueurs d'onde sont très voisines ( $\mathbf{b}(z, I_{ON}) \gg \mathbf{b}(z, I_{OFF})$ ) et les deux faisceaux identiquement alignés (même divergence et même recouvrement), on aboutit à d'importantes simplifications :

$$A-4 \quad \frac{d}{dz} \ln\left(\frac{I(z, I_{ON})}{I(z, I_{OFF})}\right) = 2(\mathbf{a}_{ext}(z, I_{OFF}) - \mathbf{a}_{ext}(z, I_{ON}))$$

Les coefficients de diffusion des molécules et des aérosols peuvent être considérés comme identiques si  $I_{ON}$  et  $I_{OFF}$  sont très proches et donc :

$$A-5 \quad \mathbf{a}_{ext}(z, I_{OFF}) - \mathbf{a}_{ext}(z, I_{ON}) = \mathbf{a}_{Abs}(z, I_{OFF}) - \mathbf{a}_{Abs}(z, I_{ON}) = \Delta \mathbf{a}_{Abs}(z)$$

où  $\mathbf{a}_{Abs}$  représente le coefficient d'absorption tel que :  $\mathbf{a}_{ext} = \mathbf{a}_{diff} + \mathbf{a}_{Abs}$ .

$\mathbf{a}_{Abs}$  peut s'écrire :

$$A-6 \quad \mathbf{a}_{Abs} = \frac{N}{N_0} (N_0 \cdot \mathbf{s}_{Abs}) = x \mathbf{x}$$

avec  $N$  le nombre de molécules du polluant considéré par unité de volume,  $N_0$  le nombre total de molécule dans l'air par unité de volume ( $N_0 = 2,46 \cdot 10^{19}$  molécules.cm<sup>-3</sup> à 1013 mbar et 298 °K),  $\mathbf{s}_{Abs}$  la section efficace d'absorption (en cm<sup>2</sup>.molécules<sup>-1</sup>),  $x$  le rapport de mélange et  $\mathbf{x}$  le coefficient d'absorption (en cm<sup>-1</sup>.atm<sup>-1</sup>). Pour un intervalle fini  $\Delta z$ , l'équation A-4 devient :

$$A-7 \quad \frac{1}{\Delta z} \ln \left( \frac{I_{ON}(z) I_{OFF}(z + \Delta z)}{I_{OFF}(z) I_{ON}(z + \Delta z)} \right) = 2 \Delta \mathbf{a}_{Abs}$$

En utilisant A-6 dans A-7, la concentration a pour expression :

$$A-8 \quad x(z) = \frac{\ln \left( \frac{I_{ON}(z) I_{OFF}(z + \Delta z)}{I_{OFF}(z) I_{ON}(z + \Delta z)} \right)}{2 \Delta \mathbf{x} \Delta z} \cdot 10^9 \text{ (en ppb)}$$

Pour avoir la concentration à partir du signal reçu, il faut donc appliquer la procédure suivante : après soustraction des bruits de fond, le signal à  $I_{ON}$  est divisé par celui à  $I_{OFF}$  ; la dérivée du logarithme de ce rapport par rapport à la distance est proportionnelle à la concentration. Les concentrations ds gaz sont communément mesurées dans deux unités : les µg/m<sup>3</sup> et les parties par million (ppm) ou par milliard (ppb) en volume. La relation entre ces deux unités est :

$$\text{concentration de l'espèce } i \text{ en } \text{--ppm} = \frac{8,314 \cdot 10^{-2} T}{p \cdot M_i} \cdot \text{concentration en } \mu\text{g/m}^3.$$

avec :  $T$  la température en °K,  $p$  la pression en millibars et  $M_i$  le poids moléculaire de l'espèce  $i$ .

La technique DIAL, très employée actuellement<sup>4</sup>, permet donc d'obtenir des cartes en trois dimensions de la concentration d'un polluant donné avec une grande sensibilité (de l'ordre du  $\text{--ppb}$ ). Un exemple de concentrations retrouvées par cette méthode pour NO et NO<sub>2</sub> est présenté Figure A-1.



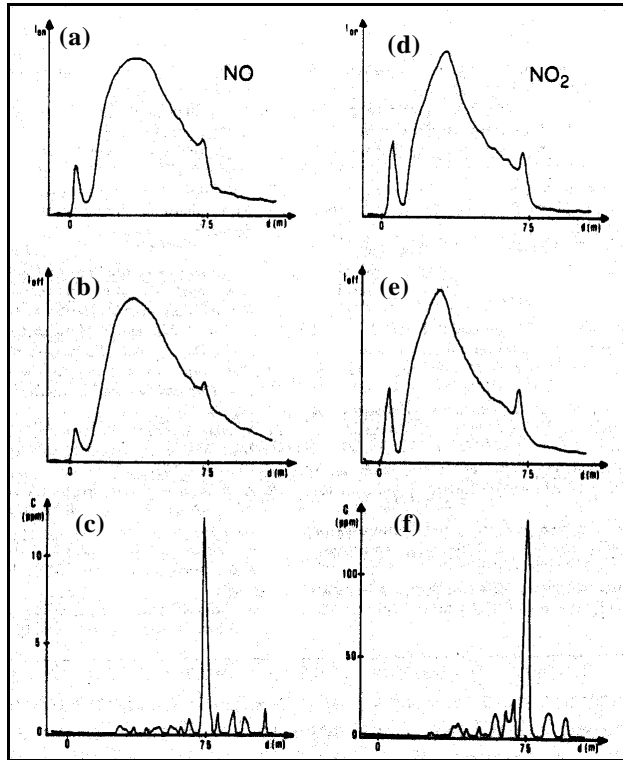


Figure A-1. Exemples de mesures de concentrations<sup>5</sup> pour NO (c) et NO<sub>2</sub> (f) par méthode DIAL à partir des mesures de  $I_{ON}$  ((a) et (d)) et  $I_{OFF}$  ((b) et (e)).

# Annexe B : Propriétés optiques des cristaux de KTP, KTA et KNbO<sub>3</sub>

## I. Dépendance en longueur d'onde des indices

La variation des indices principaux  $n_x, n_y, n_z$ , pour les cristaux biréfringents, est donnée par des équations empiriques de type équations de Sellmeier de la forme :

$$B-1 \quad n_i = \sqrt{\left( A_i + \frac{B_i}{1 - C_i \cdot I^2} - D_i \cdot I^2 \right)}$$

avec  $i=x, y, z$  et  $I$  exprimée en  $\mu\text{m}$ . Les coefficients  $A_i, B_i, C_i, D_i$  sont calculés pour reproduire au mieux, pour chaque type de cristal, les courbes d'accord de phase mesurées expérimentalement. Il existe ainsi plusieurs ensembles de coefficients.

### A. Cas du KTP

Pour ce cristal, deux ensembles de coefficients, l'un calculé par Bierlein<sup>6</sup> et l'autre par Kato<sup>7</sup> (Tableau B-1). Ces deux ensembles sont ceux qui reproduisent le mieux nos courbes expérimentales d'accord de phase.

Axes	A	B	C	D
$n_{x=a}$	2,1146 / 3,0065	0,89188 / 0,03901	0,20861 / 0,04251	0,0132 / 0,01327
$n_{y=b}$	2,1518 / 3,0333	0,87862 / 0,04154	0,21801 / 0,04547	0,01327 / 0,01408
$n_{z=c}$	2,3136 / 3,3134	1,00012 / 0,05694	0,23831 / 0,05658	0,01679 / 0,01682

Tableau B-1. Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTP obtenus par Bierlein<sup>6</sup> et par Kato<sup>7</sup>.

### B. Cas du KTA

Les coefficients  $A_i, B_i, C_i, D_i$  sont donnés dans le Tableau B-2. Il existe bien entendu d'autres valeurs pour ces coefficients dans la littérature, telles celles de Kato<sup>8</sup>.

Axes	A	B	C	D
$n_x$	1,90713	1,23522	0,19692	0,01025
$n_y$	2,15912	1,00099	0,21844	0,01096
$n_z$	2,14786	1,29559	0,22719	0,01436

Tableau B-2. Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTA obtenus par Fenimore<sup>9</sup>.

## C. Cas du KNbO<sub>3</sub>

L'équation de Sellmeier généralement utilisée pour l'obtention des différents indices de réfraction de ce cristal, est la suivante :

$$B-2 \quad n = \sqrt{1 + S_1 \cdot \frac{I^2 \cdot I_{abs\_1}^2}{I^2 - I_{abs\_1}^2} + S_2 \cdot \frac{I^2 \cdot I_{abs\_2}^2}{I^2 - I_{abs\_2}^2} - D \cdot I^2}$$

où  $n$  est l'indice de réfraction à la longueur d'onde  $I$ , exprimée en nm

$I_{abs\_1}$  et  $I_{abs\_2}$  sont les positions des différentes bandes d'absorption dans l'ultraviolet (d'énergie  $E_1$  et  $E_2$ ), qui sont soit liées aux phonons, soit ioniques ou bien encore liées aux transitions depuis la bande de valence vers la bande de conduction la plus basse.  $S_1$  et  $S_2$  sont les forces d'oscillation correspondant aux différentes bandes d'absorption, d'énergie  $E_1$  et  $E_2$  citées précédemment.  $D$  est le coefficient du terme de correction infrarouge. Les valeurs de ces indices sont données dans le Tableau B-4. Il existe, bien entendu, d'autres équations de Sellmeier, comme celles calculées, par exemple, par Umemura<sup>10</sup>

## II. Dépendance en température des indices

### A. Cas du KTP

La dépendance en température des indices de réfraction du KTP est donnée par l'équation suivante :

$$B-3 \quad \frac{dn_i}{dT} = (A_i \cdot I^{-3} - B_i \cdot I^{-2} + C_i \cdot I^{-1} + D_i) \cdot 10^{-6} / ^\circ C$$

avec  $i=x, y, z$ ,  $I$  en  $\mu m$  et les coefficients  $A_i, B_i, C_i, D_i$  connus empiriquement pour chaque cristaux (Tableau B-3).

Axes	A	B	C	D
$n_{x=a}$	1,427	4,735	8,711	0,952
$n_{y=b}$	4,269	14,761	21,232	-2,113
$n_{z=c}$	12,415	44,414	59,129	-12,101

Tableau B-3. Coefficients pour les équations de variation des indices du KTP en fonction de la température<sup>11</sup>.

Ainsi, pour une longueur d'onde de 1064 nm, on trouve les variations d'indices suivantes :

$$dn_x/dT = 6,1 \cdot 10^{-6} \cdot ^\circ C^{-1}, \quad dn_y/dT = 8,3 \cdot 10^{-6} \cdot ^\circ C^{-1}, \quad dn_z/dT = 14,5 \cdot 10^{-6} \cdot ^\circ C^{-1}$$

Cependant, ces variations d'indices sont très faibles, et il est donc difficile de réaliser un accord de phase en température.

### B. Cas du KNbO<sub>3</sub>

La variation des indices de réfraction du KNbO<sub>3</sub> dépend également de manière importante de la température. Ainsi l'équation suivante<sup>12</sup> permet de prendre en compte la température :

$$B-4 \quad n - 1 = (S_1 + b_1F + b_2G) \frac{I \cdot I_1}{I^2 - (I_1 + b_3F + b_4G)} + (S_2 + b_5F) \frac{I \cdot I_2}{I^2 - (I_2 + b_6F)^2} - I \cdot (D + b_7F) + I^4 \cdot b_8F$$

avec :  $F = (T^{\circ c} + 273.15)^2 - (22 + 273.15)^2$

$$G = T^{\circ c} - 22$$

$$I_i = \frac{1.239852}{E_i (eV)} \text{ nm où } i = 1,2 \text{ et } \lambda \text{ en nm.}$$

Les paramètres de cette équation sont répertoriés dans le Tableau B-4.

Paramètre	n <sub>a</sub>	n <sub>b</sub>	n <sub>c</sub>
S <sub>1</sub> (μm <sup>-2</sup> )	17,381	19,456	16,086
E <sub>1</sub> (eV)	4,7288	4,5492	4,8553
S <sub>2</sub> (μm <sup>-2</sup> )	142,40	134,95	166,258
E <sub>2</sub> (eV)	9,1082	9,0392	10,3834
D*10 <sup>-2</sup> (μm <sup>-2</sup> )	2,513	2,837	1,939
b <sub>1</sub> (μm <sup>-2</sup> )	-2,018.10 <sup>-5</sup>	-5,263.10 <sup>-5</sup>	63,267.10 <sup>-5</sup>
b <sub>2</sub> (μm <sup>-2</sup> )	-1,32.10 <sup>-3</sup>	-1,65.10 <sup>-3</sup>	-2,8.10 <sup>-3</sup>
b <sub>3</sub> (μm)	1,231.10 <sup>-7</sup>	2,38.10 <sup>-7</sup>	1,89.10 <sup>-7</sup>
b <sub>4</sub> (μm)	-1,82.10 <sup>-5</sup>	-6,78.10 <sup>-5</sup>	-2,48.10 <sup>-5</sup>
b <sub>5</sub> (μm <sup>-2</sup> )	9,017.10 <sup>-5</sup>	2,0536.10 <sup>-4</sup>	1,990.10 <sup>-4</sup>
b <sub>6</sub> (μm)	7,96.10 <sup>-8</sup>	1,767.10 <sup>-7</sup>	1,75.10 <sup>-7</sup>
b <sub>7</sub> (μm <sup>-2</sup> )	-5,58.10 <sup>-9</sup>	-1,22.10 <sup>-8</sup>	-2,70.10 <sup>-9</sup>
B <sub>8</sub> (μm <sup>-4</sup> )	-4,4.10 <sup>-10</sup>	-3,3.10 <sup>-10</sup>	-5,7.10 <sup>-10</sup>

Tableau B-4. Coefficients des équations de Sellmeier calculés par Zysset pour le KNbO<sub>3</sub>.

# Annexe C : Tenseurs de susceptibilités des cristaux de KTP, KTA et KNbO<sub>3</sub>

## I. Tenseur de susceptibilité du KTP

Comme le cristal de KTP est un cristal orthorhombique de classe  $mm2$ , le tenseur de susceptibilité électrique d'ordre deux  $\mathbf{c}^{(2)}$  a des composantes qui sont nulles :

$$\text{C-1} \quad \mathbf{c}^{(2)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 4 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 7,2 & 0 & 0 \\ 4,0 & 7,2 & 16,6 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Soit <sup>13</sup>:

$$\begin{aligned} d_{15} &= 2,0 \text{ pm/V}, & d_{24} &= 3,6 \text{ pm/V}, & d_{31} &= 2,0 \text{ pm/V}, \\ d_{32} &= 3,6 \text{ pm/V}, & d_{33} &= 8,3 \text{ pm/V} \end{aligned}$$

## II. Tenseur de susceptibilité du KTA

Comme le KTP, le KTA est un cristal orthorhombique de classe  $mm2$ , donc les mêmes composantes du tenseur de susceptibilité s'annulent :

$$\text{C-2} \quad \mathbf{c}^{(2)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 4,9 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 6,92 & 0 & 0 \\ 5,52 & 9,48 & 37 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Soit <sup>14</sup>:

$$\begin{aligned} d_{15} &= 2,45 \text{ pm/V}, & d_{24} &= 3,46 \text{ pm/V}, & d_{31} &= 2,76 \text{ pm/V}, \\ d_{32} &= 4,74 \text{ pm/V}, & d_{33} &= 18,5 \text{ pm/V} \end{aligned}$$

## III. Tenseur de susceptibilité du KNbO<sub>3</sub>

Jusqu'à présent, les valeurs des coefficients nonlinéaires trouvées dans la littérature varient considérablement. Biaggio *et al.* <sup>15</sup>, par exemple, mesurent des valeurs de  $d_{31} = -15,8 \text{ pm/V}$  et  $d_{32} = -18,3 \text{ pm/V}$ , alors que Roberts <sup>16</sup> a reporté des valeurs de  $d_{31} = -12,8 \text{ pm/V}$  et  $d_{32} = -11,3 \text{ pm/V}$ . Ici, on a choisi de présenter les valeurs de Biaggio *et al.* A titre de comparaison, les coefficients nonlinéaires du KTP sont :  $d_{31} = 2 \text{ pm/V}$  et  $d_{32} = 3,6 \text{ pm/V}$ . En valeurs absolues, le KNbO<sub>3</sub> a donc des coefficients nonlinéaires beaucoup plus élevés que le KTP, ce qui conduit donc à des efficacités de conversion plus importantes et des seuils d'oscillations plus bas. Le tenseur de susceptibilité est le suivant :

$$\text{C-3} \quad \mathbf{c}^{(2)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & -33 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -34,2 & 0 & 0 \\ -31,6 & -36,6 & -54,8 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Soit :

$$\begin{aligned} d_{15} &= -16,5 \text{ pm/V}, & d_{24} &= -17,1 \text{ pm/V}, & d_{31} &= -15,8 \text{ pm/V}, \\ d_{32} &= -18,3 \text{ pm/V}, & d_{33} &= -27,4 \text{ pm/V} \end{aligned}$$

## Annexe D : Résumé des cristaux testés

Cristal	theta; phi	Dim. (mm)	Seuil (MW/cm <sup>2</sup> )	E(s+i) (mJ)	Efficacité(s+i) (%)
KTP n° 51407004	NCPM Xcut lot2	5*5*10	6,9	1,5	5
KTP n° 63411056	NCPM Xcut lot2	5*5*20	4	22	34
KTP n° 71907007	NCPM Xcut lot2	4*4*5	21		
KTP n° 54409009	NCPM Xcut lot1	5*5*20	8,5	13	20,6
KTP n° 51407005	NCPM Xcut lot1	5*5*10	10	12,4	36
KTP n° 70609063	NCPM Xcut lot1	3*3*20	4,8	4,8	20
KTP n° 70807006	NCPM Xcut lot1	5*5*20	8,5	8,4	21
KTP n° 53811011	NCPM Xcut	5*5*10	5	10	14,1
KTP n° 53609011	NCPM Xcut	3*3*10	rien		
KTP n° 54411025	NCPM Xcut	5*5*15	<4,7	10,2	8
KTP n° 54411026	NCPM Xcut	5*5*15	<4,7	8,8	9
KTP n° 71109028	NCPM (AR)	5*5*20	<3,8	15,3	22
KTP n° 72709009	NCPM Xcut	3*3*10	8	8	17,5
KTP n° 81703066	NCPM (AR)	4*4*20	<3,8	12,4	12,5
KTP n° 82909006	NCPM Xcut	5*5*15	9	7,3	22
KTP n° 83608002	NCPM Xcut	12*12*20	14,8	8	15
KTP n° 60702030	73° ; 0°	4*6*18	5,5	8	21
KTP n° 62013001	54° ; 0°	6,8*7*15	30	1	
KTP	54° ; 0°		5,2	17	22
KTP n° 62510001	50,68° ; 0°	7*6*10	10	2,9	12,8
KTP n° 62510002	52,33° ; 0°	7*6*10	2,2	3,5	7,8
KTP n° 70113004	45,5° ; 0° (AR)	6*6*20	20	16,8	35,5
KTP n° 70807002	45,5° ; 0°	6*6*20	23		
KTP n° 91310001	41° ; 0°	7*5*20	24	4	
KTP n° 91313002	41° ; 0° (AR)	7*5*20	18	7,7	20,8
KTA n° 4490501	NCPM Xcut	5*5*10	19	4,6	4,5
KTA n° 44905C01	NCPM Xcut	5*5*6	rien		
KTA n° 50012002	NCPM Xcut	3*3*10	4,3	8,8	11
KTA n° 64706001	NCPM Xcut	6*6*13,5	rien (bleu)		
KTA n° 64706002	NCPM Xcut	12*9*10,8	13	1,3	6,4
KTA n° 84106001	NCPM Xcut	5*5*15,3	7	4,4	13,2
KTA n° 50012001	NCPM Xcut	3*3*10	5,5	8	9,2
KTA n° 82701001	40,42° ; 0°	4*4*10	rien (bleu)		
KTA n° 84106002	40,2° ; 0° (AR)	5*5*15,3	rien (bleu)		
KTA n° 84106002	40,2° ; 0°	5*5*15,3	rien		
KTA Crystal Ass.	39° ; 0° (AR)	5*5*15	39		
KNbO3 n° D102-12	41° ; 0°	5*5*10	10		
KNbO3 n° 109-13/2	41,5° ; 0°	6*6*10	27,8		
KNbO3 n° A109-24	41° ; 0°	4*4*10	45		
KNbO3 n° A124-14/1	41° ; 0°	6*6*10	22,6		
KNbO3 n° A124-14/1-5	41,1° ; 0°	6*6*9,9	15 (7)	5	
KNbO3 n° g11-12/1-2	41,08° ; 0° lot1	6*5,5*12,5	12	4	14,6
KNbO3 n° g11-12/1-5	41,12° ; 0° lot1	6*5,5*14,7	9,4	4,9	12
KNbO3 n° I62-7/2	41° ; 0°	6*6*13	3	6,3	21,4
RTA n° 75006001	NCPM Xcut	3*3*10	rien (bleu)		

---

<sup>1</sup> Wolf J. P., *et al.*, « Remote detection of atmospheric pollutants using differential absorption lidar techniques », in *Applied Laser Spectroscopy*, Demtröder W. and Inguscio M., eds. (Plenum, New York, 1990).

<sup>2</sup> Weidauer D., *et al.*, « Ozone, VOC, NO<sub>2</sub>, and aerosol monitoring in urban and industrial areas using a mobile dial system », in *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, Ansmann A., Neuber R., Rairoux P., and Wandinger U., eds. (Springer-Verlag, Heidelberg, 1996).

<sup>3</sup> Measures R. M., « Laser remote sensing : fundamentals and applications », (Krieger, Malabar Florida, 1992).

<sup>4</sup> Fujii T., Fukuchi T., *et al.*, « Dual differential absorption lidar for the measurement of atmospheric SO<sub>2</sub> of the order of parts in 10<sup>9</sup> », *Applied Optics* **40**, 949, (2001).

<sup>5</sup> Kölsch H. J., Rairoux P., *et al.*, « Simultaneous NO and NO<sub>2</sub> DIAL measurement using BBO crystals », *Appl. Optics* **28**, 2052, (1989).

<sup>6</sup> Bierlein J. D., Vanherzeele H., « Potassium titanyl phosphate : properties and new applications », *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 622, (1989).

<sup>7</sup> Kato K., « Parametric oscillation at 3.2  $\mu$ m in KTP pumped at 1.064  $\mu$ m », *IEEE-J. Quantum Elec* **27**, 1137, (1991).

<sup>8</sup> Kato K., « Second-harmonic and sum frequency generation in KTA », *IEEE- J. Quantum Elec* **30**, 881, (1994).

<sup>9</sup> Fenimore D. L., Schepler K. L., *et al.*, « Infrared corrected Sellmeier coefficients for KTA », *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 794, (1995).

<sup>10</sup> Umemura N., Yoshida K., *et al.*, « Phase-matching properties of KNbO<sub>3</sub> in the mid-infrared », *Applied Optics* **38**, 991, (1999).

<sup>11</sup> Wiechmann W., Kubota S., *et al.*, « Refractive-index temperature derivatives of KTP », *Opt. Lett.* **18**, 1208, (1993).

<sup>12</sup> Dmitriev V. G., Gurzadyan G. G., and Nikogosyan D. N., « Handbook of nonlinear optical crystals », (Springer, Berlin, 1997).

<sup>13</sup> Roberts A. D., « Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinear crystals : a plea for standardization of nomenclature and conventions », *IEEE JQE* **28**, 2057, (1992).

<sup>14</sup> Cheng L. K., Cheng T., *et al.*, « Properties of doped and undoped crystals of single domain KTA », *App. Phys. Let.* **62**, 346, (1993).

<sup>15</sup> Biaggio I., Kerkoc P., *et al.*, « Refractive indices of orthorhombique KNbO<sub>3</sub>. II Phase-matching configurations for nonlinear-optical interactions », *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 507, (1992).



---

<sup>16</sup> Roberts A. D., « Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinear crystals : a plea for standardization of nomenclature and conventions », IEEE JQE **28**, 2057, (1992).