

# Détection de molécules par lidar agile multi-longueurs d'onde dans l'infrarouge moyen

Thèse

Simon Lambert Girard

**Doctorat en physique** Philosophiae doctor (Ph.D.)

Québec, Canada

© Simon Lambert Girard, 2015

## Résumé

Cette thèse présente la preuve de concept d'un nouveau système de télédétection multi-gaz utilisant la spectroscopie active d'absorption optique différentielle (active *Differential Optical Absorption Spectroscopy* ou *active* DOAS). Le système opère dans l'infrarouge proche et moyen. Celui-ci est conçu pour mesurer des gaz à une distance d'une centaine de mètres avec l'utilisation de cibles non coopératives, telles que les éléments de la topographie du terrain. Le système inclut un générateur paramétrique (*Optical Parametric Generator* ou OPG) permettant la génération d'impulsions ayant un spectre large (10 à >100 nm) et dont la longueur d'onde centrale est accordable entre 1.5 et 3.8 µm. Un télescope couplé à un spectrographe et à une caméra MCT-APD maison permettent de détecter le spectre de retour de chaque impulsion. Les expériences montrent la détection simultanée, dans l'air et dans une cellule, de H<sub>2</sub>O et CO<sub>2</sub> à 2 µm et de H<sub>2</sub>O et CH<sub>4</sub> à 3.3 µm. Les limites de détection pour notre expérience sont respectivement de 158 et 1 ppm·m pour le gaz carbonique et le méthane. Un algorithme original permet d'extraire les concentrations de gaz à partir d'un spectre de transmission présentant de signatures fortes d'absorption.

Le développement d'un OPG conçu spécialement pour le système est détaillé. Son utilisation offre des avantages intéressants pour la mesure de gaz à distance. Les propriétés de l'OPG sont étudiées numériquement et expérimentalement afin d'optimiser son utilisation pour la mesure de gaz. Nous discutons des compromis à faire sur les paramètres de la pompe, du cristal et des sources d'injection (seed). L'objectif est d'optimiser la densité spectrale et la divergence tout en augmentant l'énergie de sortie. Un laser d'injection large bande est construit et il permet d'optimiser la stabilité de l'OPG d'une impulsion à l'autre, la densité d'énergie et la divergence. Un modèle numérique permet de simuler correctement le niveau de puissance de l'OPG, d'expliquer les mécanismes de saturation de l'amplificateur et de proposer des moyens pour améliorer la stabilité d'une impulsion à l'autre.

### Summary

This thesis presents the proof-of-concept of a novel remote sensing system designed for the detection of molecular species, such as gas pollutants, via active Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS) in the short and mid wavelength infrared (SWIR/MWIR). The system is designed to be used in applications where gases need to be detected at a distance of about one hundred meters with the use of non-cooperative targets such as topographical features. The system includes an Optical Parametric Generator (OPG) generating broad linewidth (10 to >100 nm) pulses tunable between 1.5 and 3.8  $\mu$ m. A telescope coupled to a grating spectrograph and an in-house gated MCT-APD measures the whole return spectrum of each pulse. Experiments show simultaneous detection in indoor atmospheric air and inside a cell of H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> at 2  $\mu$ m and H<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> at 3.3  $\mu$ m. In the context of our experiment, the detection limits for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> are 158 and 1 ppm·m, respectively. A new algorithm is also presented enabling the determination of concentrations when spectra include strong absorption features.

The development of a dedicated Optical Parametric Generator (OPG) is presented in detail. Its use in remote sensing of gaseous pollutants offers some promising advantages. The OPG properties are studied numerically and experimentally in order to optimize its use for the application. We discuss trade-offs to be made on the properties of the pump, crystal and seeding signal in order to optimize the pulse spectral density and divergence while enabling energy scaling. A seed with a large spectral bandwidth is shown to enhance the pulse to pulse stability and optimize the pulse spectral density and divergence. A numerical model simulating the OPG process is proposed and includes the multiple wavelength nature of the beams. It shows excellent agreement with experimental output power. The model also explains the mechanisms of gain saturation in OPGs and helps finding means of enhancing the pulse to pulse stability.

# Table des matières

	III
SUMMARY	V
TABLE DES MATIÈRES	VII
LISTE DES TABLEAUX	XI
LISTE DES FIGURES	XIII
LISTES DES ABRÉVIATIONS ET DES SYMBOLES	XVII
REMERCIEMENTS	XXI
AVANT-PROPOS	XXIII
INTRODUCTION	1
1 CONTEXTE D'APPLICATION ET PROPOSITI	ON DE SOLUTION5
1.1 Problématique et besoins	5
1.2 Spectroscopie par absorption	
1.2         Spectroscopie par absorption           1.2.1         Systèmes récents	<b>11</b> 
1.2         Spectroscopie par absorption           1.2.1         Systèmes récents           1.2.1.1         Peignes de fréquences	
1.2         Spectroscopie par absorption           1.2.1         Systèmes récents           1.2.1.1         Peignes de fréquences           1.2.1.2         Supercontinuum	
1.2         Spectroscopie par absorption           1.2.1         Systèmes récents           1.2.1.1         Peignes de fréquences           1.2.1.2         Supercontinuum           1.2.1.3         OPO accordable	<b>11</b> 13 13 13 13 14
1.2       Spectroscopie par absorption         1.2.1       Systèmes récents         1.2.1.1       Peignes de fréquences         1.2.1.2       Supercontinuum         1.2.1.3       OPO accordable         1.2.1.4       QCL accordable	<b>11</b> 13 13 13 13 13 14 14
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	11 13 13 13 13 14 14 15
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	<b>11</b> 13 13 13 13 14 15 <b>16</b> 17
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	11 13 13 13 13 14 14 15 15 16 17 19
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	11 13 13 13 13 14 14 15 15 16 17 19 20
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	11 13 13 13 14 15 16 17 19 20 21
<ul> <li>1.2 Spectroscopie par absorption</li></ul>	11 13 13 13 14 15 16 17 19 20 20 21

2.3	Largeur de raie et énergie	29
2.3.1	1 Choix des paramètres	
2.4	Puissance de sortie	31
2.4.1	1 Simulations numériques	
2.5	Conclusion	38
3 N	MISE EN OPÉRATION ET CARACTÉRISATION DE L'OPG	
3.1	Prototype # 1 : Montage et expérimentation	
3.2	Prototype # 2 : Montage	42
3.2.1	1 Injection d'un signal d'entrée	44
3.3	Mesures expérimentales	
331	1 Puissance et accordabilité	
3.3.2	2 Spectre	
3.3.3	3 Divergence du faisceau	
3.3.4	4 Stabilité impulsion à impulsion	53
3.4	Discussion	
3.4.1	1 Accordabilité et largeur spectrale	
3.4.2	2 Qualité de faisceau	
3.4.3	3 Augmentation de l'énergie	
3.4.4	4 Stabilité	60
3.5	Conclusion	62
4 S	SYSTÈME DE TÉLÉDÉTECTION	65
4.1	Montage	65
4.2	Caméra	
5 S	SPECTROSCOPIE PAR ABSORPTION	73
5.1	Théorie	
5.2	Algorithmes	
5.3	Conclusion	
6 N	MESURE DE GAZ : PREUVE DE CONCEPT	79
6.1	Mesures sans référence	79

6.2	Mesures avec référence
6.3	Performances du système
6.4	Modifications futures
6.4.1	Spectre de référence
6.4.2	2 Rapport signal sur bruit
6.4.3	Sensibilité et limite de détection
6.5	Conclusion
7 P	ERSPECTIVES FUTURES
7.1	Mesure de gaz95
7.2	Mesure de cible solide96
7.3	Mesure des aérosols97
7.4	Conclusion
CON	CLUSION
Aspect	s originaux100
BIBL	IOGRAPHIE103
ANNI	EXE 1: SOA FIBER RING LASERS: SINGLE VS MULTIMODE LASER 111

# Liste des tableaux

Tableau 1. Comparaison de différents systèmes spectroscopiques MWIR. <sup>1</sup> Valeur estimée. <sup>2</sup> Limite	)
de détection pour un écart type1	6
<b>Tableau 2.</b> Revue de la littérature sur les OPG avec PPXX. D'autres articles sur les OPG ne sont	
pas indiqués dans le tableau : [60, 61-63].	27
<b>Tableau 3.</b> Stabilité calculée numériquement pour différents paramètres de la pompe et de la	
source d'injection6	52
<b>Tableau 4.</b> Comparaison de différents systèmes spectroscopiques MWIR. <sup>1</sup> Valeur estimée. <sup>2</sup> Le	
bruit est égal à un écart type. <sup>3</sup> A 3.3 μm	37

# Liste des figures

Figure 1. Schéma d'utilisation de la spectroscopie par absorption pour caractériser les panaches
industriels. Dans ce cas, une cible est installée derrière la cheminée5
<b>Figure 2.</b> Spectres d'absorption pour certains hydrocarbures entre 3.3 et 3.4 µm [15]. Le graphique
démontre la difficulté de mesurer précisément le méthane en présence d'hydrocarbures plus
complexes. L'unité de mesure ppm·m est le produit de la concentration du gaz avec la longueur
d'interaction (voir section 5.1)
Figure 3. Signal de retour du détecteur suite à la propagation de 2 km dans l'atmosphère. Les
variations sont le résultat de la turbulence. Leur amplitude dépend de l'état de l'atmosphère.
L'image est tirée de [16]8
Figure 4. Intensités des raies spectrales de gaz d'intérêt dans la région 3-5 µm [18]. L'unité pour
l'intensité des raies est cm <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup> cm <sup>2</sup> ce qui est équivalent au cm/molécule utilisé par les auteurs de
[18] dans la Figure 4. On remarque aussi que les intensités des raies de SO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> S et NO <sub>2</sub> sont
quelques ordres de grandeurs inférieures aux autres gaz d'intérêts. Quant à eux, HF et NO ont des
raies entre 2.5 et 3 µm9
Figure 5. Intensité des raies rotationnelles et vibrationnelles du CO <sub>2</sub> , tiré de SpectralCalc [19] et
Hitran [20]. Plusieurs ordres de grandeur séparent l'intensité des raies fondamentales dans le MWIR
aux combinaisons de modes présentes dans le SWIR10
Figure 6. Transmission atmosphérique entre 3 et 5 µm, calculée avec SpectralCalc [19]
(propagation de 200 m, résolution de 1nm, modèle utilisé: US standard)10
Figure 7. Différentes sources laser disponibles dans l'IR [38]. Le graphique date de 2003. Des DFB
sont maintenant accessibles à plus de 2 $\mu$ m et des QCL sont disponibles jusqu'à moins de 3 $\mu$ m 19
Figure 8 : Illustration des processus OPG, OPA et OPO [39].
Figure 9. Design compact obtenu en combinant un laser microchip et un PPLN [44]25
Figure 10. Spectres de sortie pour le signal pour des impulsions pompe de 1 ns et de 1 ps. Les
spectres sont supposés gaussiens. (a) Échelle linéaire. (b) Échelle logarithmique. La ligne
horizontale bleue indique la position à FWHM pour le spectre de 1 ps
Figure 11. Efficacité de conversion numérique (ligne noire pleine) et expérimentale (cercles
pleins). Le graphique est tiré de [69] et il permet de clairement distinguer les deux régimes
d'amplification (linéaire et exponentiel) compte tenu de l'échelle logarithmique
<b>Figure 12.</b> Résultats des simulations numériques: (a) Énergies de sortie de l'idler et du signal vs
énergie d'entrée de la pompe MLM. La ligne continue et l'axe vertical sur la droite montrent
l'efficacité de conversion. (b) Énergie de sortie idler pour trois différentes pompes: 1) pompe MLM
+ bruit à l'entrée pour le signal et l'idler, 2) pompe SLM + bruit à l'entrée pour le signal et l'idler et
3) pompe SLM + entrée CW SLM pour le signal et l'idler. Les énergies de sortie sont moyennées
sur 10 impulsions. Note : Dans la simulation, les vecteurs d'entrée (signal et idler) SLM CW ont
une puissance équivalente au niveau d'entrée du bruit. Lorsque la simulation est répétée avec des
puissances d'entrée supérieures (signal et idler SLM CW), le niveau du seuil d'émission se déplace
vers les basses énergies mais le comportement oscillatoire de la courbe reste le même. La figure est
reproduite à partir de [2]
Figure 13. Forme des impulsions de la pompe et de l'idler, à la sortie de l'OPG pour des énergies
d'entrée de la pompe de $U_{3,in}$ = 20, 25,30 et 35 µJ. (a-d): Résultats de simulations numériques pour
une pompe SLM et une entrée CW SLM pour le signal et l'idler. À des fins de comparaison,

(e) montre les impulsions de l'idler et de la pompe de sortie pour une pompe MLM ( $U_{3,in} = 35 \mu$ J).
<b>Figure 14.</b> Montage du prototype #1. VOA : atténuateur optique variable M : miroir, OD : filtre à densité neutre, D : Dichroïque. L'atténuateur optique variable est construit à partir d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur40
<b>Figure 15.</b> Énergie de sortie du signal (µJ) en fonction de l'énergie d'entrée de la pompe. La courbe présente les résultats pour les cristaux de 20 et de 40 mm
<b>Figure 16.</b> Énergie de sortie du signal en fonction de l'intensité crête de la pompe pour des diamètres dans le plan de l'étranglement de 150 et de 300 µm (cristal de 40 mm)
<b>Figure 17.</b> Schéma du montage de l'OPG. D: lame dichroïque, M: miroir, VOA: atténuateur optique variable, ISO: isolateur optique, L: lentille. Le VOA est construit à partir d'une lame demi- onde et d'un cube polariseur. Il permet aussi de tourner adéquatement la polarisation. La figure est reproduite à partir de [2]
<b>Figure 18.</b> Montage expérimental pour l'injection d'un signal à large bande s'élevant à 1 et de 15 nm. La figure est reproduite à partir de [6]
Figure 19. Spectres normalisés des trois sources d'injection. La figure est reproduite à partir de [2].
Figure 20. Mesures expérimentales de l'énergie de sortie, signal et idler, en fonction de l'énergie de la pompe. La ligne continue et l'axe vertical de droite expriment l'efficacité de conversion. La figure est reproduite à partir de [2]
Figure 21. Comparaison entre l'énergie de sortie du signal mesurée expérimentalement (voir fig. 20) et celle calculée numériquement (voir fig. 12a)
<ul> <li>Figure 22. Accordabilité de l'OPG en fonction de la période d'inversion et de la température du PPMgO:LN. Les mesures expérimentales sont représentées par un 'X'. Les lignes continues sont tracées à partir des équations de Sellmeier [66]. La figure est reproduite à partir de [2]</li></ul>
<b>Figure 24.</b> Spectre du signal normalisé (moyenne de 300 impulsions, $U_3 = 108 \mu$ J). L'intensité est
Figure 25. Spectres du signal pour différentes positions de l'ouverture carrée, avec et sans source d'injection (15 nm). Pour une ouverture placée au centre du faisceau, on observe une augmentation de la densité de puissance de 15 % lorsque le faisceau est ensemencé. Le centre du faisceau est aussi décalé de 0.27 mm. La figure est reproduite à partir de [2]
B) $U_3 = 108 \ \mu\text{J}$ . 2) Avec injection d un signal de 15 min à différences puissances : C) 11 mw, $U_3 = 108 \ \mu\text{J}$ . D) 142 mW, $U_3 = 108 \ \mu\text{J}$ . E) 283 mW, $U_3 = 108 \ \mu\text{J}$ . Les spectres associés à ces mesures sont présentés à la fig. 23. La figure est reproduite à partir de [2]

un ajustement, ou régression, selon un modèle $a \cdot x^b$ . (b) Écart type ( $\sigma(n)$ ) en fonction du voltage	
détecté (valeur maximale sur le spectre moyen). Les analyses utilisent un $m = 300$ . Lors de cette	
mesure, la source d'injection est éteinte. La figure est reproduite à partir de [2]	56
<b>Figure 29.</b> Schéma d'amplification décrit dans [48]. La source est utilisée dans un système DIAL	
permettant la mesure du CO <sub>2</sub> à grande distance.	59
<b>Figure 30.</b> Schéma du système de mesure constitué de deux plaques de montage optiques	
superposées. La plaque (a) est positionnée sur le dessus de la plaque (b). La sortie du télescope	
(faisceau collimaté) est dirigée avec les miroirs (M7-8) vers la plaque de montage optique	
inférieure. La figure est reproduite à partir de [3]6	36
Figure 31. Dessin assisté par ordinateur du télescope. Le télescope a été conçu à partir d'un ancien	ı
concept de lidar de l'INO.	37
<b>Figure 32.</b> Image du faisceau idler à environ 10 m du système. L'image a été prise avec une	
caméra Spiricon Pyrocam III. La taille est de 12.4 X 12.4 mm <sup>2</sup> 6	38
Figure 33. Photos du prototype	39
Figure 34. Caméra MCT-APD avec le boîtier ouvert montrant le FPA de Selex	71
<b>Figure 35.</b> Modélisation de la transmission à travers 300 000 et 30 000 ppm·m de H <sub>2</sub> O autour de	
3.3 µm. La transmission (T) est calculée avec l'eq. (5) et $T_{approx}$ avec l'eq. (6). La résolution est de	
1.7 nm. Les courbes $T_{approx}(30\ 000\ \text{ppm}\cdot\text{m})$ et $T(30\ 000\ \text{ppm}\cdot\text{m})$ se confondent	75
Figure 36. Erreur associée à la régression à partir de l'eq. (6) pour différentes concentrations de	
vapeur d'eau. La régression, méthode des moindres carrés, a été appliquée sur des spectres simulés	3
à partir de l'eq. (5), sur une plage de 3275 à 3360 nm avec une résolution de 1.7 nm	76
Figure 37. Représentation graphique de l'algorithme. La figure est reproduite à partir de [3]7	78
Figure 38. Mesure du CO <sub>2</sub> et H <sub>2</sub> O atmosphériques sans correction par le spectre émis: (a) Spectre	
expérimental de transmission ( $T_{exp\_corr}$ ) et régression ( <i>fit</i> ); (b) régression décomposée en ses	
composantes CO <sub>2</sub> et H <sub>2</sub> O; (c) résidu ( $SD = 0.026$ ). Le spectre détecté est une moyenne sur 1000	
impulsions. La figure est reproduite à partir de [3]	31
Figure 39. Mesure de CH <sub>4</sub> et d'H <sub>2</sub> O dans l'air faite sans référence: (a) Spectre expérimental de	
transmission ( $T_{exp\_corr}$ ) et régression; (b) Régression décomposée en ses composantes; (c) Résidu	
(SD = 0.04). Le spectre détecté est une moyenne sur 3000 impulsions. La figure est reproduite à	
partir de [3]	31
<b>Figure 40.</b> Mesure du CO <sub>2</sub> dans une cellule avec référence. (a) 203 mbar ou 20 036 ppm m, (b)	
résidu pour 203 mbar (SD = 0.0016), (c) 32.9 mbar ou 3247 ppm·m, (d) résidu pour 32.9 mbar (SD	D
= 0.0015). Les spectres détectés sont une moyenne sur 1000 impulsions. La figure est reproduite à	l
partir de [3]	34
Figure 41. (a) Mesure du CH <sub>4</sub> relâché dans l'air au temps 0 sec (avec référence). L'algorithme	
utilise une résolution de 1.7 nm. (b) Résidu pour 0 sec ( $SD = 0.0047$ ). (c) Mesure au temps 190 sec	).
(d) Résidu pour 190 sec, ( $SD = 0.0038$ ). Les spectres détectés sont une moyenne sur 1000	
impulsions. La figure est reproduite à partir de [3]	36
Figure 42. Diagramme de décision pour l'établissement d'une référence	39
Figure 43. Prédiction du SNR en fonction de la distance (SNR <sub>dB</sub> = 10log(SNR <sub>lineaire</sub> )). Conditions :	
moyennage dur 1000 impulsions, gain MCT = 1, cible lambertienne ayant une réflectivité de 10 %	
	90
Figure 44. Photo du prototype, installé dans une remorque, lors de sa première utilisation sur le	
terrain. La cible n'était pas installée sur cette photo	96

Figure 45. Spectre de transmission du TNT. Le spectre est la combinaison de deux acquisitions d'environ 75 nm de largeur spectrale. Une moyenne mobile a été appliquée ainsi qu'un décalage permettant d'éviter la discontinuité entre les 2 spectres. La résolution de la mesure est d'environ 5 nm. En guise de comparaison, la référence [30] montre une résolution d'environ 10 nm pour le même type de mesure.
97
Figure 46. Sections efficaces de rétrodiffusion de différents bio-aérosols. Les données sont normalisées par rapport à leur valeur à 1.5 μm. Les données brutes proviennent de [87].

# Listes des abréviations et des symboles

#### **Abréviations :**

	And the all a Direct and a
APD	Avalanche Pholoaloae
ASE	Amplified Spontaneous Emission
COIS	Commercial off-the-shelf
COV	Compose Organique Volatile
	Continuous Wave
BPF	BandPass Filter
DISC	Differential Scattering
DFB	Distributed FeedBack
DOAS	Differential Optical Absorption Spectroscopy
EDFA	Erbium Doped Fiber Amplifier
FPA	Focal Plane Array
FTIR	Fourier Transform InfraRed
FWHM	Full Width at Half Maximum
GES	Gaz à Effet de Serre
LWIR	Long Wavelength InfraRed ( $\lambda = 8 - 25 \ \mu m$ )
MWIR	<i>Mid Wavelength InfraRed</i> ( $\lambda = 2.4 - 8 \ \mu m$ )
MCT	Mercure Cadmium Tellure (HgCdTe)
MLM	Multiple Longitudinal Modes
OPA	Optical Parametric Amplifier
OPG	Optical Parametric Generator
OPO	Optical Parametric Oscillator
PC	Polarization Controller
PPLN	Periodically Poled Lithium Niobate
PPLT	Periodically Poled Lithium Tantalate
PPMgO:LN	Periodically Poled Lithium Niobate avec dopage MgO
QCL	Quantum Cascade Laser
RSD	Relative Standard Deviation
SAS	Supercontinuum Absorption Spectroscopy
SD	Standard Deviation
SLED	Superluminescent diode
SLM	Single Longitudinal Modes
SNR	Signal to Noise Ratio
SOA	Semicondutor Optical Amplifier
SWIR	Short Wavelength Infrared ( $\lambda = 0.7 - 2.4 \mu m$ )
TLAS	Tunable Laser Absorption Spectroscopy
TDLAS	Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy
UV	Ultra-Violet
VIS	Visible
1 10	

#### Symboles :

Symbole	Signification	[Unités]
$\mathcal{C}_{j}$	Concentration du gaz # j	[mol/m <sup>3</sup> ]
$L_j$	Longueur d'interaction du gaz # j	[m]
$\sigma_j(\lambda)$	Section efficace d'absorption du gaz # j	[m <sup>2</sup> /mol]
Р	Coefficient d'étalonnage: polynôme pour la ligne de	
	base	
tj	Coefficient d'étalonnage: compression spectrale du	
	gaz # j	
Sj	Coefficient d'étalonnage: décalage spectral du gaz # j	
$I(\lambda)$	Fonction de transfert du spectrographe	
$CL_j$	Produit concentration X longueur d'interaction	[ppm·m ou mol/m²]
$\sigma cL_j$	Épaisseur optique	
$\alpha(\lambda)$	Absorbance	
$T(\lambda)$	Transmission	
i	Identification des faisceaux: idler $(i = 1)$ , signal $(i = 2)$	
	et pompe $(i = 3)$	
$\boldsymbol{e}_i(\boldsymbol{x},t)$	Champ électrique	[V/m]
$\boldsymbol{E}_{i}(\boldsymbol{x},t)$	Enveloppe du champ électrique	[V/m]
ω	Fréquence angulaire optique	[rad/s]
υ	Fréquence optique	$\lfloor 1/s \rfloor$
$oldsymbol{k}_{0i}$	Vecteur d'onde	[rad/m]
ni	Indice de réfraction	[]
ngi	Indice de groupe	
$\beta_{2,i}$	Dispersion de la vitesse de groupe (GVD)	[fs <sup>2</sup> /mm]
$d_{e\!f\!f}$	Coefficient non linéaire effectif	[pm/V]
С	Vitesse de la lumière dans le vide	[m/s]
63	Permittivité du vide	[F/m]
Ι	Intensité	$[W/m^2]$
x	Position dans le cristal	[m]
t	Temps	[s]
$U_x$	Energie par impulsion	[J]
P	Puissance	
$\lambda_i$	Longueur d'onde	
$\alpha_i$	Perte linéaire dans le cristal	[1/m]
L	Longueur du cristal	[m]
$\Delta \boldsymbol{k}$	Différence de phase	[rad]
Λ	Vecteur d'inversion	[rad/m]

À ma mère et Eve-Lyne

## Remerciements

J'aimerais d'abord remercier mes deux directeurs, M. Michel Piché et M. François Babin pour avoir rendu le projet possible et pour l'accompagnement tout au long de ces quelques années. Merci Michel pour la liberté dans le choix de mes projets. Merci François pour m'avoir orienté sur l'essentiel à maintes reprises. Je vous remercie pour avoir partagé vos connaissances avec moi.

Il m'est important de remercier tous ceux qui m'ont aidé et partagé mon quotidien à l'INO : Félix Cayer, Martin Lamonde, Jean-François Cormier, Daniel Cantin, François Chateauneuf, Dany Lemieux, Patrick Paradis, Frédéric Émond, Vincent Roy, Sébastien Leclerc, Pierre Cottin, Marc Deladurantaye, Paul-François Paradis, Claude Paré, Benoît Debaque, Jean-François Gravel, Rob Brown, Pierre-Olivier Belzile, Ovidiu Pancrati et Simon Turbide. Ce projet est le résultat d'un travail d'équipe. En particulier, j'aimerais remercier Martin Allard, Bruno Bourliaguet, Nicolas Hô et Jean-François Cormier pour leur soutien. Mon séjour à l'INO m'aura aussi permis de participer à plusieurs autres projets et discussions. J'ai beaucoup apprécié cette diversité, tout en faisant de la recherche appliquée à des besoins concrets.

Par ailleurs, je suis financièrement redevable auprès du Conseil de Recherche en Sciences Naturelles et en Génie du Canada (CRSNG), l'Institut Canadien pour les Innovations en Photonique (ICIP) et l'Institut National d'Optique (INO). Le projet a aussi reçu l'aide de M. Bernard Ruchet, de la compagnie Exfo, qui a généreusement prêté du matériel.

Finalement, j'aimerais remercier ma famille et amis; les bons moments en votre compagnie m'ont permis de décrocher dans les moments plus difficiles. Le dernier remerciement ira à ma copine qui m'a accompagné et soutenu tout au long du projet.

## **Avant-propos**

Les travaux de cette thèse ont été exécutés dans le cadre d'une collaboration entre l'Institut National d'Optique (INO) et le professeur Michel Piché du Centre d'optique photonique et laser (COPL) de l'Université Laval. À l'époque, je désirais travailler sur le développement d'instruments optiques opérant sur des problématiques environnementales. Ce désir m'a conduit à l'INO.

Le projet a été défini au cours de la première année du doctorat: l'objectif était de concevoir et construire un nouveau système spectroscopique laser pour effectuer la mesure de gaz à distance dans l'infrarouge moyen. Cette première année aura aussi permis de travailler sur la dynamique d'une cavité laser fibrée ayant comme milieu de gain un amplificateur à semiconducteur. Ce travail est résumé dans un papier intitulé *SOA Fiber Ring Lasers: Single-Versus Multiple-Mode Oscillation*, publié dans le journal *Selected Topics in Quantum Electronics* [1]. Le papier est reproduit à l'annexe 1 et ne sera plus traité ici.

Au départ, le projet n'avait aucun historique, tout était à construire et à apprendre. Notre premier concept de système de télédétection demandait le développement d'une source très large bande émettant dans l'infrarouge moyen. Au cours de la seconde année du doctorat, nous avons développé une source supercontinuum dans l'infrarouge moyen. Pour ce faire, nous avons procédé à l'étirement de microfils (*tapers*) à partir de fibres optiques de chalcogénure<sup>1</sup>. Cette avenue a été abandonnée compte tenu de la fragilité du microfil, de la faible puissance moyenne et du niveau d'énergie par impulsion. Le projet s'est alors tourné vers une avenue plus prometteuse : le développement d'une source OPG. Cette thèse traite de cette source et du développement du système de télédétection. Son contenu est le compte rendu détaillé de deux publications [2, 3] publiées dans la revue *Applied Optics*. Quatre comptes rendus de conférence ont également été publiés [4-7].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> L'idée était de générer un supercontinuum uniquement dans la région spectrale d'intérêt (3-5  $\mu$ m) et ainsi maximiser sa densité d'énergie. Pour ce faire, le microfil a un zéro de dispersion autour de 4  $\mu$ m et celui-ci est pompé par un OPO dont la longueur d'onde est centrée sur ce zéro de dispersion. Nous avons réalisé des microfils adiabatiques de 10  $\mu$ m de diamètre ayant une longueur de plus de 1 cm. Cette idée a récemment été validée expérimentalement par un autre groupe (voir Marandi et al. 2012).

#### Liste des publications :

1. S. Girard-Lambert, M. M. Piche, C. Hongxin, G. G. Schinn, O. Wang-Yuhl, and B. B. Bouma, "SOA Fiber Ring Lasers: single-versus multiple-mode oscillation," Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE 17, 1513-1520 (2011).

2. S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "Broadband and tunable optical parametric generator for remote detection of gas molecules in the short and mid infrared," Applied Optics 54, 2594-2605 (2015).

3. S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "A differential optical absorption spectroscopy lidar for mid-infrared gaseous measurements," Applied Optics 54, 1647-1656 (2015).

4. S. Lambert-Girard, N. Hô, B. Bourliaguet, P.-F. Paradis, M. Piché, and F. Babin, "Proposal for a standoff bio-agent detection SWIR/MWIR differential scattering lidar," in SPIE Defense, Security, and Sensing Proc. SPIE 8358, (2012).

5. S. Lambert-Girard, N. Hô, B. Bourliaguet, D. Lemieux, M. Piché, and F. Babin, "Broadband spectroscopic lidar for SWIR/MWIR detection of gaseous pollutants in air," in SPIE Remote Sensing, Proc. SPIE 853410, (2012).

6. S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "Enhancement to INO's broadband SWIR/MWIR spectroscopic Lidar," in Optics and Photonics, Proc. SPIE 8872, (2013).

7. F. Babin, S. Lambert-Girard, P.-F. Pararis, M. Piche, M. Allard, M.-C. Ferland, and J.-F. Cormier, "Concept for a standoff bioagent SWIR/MWIR differential scattering lidar," in CBRNe convergence (2013).

#### Introduction

La découverte du laser en 1960 a offert un outil formidable pour la détection de gaz à distance. Les propriétés de ces sources cohérentes ont permis un développement exceptionnel des techniques de mesures. À titre d'exemple, il est maintenant possible de quantifier à distance des concentrations inférieures à une partie par milliard (ppb) [8, 9] et il sera bientôt possible de cartographier les sources anthropiques d'émissions de gaz à effet de serre à partir de lasers montés sur des satellites [10, 11]. Dans différents domaines, des systèmes encore plus performants sont nécessaires pour répondre à de nouveaux besoins. Par exemple, la science des changements climatiques requiert la cartographie des flux de différents gaz à effet de serre afin de cerner complètement leur cycle de vie. En défense et sécurité, il est nécessaire de développer des instruments permettant de déterminer rapidement la composition d'un nuage de gaz inconnu et potentiellement dangereux.

Les applications industrielles sont également nombreuses. Sachant que les préoccupations environnementales sont maintenant importantes, entre autres en ce qui concerne la qualité de l'air, il est maintenant demandé aux industries de limiter l'émission de certains gaz dans l'atmosphère. Cette problématique suscite beaucoup d'intérêt pour la télédétection optique. A titre d'exemple, de nouveaux capteurs sont nécessaires pour identifier les fuites de gaz naturel lors de l'extraction, du raffinage et du transport par pipeline. Ces fuites représentent d'importantes pertes financières et doivent être réduites à moins de 1% du volume d'extraction. Au-dessus de ce seuil, le remplacement du charbon par le gaz naturel dans les centrales électriques n'est pas valable du point de vu de la réduction des gaz à effet de serre (réduction du forçage radiatif) [12]. Le facteur clé pour la limitation des fuites de gaz naturel est leur détection de manière fréquente et généralisée. Pour ce faire, de nouveaux capteurs doivent être portables et robustes pour l'utilisation sur le terrain à partir de différentes plateformes (aérienne, automobile, drone aérien, à la main) [12].

La mesure des gaz à la sortie des cheminées industrielles est aussi d'un grand intérêt. Il est important d'identifier et de quantifier ces panaches afin de contrôler les émanations par rapport aux normes des agences gouvernementales de l'environnement. Entre autres, les nouvelles normes d'émission des gaz à effet de serre sont de plus en plus sévères [13]. D'autres gaz (dangereux pour la santé, inflammables, explosifs ou toxiques) doivent aussi être contrôlés, car d'intérêt pour la santé publique, la sécurité publique ou pour l'environnement.

Cette thèse s'intéresse en particulier à ces dernières applications industrielles. La détection à distance est nécessaire pour la mesure de sites inaccessibles et dangereux ou pour cartographier rapidement une infrastructure. Elle est aussi nécessaire pour l'application des règles d'émission à partir de l'extérieur du périmètre d'une propriété. Contrairement aux systèmes passés, les nouveaux systèmes devront permettre d'identifier et de quantifier de façon précise la multiplicité des gaz émis par les principales industries polluantes (cimenteries, incinérateurs, raffineries et centrales de génération d'électricité à partir de combustibles fossiles). Un instrument idéal devra aussi être portable, robuste et facile d'utilisation. Dans ce contexte, l'objectif de cette thèse est de contribuer au développement de nouveaux systèmes de télédétection, permettant de mesurer les concentrations de multiples gaz, grâce à la spectroscopie optique par absorption dans l'infrarouge moyen.

Notre démarche a été la suivante. Au début du projet, nous avons analysé les capteurs disponibles commercialement et conduit une revue de la littérature afin de répertorier les nouvelles technologies qui pourraient apporter des solutions. À partir de cette étude, nous avons proposé un nouveau concept de détection. Pour la réalisation de celui-ci nous avons dû développer 1) une source laser infrarouge, 2) un système de télédétection incluant une nouvelle caméra infrarouge et 3) un algorithme de calcul pour extraire les concentrations de gaz à partir de spectres d'absorption. Dans ces trois sphères, nous avons fait des contributions originales qui seront décrites dans ce document. Finalement, nous avons fait la démonstration de concept de l'instrument lors de mesures de gaz en laboratoire. Nous exposerons les limites de détection du système, ses avantages et inconvénients ainsi que les modifications à apporter pour un éventuel déploiement sur le terrain.

La structure de ce document respecte aussi cette logique. Au premier chapitre, on présente la problématique ainsi que les caractéristiques d'un instrument idéal. On présente ensuite une revue des systèmes spectroscopiques actifs opérant dans l'infrarouge moyen ayant été proposés récemment. À partir de ces références, on élabore le concept d'opération de notre instrument. Le document est ensuite divisé en 7 chapitres. Les deuxième et troisième chapitres traitent en détail de l'OPG (*Optical Parametric Generator*), qui est le cœur du système de télédétection. On y présente d'abord la conception de l'OPG puis les résultats expérimentaux. Les chapitres quatre à sept sont réservés au système de télédétection. On y présente successivement le montage expérimental, l'algorithme de détection et la preuve de concept en laboratoire. Le chapitre sept présente trois perspectives pour l'utilisation future du système de télédétection. En conclusion, on résume les avancées importantes de cette thèse en y soulignant les aspects originaux.

## 1 Contexte d'application et proposition de solution

Ce premier chapitre aborde le contexte d'application et les caractéristiques de l'instrument idéal. On y présente ensuite une revue des systèmes spectroscopiques actifs, opérant dans l'infrarouge moyen, qui ont été proposés récemment. À partir de ces références, nous élaborerons le concept d'opération de notre instrument. Celui-ci est basé sur des avancées scientifiques au niveau de la source laser et au niveau du système de détection. Finalement, nous présenterons un résumé des caractéristiques de la source et du détecteur développés spécialement pour l'application.

#### 1.1 Problématique et besoins



100 m

**Figure 1.** Schéma d'utilisation de la spectroscopie par absorption pour caractériser les panaches industriels. Dans ce cas, une cible est installée derrière la cheminée.

En introduction, nous avons vu les applications pour lesquelles nous souhaitions apporter une nouvelle solution technologique. Il s'agit de 1) la détection des fuites de méthane dans les installations de gaz naturel et 2) la détection des composés chimiques gazeux dans les panaches industriels. L'utilisation de la spectroscopie optique par absorption est un outil très polyvalent pour effectuer une mesure de gaz à distance [8, 9]. Un tel système est habituellement constitué d'une source lumineuse, d'un télescope et d'un détecteur permettant la mesure d'un spectre. La lumière artificielle est propagée dans l'atmosphère et à travers les gaz à détecter, e.g. un panache industriel. Dans un système mono-statique, la lumière est redirigée vers le système par l'entremise d'une réflexion sur un rétroréflecteur ou une cible topographique ou par la rétrodiffusion des aérosols. Finalement, la lumière est collectée par le télescope et dirigée sur le détecteur. L'analyse des signatures d'absorption dans le spectre détecté permet d'identifier et de quantifier les gaz. La spécificité de la mesure provient de l'utilisation de raies d'absorption (électronique ou rotationnelle ou vibrationnelle) uniques à chaque molécule. La fig. 1 présente un exemple d'utilisation de ce type de système pour la mesure de panaches. Quant à eux, les instruments passifs utilisent la lumière ambiante émise par le soleil, la lune, les surfaces ou diffusée par les particules en suspension dans l'air ou celle émise par le nuage de gaz. La conception d'un instrument actif permet de bénéficier de l'intensité des sources artificielles. Ce faisant, il est possible d'effectuer une mesure plus rapidement et dans toutes les conditions (nuit, jour, lorsque le nuage est à la même température que la scène). Aussi, le fait de connaître la source d'émission facilite la quantification des concentrations [14].

Afin de répondre aux besoins de la problématique, un système idéal de mesure à distance actif et mono-statique devrait présenter les cinq propriétés suivantes :

1) Détection multi-gaz et spécifique: La multiplicité des émissions de gaz (gaz à effet de serre, gaz polluants et toxiques) requiert un instrument capable de détecter simultanément plusieurs molécules. Pour ce faire, on doit disposer d'une capacité de détection sur une grande plage spectrale afin de cibler de nombreuses raies d'absorption. Le système doit aussi être spécifique. Dans l'IR, pour les molécules simples ayant une structure rotationnelle/vibrationnelle résolue, la sélectivité est obtenue en sélectionnant des raies d'absorption exemptes d'interférents. Il n'est pas toujours possible de procéder ainsi. En effet, les spectres d'absorption incluent fréquemment des interférents tels que la vapeur d'eau ou le gaz carbonique, molécules présentes en grande proportion dans l'atmosphère. De plus, il est parfois impossible

de procéder à une mesure à l'extérieur des bandes d'absorption larges de molécules complexes telles que les composés organiques volatils (voir fig. 2). Dans ces cas, il est nécessaire de procéder à une mesure sur de multiples longueurs d'ondes, afin de mesurer aussi l'interférent. Il est complexe de construire un système ayant les requis pour mesurer à la fois des raies étroites et les signatures très larges des molécules complexes.



**Figure 2.** Spectres d'absorption pour certains hydrocarbures entre 3.3 et 3.4  $\mu$ m [15]. Le graphique démontre la difficulté de mesurer précisément le méthane en présence d'hydrocarbures plus complexes. L'unité de mesure ppm·m est le produit de la concentration du gaz avec la longueur d'interaction (voir section 5.1).

2) Limite de détection faible et détection sensible : Le terme sensibilité est défini comme l'absorption minimale que le système peut détecter. Une sensibilité suffisante est nécessaire pour obtenir des limites de détection faibles pour mesurer des gaz à l'état de traces ou ayant des sections efficaces faibles. Une mesure sensible permet aussi de réduire le temps de mesure et possiblement faire de l'imagerie en balayant le faisceau. Pour gagner en sensibilité, le bruit de mesure doit être minimisé. On cherche à mesurer de petites absorptions (jusqu'à 10<sup>-4</sup>), donc de petites variations d'un signal DC bruité. Les premières sources de bruit sont la fluctuation de l'intensité de la source et le bruit associé au détecteur. Une autre source de bruit est la turbulence atmosphérique qui induit une variation aléatoire du signal de retour. La fig. 3 illustre cette variation pour une propagation de 2 km dans l'atmosphère. Ainsi, un bruit important sera ajouté si les différentes longueurs d'onde ne sont pas détectées en

même temps. L'atmosphère peut être considérée gelée si la prise de données pour la bande spectrale détectée est effectuée à l'intérieur de quelques centaines de microsecondes [16, 17]. La dernière source de bruit importante, outre celle du détecteur, est le bruit venant de la scène. Dans le cas d'une mesure dans l'IR, le bruit thermique provient de la scène, de l'instrument et du soleil.



**Figure 3.** Signal de retour du détecteur suite à la propagation de 2 km dans l'atmosphère. Les variations sont le résultat de la turbulence. Leur amplitude dépend de l'état de l'atmosphère. L'image est tirée de [16].

Afin d'obtenir des limites de détection faibles, le système doit aussi présenter une résolution spectrale fine, idéalement comparable à la largeur des raies à monitorer. Si la résolution optique du système est faible par rapport aux caractéristiques spectrales d'absorption, le spectre d'absorption mesuré montrera un lissage diminuant la limite de détection. Finalement, pour les applications citées plus haut, il n'est pas possible d'augmenter la longueur d'interaction afin d'obtenir un signal plus important.

3) Opération dans l'infrarouge moyen : Afin de répondre aux points concernant la sensibilité et la sélectivité, une capacité de détection large bande dans l'infrarouge moyen (2.4 – 8 μm) est souhaitée [8]. En effet, cette région inclut de nombreuses signatures fortes et distinctes qui lui ont valu le nom de *fingerprint region*. En particulier, la région 2.5 – 5 μm inclut les vibrations fondamentales des liens C-H, O-H et N-H, liaisons omniprésentes dans les composés organiques. Pour les applications ciblées, on note aussi la possibilité de détecter efficacement le CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, HCl, SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>S, NH<sub>3</sub>, HF et les composés organiques volatils (voir fig. 4). Les modes de vibration fondamentaux ont des coefficients d'absorption de plusieurs ordres de grandeur plus élevés que leurs harmoniques ou leurs combinaisons trouvés à des longueurs d'ondes inférieures à 2.4 μm (voir fig. 5). De plus, ces signatures chevauchent des fenêtres de transparence atmosphériques nécessaires pour les

mesures à distance (voir fig. 6). Pour la suite du document, nous séparons le spectre électromagnétique infrarouge en trois différentes régions nommées en anglais : *Short Wavelength Infrared* ( $\lambda = 0.7 - 2.4 \mu m$ ) ou SWIR, *Mid Wavelength Infrared* ( $\lambda = 2.4 - 8 \mu m$ ) ou MWIR et *Long Wavelength Infrared* ( $\lambda = 8 - 25 \mu m$ ) ou LWIR. Nous utiliserons ainsi les acronymes SWIR, MWIR et LWIR.



**Figure 4.** Intensités des raies spectrales de gaz d'intérêt dans la région 3-5  $\mu$ m [18]. L'unité pour l'intensité des raies est cm<sup>-1</sup>mol<sup>-1</sup>cm<sup>2</sup> ce qui est équivalent au cm/molécule utilisé par les auteurs de [18] dans la Figure 4. On remarque aussi que les intensités des raies de SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>S et NO<sub>2</sub> sont quelques ordres de grandeurs inférieures aux autres gaz d'intérêts. Quant à eux, HF et NO ont des raies entre 2.5 et 3 µm.



**Figure 5.** Intensité des raies rotationnelles et vibrationnelles du CO<sub>2</sub>, tiré de SpectralCalc [19] et Hitran [20]. Plusieurs ordres de grandeur séparent l'intensité des raies fondamentales dans le MWIR aux combinaisons de modes présentes dans le SWIR.



**Figure 6.** Transmission atmosphérique entre 3 et 5  $\mu$ m, calculée avec SpectralCalc [19] (propagation de 200 m, résolution de 1nm, modèle utilisé: US standard).

4) Cibles non coopératives: L'utilisation d'un rétroréflecteur situé à l'extrémité du parcours optique est à proscrire compte tenu de l'inaccessibilité de la fin de parcours dans plusieurs applications. Par ailleurs, leur utilisation (alignement) est complexe et requiert du personnel scientifique. Dans plusieurs applications, il est possible d'utiliser la réflexion sur des cibles topographiques situées à l'arrière du nuage de gaz. Par exemple, un édifice situé derrière une cheminée peut être utilisé ou une

réflexion sur le sol dans le cadre d'un système aéroporté. Ces cibles non coopératives génèrent des niveaux de retour plus faibles que celles dites coopératives (miroirs, rétroréflecteurs). D'autres applications requièrent l'utilisation des aérosols comme source de rétrodiffusion. Dans ces cas, il est possible d'obtenir un profil de la concentration des aérosols le long du parcours optique. Avec une cible, la mesure implique la concentration intégrée de gaz le long du parcours optique. L'absence d'un rétroréflecteur resserre les critères sur un système demandant, entre autres, une source plus énergétique et un détecteur ayant un faible bruit. Ainsi, en plus d'un système sensible, i.e., capable de mesurer des faibles absorptions, celui-ci doit permettre la détection de signaux faibles. A l'origine du projet, un système ayant les propriétés permettant la détection large bande à partir de cibles non coopératives (ou d'aérosols) n'était pas disponible. Afin que les signaux de retour soient supérieurs au niveau du bruit, pour la même puissance moyenne, il est préférable de condenser l'énergie de la source dans des impulsions énergétiques [21]. Ainsi, une faible cadence d'émission est préférable.

5) Opération : Un système doit être robuste, facilement transportable ainsi que de faibles masse, volume et consommation électrique. Finalement, il doit être opérable sans le savoir-faire d'un scientifique.

En résumé, nous souhaitons développer un système de télédétection aux capacités suivantes: détection à distance sur plus de 100 m à partir de la réflexion sur une cible topographique et un système sensible capable de mesurer sur une large bande dans le MWIR.

#### 1.2 Spectroscopie par absorption

Les méthodes de spectroscopie par absorption se distinguent en fonction de l'information spectrale recueillie pour récupérer les concentrations de gaz. Les approches de *Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy* (TDLAS) [22], *DIfferential Absorption Lidar* (DIAL) (qui utilise deux longueurs d'onde) [9] et de corrélation gazeuse [23] sont conçues pour détecter un seul gaz à la fois. Quant à elle, la spectroscopie d'absorption optique différentielle active, ou DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*), [14] utilise de nombreuses longueurs d'onde provenant d'une source artificielle pour monitorer de multiples gaz. La

comparaison avec des spectres modélisés ou mesurés en laboratoire permet l'identification et la quantification des gaz. L'opération peut être effectuée de l'UV à l'infrarouge à partir d'une source ayant un spectre large ou balayée en longueur d'onde. Par rapport au système DIAL à deux longueurs d'ondes, la détection à de multiples longueurs d'onde permet une sensibilité plus élevée [24], une sélectivité améliorée, puisqu'il est possible de mesurer aussi les interférents, et une mesure simultanée de nombreux gaz avec des signatures étroites et larges.

Des systèmes DOAS actifs sont utilisés dans l'UV (ultraviolet) et dans le visible à partir de différentes sources (diode électroluminescente, lampe au Xenon, supercontinuum, Cr:LiSaF) [14, 25]. Les systèmes commerciaux utilisent des rétroréflecteurs. Plusieurs polluants d'intérêt peuvent être détectés dans cette région du spectre électromagnétique. On note par exemple le NO, le NO<sub>2</sub>, le SO<sub>2</sub> et des hydrocarbures aromatiques (benzène, toluène, xylène, éthylène). Par contre, la majorité des signatures d'absorption d'intérêts se trouvent à une longueur d'onde inférieure à 350 nm ce qui limite la mesure à des courtes distances (< 100 m) et pose des problèmes au niveau de la sécurité lorsque des sources UV intenses sont utilisées. Le MWIR offre la possibilité de mesure à plus grande distance en régime de sécurité oculaire et davantage de gaz à détecter que le VIS/UV [8, 9].

Historiquement, les *open-path* FTIR (*Fourier Transform Infrared Spectroscopy*) ont permis cette mesure DOAS dans le MWIR. Ces systèmes utilisent des sources thermiques incohérentes, des rétroréflecteurs, un télescope et un spectromètre à transformée de Fourier [26]. Ces systèmes sont limités par les contraintes associées à la source thermique : faible puissance crête, faible densité spectrale ainsi qu'une cohérence spatiale et temporelle très limitée. L'utilisation d'une source cohérente pulsée de forte énergie serait bénéfique, mais peu de sources cohérentes opérant au-dessus de 2 µm possèdent les propriétés recherchées. Cette affirmation tend à changer avec la mise en place de plusieurs efforts de recherche pour développer de nouveaux lasers IR. Il existe un grand intérêt pour inclure ces nouveaux lasers MWIR dans les systèmes DOAS. Le remplacement de la source incohérente par un laser offre la perspective d'une mesure plus rapide et plus sensible ainsi que l'utilisation de cibles topographiques au lieu des rétroréflecteurs. La section suivante résume les travaux récents en spectroscopie d'absorption IR à partir de quatre nouvelles sources MWIR (peignes de fréquence, OPO accordable, supercontinuum et QCL) qui permettent une détection large
bande. Nous discuterons de leurs propriétés en fonction des cinq caractéristiques recherchées décrites à la section précédente.

#### 1.2.1 Systèmes récents

#### 1.2.1.1 Peignes de fréquences

Premièrement, la technologie des peignes de fréquences femtosecondes est utilisée pour la détection de gaz à haute résolution sur une large bande (centaines de nm) dans le SWIR et le MWIR. Par exemple, Adler et al [24] ont utilisé un OPO femtoseconde en combinaison avec un interféromètre de Michelson pour analyser les gaz à l'intérieur d'une cellule à passes multiples. Compte tenu de la résolution du système, déterminée par la largeur spectrale des raies du peigne (~ 0.007 nm), et de l'utilisation de la cellule multi-passes, les limites de détection sont très basses (ppb). Les caractéristiques du système sont résumées au tableau 1. Il est possible d'éliminer les contraintes liées à l'interféromètre de Michelson en utilisant deux peignes femtosecondes. Les peignes, ayant une cadence légèrement différente, interfèrent et reproduisent l'effet d'une variation très rapide de la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Entre autres, des spectromètres à deux peignes SWIR ont conduit à deux expériences intéressantes. Premièrement, Boudreau et al.[27] montrent la mesure combinée de la distance et de la concentration de HCN à partir de la rétrodiffusion sur des gouttelettes d'eau. Deuxièmement, Rieker et al. [16] proposent la mesure simultanée des concentrations intégrées de CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O sur un parcours atmosphérique de 2 km terminé par un rétroréflecteur. Cette technique est prometteuse. Par contre, les peignes femtosecondes sont complexes et leur utilisation sur le terrain représente un défi. De plus, ceux-ci ont intrinsèquement une faible énergie par impulsion (des dizaines de nJ ou moins) à une cadence élevée (MHz). Comme affirmé plus haut, une basse cadence et une énergie par impulsion élevée sont préférées. Les propriétés de ce système sont résumées dans le tableau 1.

#### 1.2.1.2 Supercontinuum

Une autre approche pour le DOAS MWIR utilise des sources de supercontinuum. La technique est appelée *Supercontinuum Absorption Spectroscopy*, ou SAS. Celle-ci a commencé avec l'utilisation de supercontinua SWIR. Par exemple, les auteurs de [28,29] utilisent une source de supercontinuum commerciale afin de déterminer la teneur en vapeur

d'eau dans l'air ambiant à partir de la détection d'un spectre large autour de 1.4  $\mu$ m. Dans [28], l'expérience inclut un rétroréflecteur situé à 200 m et un analyseur de spectre optique. Des efforts ont été entrepris pour étendre cette technique à la région MWIR [8]. À partir d'une fibre optique infrarouge (en ZBLAN), Kumar et al [30] ont produit un supercontinuum s'étendant jusqu'au MWIR (0.75 à 4.3  $\mu$ m à -20 dB). Cette source a permis la détection à distance de surfaces solides présentant des signatures IR telles que des molécules d'explosifs. Ces auteurs ont utilisé un monochromateur pour extraire le spectre d'absorption avec une résolution d'environ 10 nm. Les propriétés de ce système sont résumées dans le tableau 1. Comme avec les peignes, les supercontinua opèrent à une cadence élevée (MHz) et offrent un faible niveau d'énergie par d'impulsion (< $\mu$ J). À noter, l'utilisation de fibres optiques de chalcogénure permet maintenant l'extension du supercontinuum au-delà de 5  $\mu$ m [31].

#### 1.2.1.3 OPO accordable

Au lieu d'utiliser une source large bande couplée à un spectromètre, il est possible d'utiliser une source accordable et une simple photodiode. Ce concept est nommé TLAS (*Tunable Laser Absorption Spectroscopy*) [32]. Récemment, de nouveaux OPO (*Optical Parametric Oscillator*) accordables ont permis d'étendre les possibilités de ces systèmes (vitesse de mesure, résolution, largeur de bande et réduction de l'empreinte de la source). Par exemple, Ruxton et al. [33] ont utilisé un OPO compact et accordable (2.5 à 3.7 um) pour quantifier des mélanges de composés organiques volatils dans une cellule à multiples passes. L'accordabilité est obtenue en déplaçant rapidement un PPLN (*Periodically Poled Lithium Niobate*) à période d'inversion variable latéralement (*fan-out PPLN*) dans la cavité. La largeur spectrale de l'OPO (~ 5 nm) définit la résolution du système et conduit à une faible limite de détection. Une version imageante du système comprend un laser et un télescope montés sur un dispositif de balayage [34]. Les auteurs ont acquis des images hyperspectrales de surfaces montrant des signatures infrarouges (e.g. des explosifs).

L'ONERA (Office national d'études et de recherches aérospatiales, organisme français) [21] travaille depuis plusieurs années sur un concept d'OPO compact, accordable et opérant sur un seul mode longitudinal. Le concept est basé sur une cavité doublement résonnante, dont les longueurs sont contrôlées finement par des platines de translation piézoélectriques. La plage d'accordabilité fine est limitée (~ 15 nm) et lente (minutes), mais résulte en une

résolution fine d'environ 0.004 nm. La région d'accordabilité peut être choisie dans le MWIR selon les propriétés du cristal avec inversion périodique utilisée (période d'inversion et température). L'OPO amplifié dans un OPA (*Optical Parametric Amplifier*) a permis de monitorer des gaz atmosphériques (méthane et vapeur d'eau) sur un parcours de 30 m avec une cible non coopérative [35].

Les propriétés de ces deux systèmes sont résumées au Tableau 1. L'approche TLAS offre une possibilité de haute énergie par impulsion et une détection simplifiée. Par contre, le défi est complexe : il est difficile de balayer rapidement un large spectre avec des longueurs d'onde rapprochées et résolues finement qui conduisent à une sensibilité élevée [32]. Comme affirmé plus haut, l'analyse rapide est nécessaire afin de réduire l'impact des perturbations temporelles qu'elles soient de nature atmosphérique ou instrumentale.

#### 1.2.1.4 QCL accordable

Enfin, les lasers à cascade quantique (QCL) sont aussi utilisés en mode TLAS pour surveiller simultanément plusieurs gaz atmosphériques à partir de l'absorption directe dans le MWIR (on exclut ici l'utilisation en mode TDLAS où la détection sur une seule raie est faite sur des harmoniques de la modulation). Des longueurs de parcours atmosphériques de dizaines de mètres, terminées par des rétroréflecteurs, ont été utilisées [36, 37] pour la mesure simultanée de N<sub>2</sub>O et CH<sub>4</sub> ou O<sub>3</sub>. Les QCL à cavité externe offrent la possibilité de balayer rapidement (sec), des centaines de nm dans la région de 3.5 à > 9  $\mu$ m, avec des millions de longueurs d'onde qui ont une largeur de raie étroite (< 0,01 cm<sup>-1</sup>). Cependant, l'énergie par impulsion est faible (nJ), ce qui rend difficile l'utilisation de cibles non coopératives. Finalement, le tableau 1 présente le résumé des propriétés des systèmes cités dans cette section.

	FTS	TL	4 <i>S</i>	SAS	QCL	
Laser	Peigne fs	OPO	OPO +OPA	SC	QCL (DFB)	
λ (μm)	2.8-4.8	2.5-3.7	3.3-3.7	2.53	7.69-7.71	
Largeur du spectre (nm)	~100-330	~ 5	~ 0.004	>4000	~ 0.05	
Cadence (kHz)	136000	150	2	2000	20	
Puissance (mW)	> 1000	80	4-10	4000	0.6	
Énergie (µJ)	0.007	0.5	2-5	2	0.03	
Densité d'énergie (µJ/nm)	7x10 <sup>-8</sup> / line	-	-	5 x10 <sup>-4</sup>	-	
Détection	Cellule, FTIR, MCT	Cellule, MCT	Télescope MCT, boxcar	Cibles solides, Télescope, Monochromateur InSb, detection synchrone	Cellule, MCT	
Résolution (nm)	~0.007	~ 5	~ 0.004	~10	0.05	
Niveau de bruit (%) <sup>2</sup>	0.51	>11	-	0.16	0.51	
Limite de détection CH4 (ppm·m)	0.18	-	61	-	1.5	
Temps de mesure (s)	< 30	-	-	150	1x10 <sup>-3</sup>	
Référence	[24]	[33]	[35]	[30]	[36]	

**Tableau 1.** Comparaison de différents systèmes spectroscopiques MWIR. <sup>1</sup>Valeur estimée.

 <sup>2</sup>Limite de détection pour un écart type.

# 1.3 Notre approche

À la section 1.1, les propriétés d'un système de mesure idéal ont été exposées. En résumé, le système devrait pouvoir effectuer une mesure sensible, sur une large bande dans le MWIR, à une distance de plus de 100 m à partir d'une cible non coopérative. Pour maximiser le nombre de signatures détectables et valider les concentrations en présence d'interférents, le monitoring doit être fait à des longueurs d'onde rapprochées et couvrir un large spectre dans le MWIR. Chaque longueur d'onde doit être résolue finement afin de conduire à des limites de détection faibles. Il est complexe de développer ce type de système à partir d'une source accordable tout en figeant l'atmosphère. L'approche combinant spectre large et spectromètre a ainsi été privilégiée. Contrairement aux systèmes utilisant des supercontinua ou des peignes de fréquences, on souhaite utiliser une source large bande ayant une cadence plus faible et

une haute densité spectrale d'énergie ( $\mu$ J/nm). Ces propriétés sont nécessaires afin d'effectuer une mesure à l'aide de cibles non coopératives, et éventuellement, des aérosols.

Le concept derrière le fonctionnement de notre système combine les caractéristiques des systèmes TLAS et SAS. Une source laser émet un spectre modérément large (100 nm), mais accordable dans la région des signatures MWIR définie par l'application. La détection du spectre de chaque impulsion est effectuée avec un spectrographe; ainsi toutes les longueurs d'onde sont émises et détectées simultanément. En diminuant la cadence de la source au kHz et en réduisant l'élargissement spectral, il est possible de maximiser la densité spectrale d'énergie. La prochaine section (1.3.1) décrit notre concept de source laser. La section 1.3.2 décrit, quant à elle, le système de détection.

#### 1.3.1 Laser MWIR

Du côté de la source, les propriétés recherchées sont:

- Largeur spectrale modérée (de 10 à 100 nm), réglable en fonction de l'application, et accordable à travers le MWIR. Dans un premier temps, la région 1.5 - 5 μm est privilégiée compte tenu du nombre important de gaz détectables. Des spectres, couvrant une dizaine à quelques centaines de nm, sont suffisants pour plusieurs applications. Par exemple, la détection de méthane autour de 3.3 μm, en présence de vapeur d'eau ou de composés organiques volatils, est possible avec un spectre de plusieurs dizaines de nm. En plus du MWIR, l'accordabilité dans le SWIR est souhaitée afin de bénéficier des raies de certains gaz n'étant pas accessibles dans le MWIR.
- Haute densité spectrale d'énergie ( > µJ/nm ). Le processus d'amplification doit aussi permettre une augmentation de l'énergie de sortie afin d'utiliser éventuellement la rétrodiffusion sur les aérosols.
- 3) Bonne cohérence spatiale afin de permettre des mesures à plus de 100 m.
- Régime impulsionnel avec des durées courtes ( < μs ) afin d'opérer en mode de crénelage temporel et ainsi réduire l'impact du bruit thermique de la scène.
- 5) Bonne stabilité impulsion à impulsion afin de réduire le bruit sur la mesure de gaz.

6) Compacité, robustesse et faible masse pour le déploiement sur le terrain.

Outre la conversion paramétrique, aucune autre source ne peut actuellement générer des impulsions d'énergie atteignant des centaines de  $\mu$ J, à une cadence dans les kHz et accordable sur tout le MWIR (voir fig. 7). Une architecture OPG (*Optical Parametric Generator*) a le potentiel de répondre aux exigences citées plus haut. Bien que les OPO (*Optical Parametric Oscillator*) requièrent une puissance de pompe inférieure, les OPG sont capables de générer des impulsions avec une largeur de bande plus grande. Ils sont intrinsèquement plus simples, moins sensibles à l'alignement et moins vulnérables à des facteurs environnementaux rencontrés sur le terrain, tels que les variations de température et les vibrations.

L'OPG bénéficie des caractéristiques des pompes déclenchées (O-switch) Nd:YAG. Ce sont des sources matures, compactes et robustes. Les régimes impulsionnels nanoseconde et picoseconde permettent des énergies et des intensités crêtes élevées, qui sont nécessaires afin d'assurer une efficacité de conversion élevée. En ce qui concerne le milieu non linéaire, les cristaux de quasi-accord de phase de niobate de lithium (PPLN, Periodically Poled Lithium Niobate) ou tantalate de lithium (PPLT) offrent une non linéarité élevée, un décalage spatial nul (spatial walk-off) et des dimensions importantes (section et longueur). La combinaison de ces deux technologies permet une large accordabilité  $(1.1 - 5 \mu m)$ , des watts de puissance moyenne et une configuration simple. Des signaux ayant des spectres de largeur moyenne (1-100 nm) et des densités élevées d'énergie, peuvent être générés en sélectionnant les paramètres de la pompe (durée d'impulsion et énergie) et du cristal (composition, géométrie, période d'inversion, température). De plus, les OPG avec injection (seed) offrent la possibilité de réduire la largeur spectrale et de produire un balayage rapide de la longueur d'onde. Les chapitres 2 et 3 de cette thèse traitent du développement de cette source. Nous en avons étudié la conception afin d'adapter l'OPG à la télédétection de gaz sur une large bande spectrale.



**Figure 7.** Différentes sources laser disponibles dans l'IR [38]. Le graphique date de 2003. Des DFB sont maintenant accessibles à plus de 2  $\mu$ m et des QCL sont disponibles jusqu'à moins de 3  $\mu$ m.

#### 1.3.2 Détection MWIR

Du côté de la détection, un télescope récolte la lumière de la scène et l'oriente vers un spectromètre. Le concept de détection exige de mesurer le spectre de chaque impulsion, dans la région  $1.5 - 5 \mu m$ , avec une résolution fine. Pour ce faire, le choix le plus simple est d'utiliser un spectrographe. Des spectrographes commerciaux à réseau sont disponibles, possédant une résolution (< 1nm) suffisante pour la preuve de concept. Du côté de l'imageur, notre concept d'opération repose sur la possibilité d'utiliser une caméra ayant les propriétés suivantes : pixels de faibles dimensions ainsi qu'en nombre suffisant pour mesurer un spectre s'étalant sur plus de 100 nm et ayant une sensibilité élevée de 1.5 à 5  $\mu m$ . De plus, une opération en mode de crénelage temporel, avec des fenêtres de courte ouverture, est souhaitée afin d'isoler les impulsions du bruit thermique ambiant. Lors d'une mesure à partir de la rétrodiffusion sur les aérosols, le crénelage temporel permettrait d'effectuer des profils de concentration. Les capteurs MCT-APD (semiconducteur HgCdTe), opérant en mode avalanche (APD, PhotoDiode à Avalanche), offrent toutes ces caractéristiques. La section 4.2 détaille le développement d'une caméra à partir d'un prototype de capteur MCT-APD.

## 1.4 Conclusion

Cette section a d'abord défini les propriétés du système à construire. Idéalement, le système devra pouvoir effectuer une mesure sensible, sur une large bande dans le MWIR, à une distance de plus de 100 m à partir d'une cible non coopérative. Le développement de systèmes DOAS dans le MWIR est limité par les sources lasers disponibles. Nous avons analysé les avantages et inconvénients des nouvelles sources cohérentes MWIR qui ont été utilisées dans des systèmes de mesure de gaz avec un large spectre (détection à distance et in-situ). À partir de cette analyse, nous avons défini un nouveau concept de détection qui combine les avantages des systèmes qui utilisent une source accordable (TLAS) et un supercontinuum (SAS). En résumé, une source laser à la cadence réduite, émet un spectre modérément large (100 nm), mais accordable dans la région des signatures MWIR définie par l'application. La détection du spectre de chaque impulsion est effectuée avec un spectrographe. Le système combine ainsi une densité spectrale d'énergie élevée et, afin de figer l'atmosphère, une détection simultanée de toutes les longueurs d'onde. Finalement, nous avons introduit le design d'un OPG et d'une détection permettant la réalisation du système de télédétection. Les prochains chapitres de cette thèse décrivent en détails la conception de la source (chapitre 2), l'expérimentation de celle-ci (chapitre 3), la conception du système de détection (chapitre 4), les algorithmes de détection (chapitre 5) et la preuve de concept (chapitre 6). Finalement, le septième chapitre présentera les modifications à apporter au système, pour effectuer une mesure à plus de 100 m à partir d'une cible non coopérative

# 2 Conception de l'OPG

L'objectif de ce chapitre est de présenter le travail de conception de l'OPG. Nous présentons d'abord une description théorique de l'amplification paramétrique, et par la suite, une synthèse des OPG MWIR recensés dans la littérature. Une solution analytique fournit un premier niveau de compréhension de la puissance de sortie et de la largeur spectrale de l'OPG. Un nouveau modèle numérique est ensuite proposé afin de prédire correctement la puissance de sortie de l'OPG. L'objectif est de sélectionner les paramètres de la pompe (durée de l'impulsion, énergie, focalisation) et du cristal (géométrie, période d'inversion) afin d'obtenir les propriétés suivantes: spectre modérément large, énergies élevées par impulsion et accordabilité dans le MWIR.

# 2.1 Théorie



Figure 8 : Illustration des processus OPG, OPA et OPO [39].

La fig. 8 illustre la différence entre les processus OPG, OPA et OPO. Dans tous les cas, un faisceau pompe transfère ses photons vers deux faisceaux, appelés idler (ou onde complémentaire) et signal. L'amplification paramétrique se produit dans un cristal montrant une susceptibilité non linéaire du second ordre ( $\chi^{(2)}$ ). Dans un OPG, l'amplification à passage unique s'effectue à partir de photons (signal et idler) qui ont comme origine les fluctuations

quantiques du vide. Pour assurer un transfert efficace, un laser pompe est focalisé dans le cristal à des hautes intensités crêtes (> MW/cm<sup>2</sup>). Le cristal doit être transparent, avoir une forte non linéarité et permettre un accord de phase entre les trois faisceaux. Afin d'analyser ces conditions, nous regardons d'abord la théorie permettant de décrire l'amplification.

La propagation des enveloppes des trois faisceaux (idler, signal et pompe) dans un milieu avec non linéarité  $\chi^{(2)}$  est décrite par trois équations différentielles couplées et non linéaires [40, 41]:

$$\frac{\partial \boldsymbol{E}_{1}}{\partial z} - \frac{i}{2k_{1}} \nabla^{2} \boldsymbol{E}_{1} + \frac{1}{v_{g1}} \frac{\partial \boldsymbol{E}_{1}}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_{2,1} \frac{\partial^{2} \boldsymbol{E}_{1}}{\partial t^{2}} = -\alpha_{1} \boldsymbol{E}_{1} - i \frac{\omega_{1} d_{eff}}{cn_{1}} \boldsymbol{E}_{2}^{*} \boldsymbol{E}_{3} \exp(-i\Delta \boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{z})$$

$$\frac{\partial \boldsymbol{E}_{2}}{\partial z} - \frac{i}{2k_{2}} \nabla^{2} \boldsymbol{E}_{2} + \frac{1}{v_{g2}} \frac{\partial \boldsymbol{E}_{2}}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_{2,2} \frac{\partial^{2} \boldsymbol{E}_{2}}{\partial t^{2}} = -\alpha_{2} \boldsymbol{E}_{2} - i \frac{\omega_{2} d_{eff}}{cn_{2}} \boldsymbol{E}_{1}^{*} \boldsymbol{E}_{3} \exp(-i\Delta \boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{z}), \quad (1)$$

$$\frac{\partial \boldsymbol{E}_{3}}{\partial z} - \frac{i}{2k_{3}} \nabla^{2} \boldsymbol{E}_{3} + \frac{1}{v_{g3}} \frac{\partial \boldsymbol{E}_{3}}{\partial t} - \frac{i}{2} \beta_{2,3} \frac{\partial^{2} \boldsymbol{E}_{3}}{\partial t^{2}} = -\alpha_{3} \boldsymbol{E}_{3} - i \frac{\omega_{3} d_{eff}}{cn_{3}} \boldsymbol{E}_{1} \boldsymbol{E}_{2} \exp(i\Delta \boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{z})$$

où  $\omega_3 > \omega_2 > \omega_1$  sont, respectivement, les fréquences angulaires centrales pour la pompe, le signal et l'idler. Les indices i = 1, 2, 3 sont utilisés afin de définir l'appartenance des autres variables. Les champs électriques sont décrits par  $e_i(x,y,z,t) = E_i(x,y,z,t) \cdot exp[i(\omega_i \cdot t - k_i \cdot z)]$ + c.c., où une variable en gras indique un vecteur et c.c. indique le complexe conjugué. Dans l'eq. (1),  $|\mathbf{k}_i| = 2\pi n_i / \lambda_i$  est le vecteur d'onde,  $n_i$  l'indice de réfraction,  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide,  $\lambda_i$  la longueur d'onde,  $\alpha_i$  les pertes linéaires, t le temps, z la position dans le cristal, L la longueur du cristal,  $v_{gi} = c/n_{gi}$  la vitesse de groupe,  $n_{gi}$  l'indice de groupe,  $\beta_{2,i}$  la dispersion de la vitesse de groupe (ou GVD), c la vitesse de la lumière,  $d_{eff}$  le coefficient effectif non linéaire et  $\Delta k$  l'écart de phase. L'intensité optique est donnée par  $I_i(t) = 0.5\varepsilon_{oni}c |e_i|^2$ . Le couplage non linéaire entre les trois équations est le résultat des termes à la droite des eq. (1). Il en résulte un échange entre les trois faisceaux dans le milieu non linéaire. L'interaction doit respecter la conservation de l'énergie ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) et la quantité de mouvement ( $k_3$   $k_2 - k_1 = \Delta k$ ). L'utilisation de la technique de quasi-accord de phase permet une valeur de  $\Delta k$  nulle en sélectionnant une période d'inversion appropriée. L'intérêt de la technique est de pouvoir utiliser les éléments les plus élevés du tenseur non linéaire, tout en conservant un décalage spatial (walk-off) nul. En effet, la polarisation des trois faisceaux est identique et parallèle à l'axe d'inversion. Dans ce cas, la conservation de la quantité de mouvement devient  $k_3 - k_2 - k_1 - q = \Delta k$  où q est le vecteur de quasi-accord de phase de grandeur  $2\pi/\Lambda$ .  $\Lambda$  est la période d'inversion et q est orienté perpendiculairement à l'inversion.

Il est possible d'obtenir une solution analytique à l'eq. (1) en considérant 1) des ondes continues (CW), planes et monochromatiques; 2) une pompe sans déplétion; 3) un faisceau idler d'amplitude nulle comme condition initiale ( $I_1(0) = 0$ ) et 4) un milieu sans perte et non dispersif [41, 42]. Dans le cas limite d'un gain élevé, la solution pour les intensités de sortie des faisceaux idler et signal est [41, 42]:

$$I_{2}(L) = \frac{I_{2}(0)}{4} \exp(2L\sqrt{\Gamma^{2} - (\Delta k/2)^{2}})$$

$$I_{1}(L) = \frac{\omega_{1}I_{2}(L)}{\omega_{2}}$$

$$\Gamma^{2} = \frac{8\pi^{2}d_{eff}^{2}I_{3}}{n_{3}n_{2}n_{1}\lambda_{2}\lambda_{1}\varepsilon_{0}c},$$
(2)

où le facteur de gain de puissance est donné par:  $\exp(2L\sqrt{\Gamma^2 - (\Delta k/2)^2})$ . Pour maximiser la conversion, on a intérêt à augmenter la longueur d'interaction (*L*), l'intensité crête de la pompe (*I*<sub>3</sub>) et la non linéarité du cristal (*d<sub>eff</sub>*). L'écart de phase doit aussi être minimisé. Pour ce faire, l'utilisation de la technique de quasi-accord de phase est favorisée, compte tenu des conversions plus efficaces, de l'accordabilité facilitée et de l'absence de décalage spatial. À ce titre, le PPLN (*Periodically Poled Lithium Niobate*) et le PPLT (*Periodically Poled Lithium tantalate*) sont les cristaux les plus intéressants. En effet, ils proposent une transparence dans la région 1-5 µm, ils possèdent une non linéarité importante et sont disponibles commercialement dans différentes géométries (multiples périodes d'inversion sur un seul cristal, période d'inversion variable latéralement) permettant une grande accordabilité avec un seul cristal. Les OP-GaAs [43] sont aussi des cristaux aux propriétés très intéressantes (*d*<sub>14</sub> = 94 pm/V et transparence jusqu'à 17 µm). Par contre, la longueur d'onde de la pompe doit être supérieure à 1.5 µm (absorption à deux photons) et ce cristal

L'eq. (2) peut être utilisée pour estimer la largeur du spectre du signal et pour l'idler. Pour ce faire, on utilise un développement en série de Taylor de l'écart de phase (autour de  $\Delta k =$ 

0). En introduisant  $\Delta k = \Delta_{12} \cdot \Delta \omega$ , où  $\Delta_{12} = [1/v_{g1} - 1/v_{g2}]$  dans l'eq. (2), on obtient un estimé de la largeur complète à mi-hauteur (FWHM) du spectre de l'idler et du signal [41]:

$$\Delta \omega = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\pi} \sqrt{\frac{\Gamma}{L}} \frac{1}{|\Delta_{12}|}.$$
(3)

Selon cette équation, la largeur du spectre est proportionnelle à  $(\Gamma/L)^{1/2}$  et dépend de la différence des vitesses de groupe du signal et de l'idler. Dans le cas d'un OPO, la longueur est remplacée par  $P \cdot L$ , où P est le nombre moyen de tours de cavité. Typiquement, un OPO MWIR a une largeur spectrale de quelques nm. Pour une même puissance de sortie, le spectre d'un OPG sera significativement plus large, puisque le gain est obtenu à partir d'une intensité pompe plus élevée et d'une longueur d'interaction plus faible. Un OPO peut être décrit comme une succession d'amplifications paramétriques dans une cavité. Les multiples passages permettent de réduire l'intensité pompe requise. Pour un cristal donné et pour une même puissance de sortie, un OPG utilise une intensité crête plus élevée, mais évite l'utilisation de la cavité.

Aux sections 2.3 et 2.4, les Eqs. (2) et (3) permettront d'estimer la puissance convertie ainsi que la largeur spectrale de l'idler et du signal. Afin de valider ces résultats, il est important de consulter la littérature et ses résultats expérimentaux. La prochaine section a précisément cet objectif.

### 2.2 Revue de la littérature : OPG

Le tableau 2 recense les références sur les OPG qui utilisent la technologie PPLN ou PPLT. Les caractéristiques des différents OPG y sont séparées selon leur régime impulsionnel : ns - ps - fs. Le premier article de la série est celui de Zayhowski, en 1996 [44]. L'auteur propose, pour la première fois, un schéma basé sur un PPLN qui est pompé par un laser microchip. Le laser pompe est un microchip Nd:YAG, opérant en mode déclenché passivement (*Q-switch*) (1 kHz, 157  $\mu$ J, 0.9 ns). Un PPLN de 13 mm est juxtaposé au YAG produisant un design très compact (voir fig. 9). Le quasi-accord de phase permet de convertir la pompe à 1.064  $\mu$ m en un faisceau signal à 1.59  $\mu$ m et un idler à 3.22  $\mu$ m. À partir d'une intensité crête incidente de 1 GW/cm<sup>2</sup>, l'auteur a mesuré une impulsion de 12  $\mu$ J à 3.22  $\mu$ m avec une largeur spectrale de 250 nm. Cet article constitue l'origine de notre intérêt envers les OPG. Il démontre la possibilité de générer des impulsions énergétiques, ayant un spectre large, à partir d'une source compacte.



Figure 9. Design compact obtenu en combinant un laser microchip et un PPLN [44].

En analysant les données du tableau 2, il est possible d'établir certains constats. Premièrement, l'intensité crête de la pompe permise augmente en diminuant la durée d'impulsion. En contrepartie, l'énergie par impulsion permise est réduite. Ainsi, si on souhaite des impulsions énergétiques, le régime nanoseconde est à favoriser. Deuxièmement, les données montrent qu'il est possible d'injecter des watts de puissance moyenne en régime fs (MHz,  $\mu$ J) et en régime ns (kHz, centaines de  $\mu$ J). Le dopage MgO des cristaux permet des intensités pompe plus élevées [45]. Le tantalate de lithium est préféré afin de soutenir des puissances moyennes élevées. Le niobate de lithium a une non linéarité plus élevée par rapport au tantalate de lithium (15 vs 9 pm/V). Les pourcentages de conversion se situent entre 10 et 40 %. Les informations incluses dans ce tableau seront réutilisées plus loin dans le document.

Régime	ns					ps				fs			
impulsionnel	# 1	# 2	# 3	# 4	# 5	# 6	# 7	# 8	# 9	# 10	# 12	# 13	# 14
#	[46]	[47]	[48,49,	[51]	[52]	[11,53]	[44]	[54]	[55]	[56]	[57]	[58]	[59]
Référence			50]										
Pompe													
λ (μm)	1.342	1.064	1.064	1.064	1.064	1.064	1.064	1.064	1.06	1.064	1.03	1.03	1.03
Durée	150 ns	10 ns	10 ns	10 ns	8 ns	3.3 ns	900 ps	530 ps	7 ps	6.4 ps	725 fs	600 fs	300 fs
Intensité	10	300	60	50	-	70	1000	150	410	6000	6300	6000	1300
(MW/cm^2)													
Cadence	50	10	0.5	100	5-25	6	2	3.83	82	1 MHz	59 MHz	35 MHz	24 MHz
(KHz)									MHz				
Énergie	200 µJ	680 µJ	26.4 mJ	700 µJ	600 µJ	40 µJ	152 μJ	7.4 μJ	$24 \text{ W}^3$	6.5 W <sup>3</sup>	6.4 W <sup>3</sup>	$5 \text{ W}^3$	$7.8 \text{ W}^3$
SLM		OUI	OUI			OUI		OUI					
PPXX,	MgOLN	LN	MgOLT	MgOLN	MgOLN	MgOLN	LN	LN	LN	SLT	MgOSLT	LN	SLT
long. (mm)	2 X 40	55		30-60	34.5	40	13	50	55	35-15		7	17.5
Largeur de	-	3 nm	150	-	-	150 MHz	20 nm	6 nm	4.3 nm	3 nm	< 5.6 nm	25 nm	9.5 nm
raie Signal			MHz										
(FWHM)													
Conversion <sup>1</sup>	11 %	35 %	30 %	30 %	-	38 %	25 %	21 %	37 %	16 %	33%	15 %	20 %
Énergie	7 μJ	76 µJ	2.5 mJ	30 µJ	400 mW		12 µJ	0.5 µJ	2.9 W	1 W	0.6 W	0.19 W	0.6 W
/puissance													
Idler													
$\lambda$ de mesure	1.99 &	1.6 &	1.57 &	1.54 &	1.45 & 4	1.57 &	1.59 &	1.564	1.571	1.586	1.484 &	1.46 &	1.45 &
(µm)	4.14	3.18	3.29	3.2		3.29	3.22	& 3.33	& 3.3	&	3.37	3.5	3.56
										3.23			
Injection		OUI	OUI	OUI		OUI	OUI	Ī		OUI			

Tableau 2. Revue de la littérature sur les OPG avec PPXX. D'autres articles sur les OPG ne sont pas indiqués dans le tableau : [60, 61-63].

<sup>1</sup>Conversion = ( idler + signal ) / pompe. <sup>2</sup>Sortie pour deux longueurs d'onde idler. <sup>3</sup>On indique la puissance de sortie plutôt que l'énergie.

SLM : Single Longitudinal Mode

### 2.3 Largeur de raie et énergie

L'eq. (3) s'avère un bon estimé de la largeur spectrale des OPG expérimentaux (voir [47, 55, 64]). Une différence de vitesse de groupe nulle ( $\Delta_{12} = 0$ ) peut être mise à contribution pour générer des spectres très larges (supérieurs à des centaines de nm). Entre autres, cette condition est vraie autour de la dégénérescence  $(2\lambda_3 = \lambda_1 = \lambda_2)$  [65]. Dans ce cas, le calcul de la largeur spectrale implique aussi la dispersion de la vitesse de groupe dans le développement de Taylor de l'eq. (3) [41]. Un supercontinuum est obtenu si la dégénérescence est choisie autour d'une longueur d'onde où la GVD est nulle, i.e., si  $\lambda_{pompe} = \lambda_{GVD=0} / 2$ . Cependant, pour notre application, on préfère une largeur spectrale modérée (10 à 100 nm), avec une densité spectrale plus élevée et une grande accordabilité. Il est possible d'obtenir ces propriétés en choisissant la longueur du cristal et l'intensité crête de la pompe. Pour un gain donné, le spectre sera plus large si on utilise une pompe plus intense et un cristal plus court. L'examen du tableau 2 a révélé que l'intensité pompe accessible augmente avec la diminution de la durée d'impulsion. En règle générale, le seuil de dommage optique des surfaces varie proportionnellement à la racine carrée de la durée d'impulsion. Cette loi empirique est valable pour les régimes nanoseconde et picoseconde. Au niveau du seuil de dommage, une impulsion pompe de 1 ps contient donc  $\sim$  32 fois moins d'énergie qu'une impulsion de 1 ns. Par contre, l'OPG de 1 ps aura un spectre (idler et signal) ~ 2.4 fois plus large ( $\Delta \omega \propto$  durée d'impulsion<sup>-1/8</sup>). Ainsi, la réduction de la durée de l'impulsion pompe augmente la largeur du spectre, mais réduit l'énergie de pompe accessible.

Quel régime d'impulsion doit-on choisir? La fig. 10 présente les spectres de sortie modélisés pour le signal issu d'un OPG pompé par des lasers de 1 ps et de 1 ns. Des profils temporels gaussiens sont considérés. Le spectre de sortie (signal) avec une pompe de 1 ns a une largeur spectrale (FWHM) 2.4 fois plus étroite qu'avec une impulsion de 1 ps. L'énergie de l'impulsion est 32 fois plus élevée. À la longueur d'onde de mi-hauteur du spectre produit avec l'impulsion de 1 ps, la densité d'énergie est plus élevée avec la pompe de 1 ns. Par contre, sur cette bande, le spectre obtenu avec l'impulsion pompe de 1 ps montre moins de variation. Il s'agit d'une propriété recherchée, puisque il est plus facile de filtrer la ligne de

base (*baseline*) et isoler les signatures des gaz. Nous avons choisi d'utiliser une pompe ayant une durée d'impulsion autour de 1 ns afin de maximiser la densité d'énergie.



**Figure 10.** Spectres de sortie pour le signal pour des impulsions pompe de 1 ns et de 1 ps. Les spectres sont supposés gaussiens. (a) Échelle linéaire. (b) Échelle logarithmique. La ligne horizontale bleue indique la position à FWHM pour le spectre de 1 ps.

La prudence est de mise en considérant les mécanismes de dommage dans les cristaux. Outre les dommages sur les surfaces, des dommages de volume *bulk* sont aussi possibles. Notons par exemple les dommages dus à l'effet photoréfractif, à l'absorption infrarouge induite par le vert (GRIIRA, *green-induced infrared absorption*) et à l'effet de lentille thermique [45]. De plus, les dommages varient en fonction des conditions d'utilisation. En plus de l'intensité et de la durée d'impulsion, la puissance moyenne, la température du cristal et la durée d'utilisation sont aussi à considérer. Il est nécessaire d'opérer avec des facteurs de sécurité. Pour le PPMgO:LN, l'intensité crête maximale, pour une impulsion autour de 1 ns, a été fixée à 500 MW/cm<sup>2</sup>. Cette valeur a été choisie en consultant la littérature et en communiquant avec plusieurs fabricants [45].

#### 2.3.1 Choix des paramètres

A partir des observations théoriques et expérimentales, nous avons pu sélectionner les propriétés de notre OPG. En ce qui concerne le cristal, nous avons choisi le PPMgO:LN. Le dopage MgO permet d'augmenter le seuil de dommage [45]. Le niobate de lithium est préféré au tantalate de lithium, compte tenu de sa disponibilité. Un cristal de chez Covesion (modèle

MOPO1-1.0-40) a été choisi ayant une géométrie transverse de 10 x 1 mm<sup>2</sup>. La section inclut cinq différentes régions (1 x 1 mm<sup>2</sup>) ayant différentes périodes d'inversion (29.52, 29.98, 30.49, 31.02, 31.59  $\mu$ m). La combinaison de ces cinq secteurs et la variation de la température (20 à 200 °C) permettent une accordabilité entre ~1475 et 3800 nm. Ce calcul se base sur une pompe de 1.064  $\mu$ m et des coefficients de Sellmeier du MgO:LN trouvés dans [66]. Deux longueurs de cristal ont été choisies, 40 et 20 mm. Il est possible d'acheter des cristaux à quasi-accord de phase (PPXX) sur mesure ayant des sections plus importantes (jusqu'à 5 x 5 mm<sup>2</sup> pour le PPLT). Ces grandes sections offrent la perspective d'augmenter l'énergie de sortie de l'OPG. Compte tenu des coûts et des délais pour l'obtention de ces cristaux (qui offrent une période d'inversion unique), il a été choisi d'utiliser des composants pris sur étagère (ou COTS, *commercial off-the-shelf*) de 1 mm d'épaisseur.

Du côté de la pompe, nous avons choisi une durée d'impulsion de 0.7 ns (Wedge Hf-1064 SB de Bright Solutions). Celle-ci offre un bon compromis entre l'énergie et la largeur du spectre. L'énergie par impulsion ( $> 130 \mu$ J à 10 kHz) est suffisante pour atteindre l'intensité crête recherchée (500 MW/cm<sup>2</sup>) pour un faisceau focalisé de 150 µm de rayon au centre du cristal. La taille du faisceau au foyer a été choisie en considérant les expériences du tableau 2. La possibilité d'augmenter l'énergie en grossissant la taille de la pompe sera étudiée à la section 3.1. Selon l'eq. (3), la largeur spectrale (FWHM) sera respectivement de 6, 140, 28 et 22 nm à 1.56, 2.3, 3.35 et 3.8 µm (pour un cristal de 40 mm et une intensité crête de 410 MW/cm<sup>2</sup>). La pompe sélectionnée opère sur plusieurs modes longitudinaux (MLM). Cette propriété a été négligée au départ, mais s'est avérée déterminante dans la dynamique de l'OPG.

### 2.4 Puissance de sortie

Outre la largeur du spectre, il est important de pouvoir estimer la puissance de sortie de l'OPG en fonction des propriétés de la pompe et du cristal. Les informations contenues dans le tableau 2 permettent d'orienter nos choix, mais obtiendra-t-on une conversion de 10 ou de 40 %? Le modèle analytique permet une première réponse à cette question. Dans ses limites de validité, l'eq. (2) correspond correctement aux observations expérimentales. Près du seuil, les puissances de l'idler et du signal sont faibles comparées à celle de la pompe. La croissance est exponentielle. Pour des impulsions plus puissantes, les résultats expérimentaux montrent

une variation linéaire des puissances de sortie idler et signal en fonction de la puissance pompe d'entrée (voir par exemple [46]). Ce constat implique une saturation du gain de l'OPG. Avec des impulsions encore plus énergétiques, la pente linéaire s'aplatit. Les causes en sont les effets parasites comme : la génération de somme de fréquence (SFG), la génération de seconde harmonique (SHG) ou les combinaisons d'ordres élevés. Dans ces conditions, des effets thermiques ou des dommages internes peuvent devenir importants [43, 67].

Comment prévoir la puissance de sortie de l'OPG dans la région linéaire? Il s'agit d'un problème auquel la littérature apporte peu de solutions. Les références citées au tableau 2 présentent des résultats expérimentaux sans comparaison théorique. Utilisant différentes approches, les auteurs de [64, 68] ont étendu la validité de la solution analytique à des conversions plus élevées. En incluant la déplétion de la pompe [64], une solution analytique a montré une bonne comparaison avec des mesures expérimentales jusqu'à un produit gain longueur de  $\Gamma \times L = 19.3$ . Par contre, ce niveau de gain est toujours situé dans une transition entre les zones exponentielle et linéaire. À titre de comparaison, notre OPG, décrit à la section 3.2, opère avec un produit  $\Gamma \times L \sim 30$ . Ces solutions analytiques ne sont pas en mesure de modéliser la croissance linéaire observée à haute intensité.

Afin d'aller plus loin, il est nécessaire de résoudre numériquement l'eq. (1). À la connaissance de l'auteur, deux articles [69, 70] ont simulé une pente approximativement linéaire au-delà du seuil. La référence [69] établit une bonne correspondance entre l'expérience et la simulation en ajustant plusieurs paramètres, dont le niveau de bruit et la non linéarité du cristal. La comparaison est présentée à la fig. 11. Le graphique présente peu de points et on note des oscillations dans les données expérimentales et numériques. Le modèle inclut la propagation 3D des faisceaux et utilise des ondes pulsées et quasimonochromatiques. La ref. [70] expose une pente linéaire, mais sans comparaison avec des données expérimentales. Ce modèle est construit pour simuler l'élargissement spectral sur une très large bande (plusieurs centaines de nm) dû à l'amplification non-colinéaire (voir section 3.3.3). Le modèle inclut la propagation 3D et de multiples ondes CW espacées de 10 nm sur une bande de 600 nm. La pompe est une onde monochromatique. Par conséquent, il existe un besoin pour modéliser correctement la puissance de sortie de l'OPG dans la région

linéaire. Idéalement, le modèle inclurait la simulation de spectres multimode longitudinal (MLM). Cette modélisation permettrait d'effectuer correctement le design de l'OPG et d'évaluer les conséquences de la pompe multimode longitudinale (MLM) par rapport à une pompe opérant sur un seul mode. Du côté de la physique, il serait intéressant de comprendre le mécanisme de saturation du gain de l'OPG. Dans l'eq. (1), quels sont les mécanismes responsables de la saturation?



**Figure 11.** Efficacité de conversion numérique (ligne noire pleine) et expérimentale (cercles pleins). Le graphique est tiré de [69] et il permet de clairement distinguer les deux régimes d'amplification (linéaire et exponentiel) compte tenu de l'échelle logarithmique.

#### 2.4.1 Simulations numériques

Pour répondre à ces questions, nous avons développé une procédure de résolution numérique de l'eq. (1). Un à un, nous avons ajouté les différents paramètres à ces équations couplées afin de bien comprendre chaque effet. Afin de simplifier la résolution, des ondes planes colinéaires ont été utilisées. Nous négligeons donc les termes incluant les opérateurs de Laplace ( $\nabla^2$ ). Dans notre cas, il s'agit d'une approximation valide puisque la divergence de la pompe est faible sur la longueur du cristal (< 40 mm). En effet, la longueur de Rayleigh pour la pompe (1.064 µm, taille de faisceau au foyer = 150 µm) est de 65 mm. La propagation numérique des ondes dans le cristal est effectuée par un algorithme split-step de Fourier [71]. Les trois vecteurs de champ électrique sont propagés par incrément de longueur *dz*. À chaque pas, l'algorithme procède ainsi: 1) dans le domaine fréquentiel, calcul de l'opérateur de dispersion pour une longueur de *dz/2*; 2) dans le domaine temporel, calcul du couplage non linéaire avec une méthode de Runge-Kutta du second ordre et 3) dans le domaine fréquentiel, calcul de l'opérateur de dispersion pour une longueur une longueur de *dz/2*.

Afin de vérifier le potentiel de la pompe et du cristal sélectionnés, nous avons utilisé les paramètres suivants pour la simulation :  $\lambda_3 = 1064$  nm,  $\lambda_2 = 1560$  nm,  $\lambda_1 = 3346.5$  nm,  $d_{eff} = 14 \text{ pm/V}$  (valeur fournie par le manufacturier de PPMgO:LN),  $L = 40 \text{ mm}, \Delta k = 0$ ,  $\alpha_i = 0$ . L'écart de phase nul est obtenu en sélectionnant une période d'inversion de 29.98 µm et une température du cristal de 190°C. Les équations de Sellmeier [66] permettent de calculer les indices de réfraction, les indices de groupe et la GVD :  $n_1 = 2.132$ ,  $n_2 = 2.186$ ,  $n_3=2.204$ ,  $n_{g1}=2.257$ ,  $n_{g2}=2.23$ ,  $n_{g3}=2.26$ ,  $\beta_{2,1}=-775$  fs<sup>2</sup>/mm,  $\beta_{2,2}=100$  fs<sup>2</sup>/mm,  $\beta_{2,3}=$ 245 fs<sup>2</sup>/mm. Toutes les polarisations sont linéaires et parallèles à l'axe du cristal (indice de réfraction extraordinaire), i.e., selon l'orientation de l'inversion. La pompe a une durée de 0.7 ns. Son spectre est décrit numériquement par des modes, à phases aléatoires, séparés par 3.2 GHz. L'enveloppe de ceux-ci a un profil gaussien de 40 GHz à mi-hauteur (FWHM). Ces valeurs ont été fournies par le fabricant du laser. Dans le domaine temporel, le battement entre les modes crée des fluctuations rapides sous une enveloppe gaussienne de 0.7 ns. D'une impulsion à l'autre, la forme temporelle est modifiée compte tenu de la phase aléatoire des modes. Ainsi, les énergies converties varient d'une impulsion à l'autre. La remarque est également valable pour les profils temporel et spectral de l'impulsion. Afin de se rapprocher des conditions expérimentales, l'intensité d'entrée de la pompe (onde plane) est calculée en considérant l'intensité crête pour un faisceau gaussien ayant un rayon de ~ 150  $\mu$ m (à 1/e<sup>2</sup>). Par exemple, une énergie de  $U_3 = 130 \ \mu J$  correspond à une intensité de ~ 494 MW/cm<sup>2</sup>. Les vecteurs d'entrée pour le signal et l'idler (ondes planes) correspondent à du bruit, i.e., un photon par hertz de bande passante par seconde [72, 73]. La phase de chaque composante spectrale est aléatoire et l'intensité est calculée en distribuant l'énergie sur une surface de 150 µm de rayon (faisceau TEM<sub>00</sub>). Les vecteurs temporel et fréquentiel ont une extension respective de 0 à 10 ns et de -13.1 à 13.1 THz. Un tel échantillonnage est suffisant pour contenir l'impulsion et le spectre à l'intérieur des fenêtres. L'incrément du pas est de dz =0.1 mm. Les résolutions temporelle et fréquentielle sont respectivement de 0.038147 ps et de 100 MHz. Des résultats identiques sont obtenus en doublant la résolution  $(t, z, \omega)$ . De plus, le fait d'ajouter les pertes linéaires et les réflexions résiduelles sur les faces du PPMgO:LN ne modifie pas les résultats. Le modèle a d'abord été validé en le comparant à l'eq. (2) pour des niveaux d'amplification sous le seuil.

La fig. 12a présente les résultats des simulations. Les énergies de sortie (idler et signal) sont présentées en fonction de l'énergie d'entrée de la pompe. Les énergies de sortie sont calculées en utilisant la puissance crête d'un faisceau gaussien de 150 µm de rayon. Elles sont aussi moyennées sur 10 impulsions. Les simulations montrent clairement une croissance linéaire après le seuil. La conversion pour une énergie pompe de 100 µJ atteint 49 %, soit 15.6 µJ pour idler et 33.5 µJ pour le signal. La simulation confirme que la combinaison pompe de 0.7 ns et PPMgO:LN de 40 mm permet de convertir efficacement l'énergie pompe. À la section 3.3.1 (voir fig. 21) on verra que les simulations reproduisent très bien les résultats expérimentaux. Aucun ajustement des paramètres n'est effectué afin de permettre une meilleure correspondance.



**Figure 12.** Résultats des simulations numériques: (a) Énergies de sortie de l'idler et du signal vs énergie d'entrée de la pompe MLM. La ligne continue et l'axe vertical sur la droite montrent l'efficacité de conversion. (b) Énergie de sortie idler pour trois différentes pompes: 1) pompe MLM + bruit à l'entrée pour le signal et l'idler, 2) pompe SLM + bruit à l'entrée pour le signal et l'idler et 3) pompe SLM + entrée CW SLM pour le signal et l'idler. Les énergies de sortie sont moyennées sur 10 impulsions. Note : Dans la simulation, les vecteurs d'entrée (signal et idler) SLM CW ont une puissance équivalente au niveau d'entrée du bruit. Lorsque la simulation est répétée avec des puissances d'entrée supérieures (signal et idler SLM CW), le niveau du seuil d'émission se déplace vers les basses énergies mais le comportement oscillatoire de la courbe reste le même. La figure est reproduite à partir de [2].

Répondons maintenant à la question de la saturation. Nous utiliserons les résultats montrés aux figures 12b et 13. Lorsque la simulation est répétée en utilisant une pompe pulsée (0.7 ns) opérant sur un seul mode longitudinal (SLM), la croissance de l'idler (et du signal) montre des oscillations (voir fig. 12b). Ces oscillations sont la conséquence des reconversions

répétitives de l'idler et du signal vers la pompe. En effet, au-delà d'une certaine conversion, le processus s'inverse. À la fig. 12b, le phénomène est encore plus marqué lorsque la simulation est répétée en combinant une pompe pulsée SLM et une entrée CW SLM pour le signal et l'idler. La fig. 13(a-d) permet d'expliquer le phénomène de reconversion. Les graphiques présentent la forme des impulsions de la pompe et de l'idler, à la sortie de l'OPG, pour une pompe SLM avec une entrée CW SLM pour le signal et l'idler. Les graphiques montrent les impulsions de sortie pour des énergies d'entrée de la pompe de  $U_{3,in} = 20, 25, 30$ et 35  $\mu$ J. On remarque qu'à partir de  $U_{3,in} = 25 \mu$ J (voir fig. 13b), l'énergie au centre de l'impulsion de l'idler commence à être reconvertie vers la pompe. L'énergie de l'idler en fig. 13d est ainsi inférieure à celle de la fig. 13c même si l'énergie pompe à l'entrée est supérieure. Ainsi, l'origine de la croissance linéaire observée avec la pompe MLM est expliquée comme suit. Une pompe ayant un spectre MLM est constituée de multiples pics de différentes amplitudes et durées. Les impulsions idler et signal reproduisent des structures similaires. Au-dessus du seuil, lorsque certains pics idler et signal commencent à inverser l'interaction, la perte de ces photons est compensée par la conversion sur d'autres pics. Il en résulte un lissage des oscillations et une saturation du gain. Ce point peut être observé en comparant les figs. 13(d) et (e). La fig. 13(d) est le résultat d'une pompe SLM avec une entrée CW SLM tandis que la fig. 13(e) utilise une pompe MLM et un bruit à l'entrée. Dans les deux cas, l'énergie d'entrée de la pompe est de  $U_{3,in} = 35 \mu J$ . La fig. 13(e) montre les pics sur les impulsions idler et pompe qui expliquent le lissage des oscillations. L'énergie de l'idler est ainsi supérieure par rapport à celle obtenue la simulation présentée à la fig. 13(d) : 3.81 vs 2.98 µJ.



**Figure 13.** Forme des impulsions de la pompe et de l'idler, à la sortie de l'OPG pour des énergies d'entrée de la pompe de  $U_{3,in} = 20$ , 25,30 et 35 µJ. (a-d): Résultats de simulations numériques pour une pompe SLM et une entrée CW SLM pour le signal et l'idler. À des fins de comparaison, (e) montre les impulsions de l'idler et de la pompe de sortie pour une pompe MLM ( $U_{3,in} = 35 \mu$ J).

Finalement, un dernier point mérite notre attention. À la fig. 12b, le cas pompe SLM + bruit d'entrée montre moins d'oscillations que le cas pompe SLM + entrée CW SLM. L'amplification à partir du bruit d'entrée permet un élargissement spectral de la pompe via la reconversion et ainsi un moyennage des oscillations. Dans la littérature, plusieurs OPG pompés par des lasers SLM montrent une saturation complète du gain (voir e.g. [47]). En plus du moyennage spectral, un moyennage spatial peut aussi exister et causer un lissage de la puissance de sortie. Celui-ci n'est pas décrit par notre modèle. Puisque notre simulation permet de prédire correctement les observations expérimentales, nous concluons que le lissage spectral est plus important dans notre cas.

# 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé la théorie et les expériences rapportées dans la littérature afin de comprendre ce qui régit la puissance de sortie et la largeur spectrale de l'OPG. L'objectif était de faire la conception de l'OPG, i.e., sélectionner les paramètres de la pompe et du cristal, en fonction des requis du système de détection de gaz. Pour ce faire, nous avons utilisé une solution analytique aux équations de propagation pour décrire la largeur du spectre et une solution numérique, pour décrire la puissance de sortie. Cette solution numérique permet de correctement prédire la puissance de sortie de l'OPG. Celui-ci permet aussi d'expliquer les mécanismes de saturation du gain de l'amplificateur. La saturation est due aux lissages spectral et spatial des modes de l'OPG, conséquence de la reconversion vers la pompe. Le lissage spectral est dominant dans le cas de notre OPG. La simulation numérique sera utilisé à nouveau à la section 3.4.4 pour comparer l'effet des différentes propriétés du pompage sur la stabilité de l'OPG (pompe SLM, MLM, avec et sans injection).

# 3 Mise en opération et caractérisation de l'OPG

Le chapitre précédent a détaillé la conception de l'OPG. Ce chapitre présente sa caractérisation expérimentale. Nous avons construit deux prototypes. Le premier a utilisé une pompe ayant une impulsion avec une durée de 8 ps qui était disponible immédiatement dans le laboratoire. L'objectif de ce premier prototype a été de nous familiariser avec le montage de l'OPG. Le deuxième prototype a utilisé un laser pompe de 0.7 ns qui a été sélectionné en fonction des critères recherchés dans notre conception. La première partie de ce chapitre résume les résultats intéressants obtenus avec le prototype #1. La deuxième partie détaille la caractérisation du prototype #2. L'objectif est de mettre en lumière les avantages et inconvénients du prototype pour la mesure de gaz.

## 3.1 Prototype # 1 : Montage et expérimentation

La fig. 14 montre un schéma du montage du prototype # 1. La pompe est un laser Nd:YAG 1.064 µm opérant en mode déclenché passivement (*Q-switch*) (Compiler 1064, Passat Ltd). Ses caractéristiques sont les suivantes: opération sur un seul mode spatial, impulsion de 8 ps, cadence de 400 Hz et impulsion de 500 µJ. Le faisceau passe successivement à travers un isolateur optique ( $\rightarrow$ ), un atténuateur optique variable et un filtre à densité neutre. Suite à ces trois composants, l'énergie par impulsion est réduite à une valeur inférieure à 2 µJ; cette impulsion est ensuite focalisée au centre du cristal. Des lentilles de différentes focales sont utilisées afin d'étudier l'effet du diamètre du faisceau au plan de l'étranglement sur la divergence et sur l'énergie de sortie de l'OPG. La polarisation de la pompe est linéaire et parallèle à l'inversion des domaines du cristal. La section transversale du PPMgO:LN (Covesion, modèle MOPO1-1.0-40) est de 10 x 1 mm<sup>2</sup> et incorpore cinq différentes régions de 1 x 1 mm<sup>2</sup> ayant différentes périodes d'inversion (29.52, 29.98, 30.49, 31.02, 31.59 µm). Deux cristaux de longueurs différentes ont été testées (40 et 20 mm). Un revêtement anti-réflexion aux trois longueurs d'onde (réflexion (R) <1.5% @ 1064nm & R<1% @1400-1800nm & R~ 3%-6% @ 2600-4800nm) est présent sur chaque surface. Un four contrôle la

température du cristal entre 20 à 200°C, avec une stabilité de 0.01°C. Le cristal et le four sont montés sur une plateforme de positionnement à 5 axes. Pour accorder l'OPG, le cristal de PPMgO:LN est déplacé perpendiculairement à la pompe et sa température est variée. A la sortie du cristal, des filtres permettent d'isoler le signal.



**Figure 14.** Montage du prototype #1. VOA : atténuateur optique variable M : miroir, OD : filtre à densité neutre, D : Dichroïque. L'atténuateur optique variable est construit à partir d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur.

Nous présenterons seulement les résultats qui se sont avérés les plus pertinents et qui nous ont guidés pour le développement ultérieur du prototype #2. Seules les propriétés du signal ont été mesurées. L'alignement du cristal et les mesures des propriétés de sortie sont complexes, compte tenu de la faible puissance moyenne du signal (< 1mW). La fig. 15 présente l'énergie de sortie du signal en fonction de l'énergie d'entrée de la pompe pour deux longueurs de cristal (20 et 40 mm). Les conditions de mesures sont  $\lambda_2 = 1585$  nm (signal) ( $\lambda_1 = 3346.5$  nm), température du PPMgO:LN = 105 °C, période d'inversion = 30.49 µm et rayon pompe dans le plan de l'étranglement = 75 µm. Pour une énergie pompe de  $U_3 = 0.63$  µJ ( 0.25 mW de puissance moyenne), l'intensité crête dans le cristal est de ~ 830 MW/cm<sup>2</sup>. À ce point, l'énergie du signal est de 0.2 µJ pour le cristal de 40 mm et de 0.16 µJ pour le cristal de 20 mm. Une plus grande longueur d'interaction conduit à une efficacité de conversion supérieure de 25 %. Par contre, le spectre est comprimé. La largeur spectrale

(FWHM) est de  $\sim 8$  nm pour le cristal de 40 mm et 15 nm pour le cristal de 20 mm. Les mesures ont été effectuées avec un analyseur de spectre optique (OSA).



**Figure 15.** Énergie de sortie du signal ( $\mu$ J) en fonction de l'énergie d'entrée de la pompe. La courbe présente les résultats pour les cristaux de 20 et de 40 mm.

Est-il possible d'augmenter l'énergie par impulsion en utilisant des faisceaux plus larges? La fig. 16 montre l'énergie du signal, pour un diamètre pompe de 150 µm et 300 µm, en fonction de l'intensité crête de la pompe. Le diamètre à  $1/e^2$  est mesuré à l'étranglement en l'absence du cristal avec une caméra infrarouge (Spiricon, modèle SP620). Pour une intensité crête de  $0.53 \text{ GW/cm}^2$ , le faisceau de 300  $\mu$ m a une énergie de sortie 3.8 fois supérieure à celle du faisceau de 150 µm, en conformité avec le carré du rapport des diamètres. À des diamètres plus élevés, la conformité avec la théorie est perdue. Pour un diamètre du faisceau pompe de 500 µm, le ratio est de 5 au lieu de  $(500 \text{ µm} / 150 \text{ µm})^2 \sim 11$ . Par ailleurs, l'augmentation de la taille du faisceau pompe conduit à une augmentation du paramètre M<sup>2</sup> du faisceau signal. La valeur du paramètre  $M_x^2$  augmente de 4 à 5 et celle du paramètre  $M_y^2$ , de 2 à 3 lorsque l'on augmente la taille du faisceau pompe de 150 à 300  $\mu$ m. L'erreur de mesure est de  $\pm$  0.2. L'axe x ou horizontal correspond à l'axe parallèle à la table optique et y est décrit comme l'axe vertical. Il a également été noté que le paramètre M<sup>2</sup> augmente avec l'intensité crête. Le paramètre M<sup>2</sup> est mesuré en plaçant une lentille après D2 dans le schéma de la fig. 14. La taille du faisceau, dans les deux axes, est mesuré avant, après et directement au plan d'étranglement à l'aide d'une caméra (Electrophysics, modèle A7835). Un ajustement de la courbe de la taille en fonction de la distance avec le modèle théorique permet de calculer le paramètre M<sup>2</sup> (voir le standard ISO #11146).

En conclusion, le prototype #1 aura permis d'apprendre à manipuler les composantes d'un OPG. On conclut aussi qu'un faisceau pompe de 300  $\mu$ m et un cristal de 40 mm permettent de maximiser la densité spectrale d'énergie du signal et de l'idler. Ces paramètres seront utilisés dans le prototype #2.



**Figure 16.** Énergie de sortie du signal en fonction de l'intensité crête de la pompe pour des diamètres dans le plan de l'étranglement de 150 et de 300  $\mu$ m (cristal de 40 mm).

# 3.2 Prototype # 2 : Montage

La fig. 17 montre le schéma du montage du prototype #2. La pompe est un laser Nd:YAG 1.064  $\mu$ m opérant en mode déclenché activement (*Q-switch*). Il s'agit du laser Wedge Hf-1064 SB de Bright Solutions. Ses caractéristiques sont les suivantes : opération sur un seul mode spatial (paramètre  $M^2 < 1.3$ ), impulsion de 700 ps (à 10 kHz), cadence variable entre 1 et 100 kHz, faible bruit de synchronisation (*jitter*) et oscillation sur de multiples modes longitudinaux. Le faisceau passe successivement à travers un isolateur optique (ISO), un atténuateur optique variable (VOA) et finalement, une lentille (focale = 175 mm). Cette dernière permet une focalisation au centre du cristal. Le rayon dans le plan de l'étranglement (à 1/e<sup>2</sup>) est de 148  $\mu$ m (mesuré en l'absence du cristal avec une caméra infrarouge de modèle Spiricon SP620). La polarisation (linéaire) de la pompe est parallèle à l'inversion des

domaines du cristal. Les dimensions du PPMgO:LN (Covesion, modèle MOPO1-1.0-40) sont de 40 x 10 x 1 mm<sup>3</sup> et incorporent cinq différentes régions (1 x 1 mm<sup>2</sup>) ayant différentes périodes d'inversion (29.52, 29.98, 30.49, 31.02, 31.59  $\mu$ m). Un revêtement anti-reflets aux trois bandes de longueurs d'onde (réflexion (R) <1.5% @ 1064nm & R<1% @1400-1800nm & R~ 6%-3% @ 2600-4800nm) est présent sur chaque surface. Un four contrôle la température du cristal entre 20 à 200°C, avec une stabilité de 0.01°C. Le cristal et le four sont montés sur une plateforme de positionnement à 5 axes. Pour accorder la longueur d'onde de l'OPG, le PPMgO:LN est déplacé perpendiculaire à l'axe optique de la pompe et sa température est variée. Après le cristal, des filtres permettent d'isoler le signal et l'idler. Ils permettent aussi d'éliminer la pompe résiduelle et d'autres faisceaux parasites générés par l'amplification (entre autres le faisceau vert).



**Figure 17.** Schéma du montage de l'OPG. D: lame dichroïque, M: miroir, VOA: atténuateur optique variable, ISO: isolateur optique, L: lentille. Le VOA est construit à partir d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur. Il permet aussi de tourner adéquatement la polarisation. La figure est reproduite à partir de [2].

La sortie de l'OPG est monitorée avec différents instruments. La puissance est mesurée avec une thermopile (Gentec EO, XLP12), le spectre MWIR est monitoré avec un spectrographe à réseau (Oriel MS260, focale = 257 mm, réseau : 300 lignes/mm, dispersion réciproque = 12,9 nm/mm à  $\lambda_{blaze}$  = 2 µm) couplé à une caméra MCT-APD (HgCdTe avec gain à avalanche). La caméra est décrite en détail à la section 4.2. La résolution est de 0.7 nm à 1.55 µm et d'environ 1.7 nm à 3 µm avec une fente d'entrée de 25 µm.

#### 3.2.1 Injection d'un signal d'entrée

Dans cette section, nous décrivons les sources d'injection utilisées pour initier l'émission de l'OPG. L'injection a pour objectif 1) d'optimiser la densité spectrale de l'OPG et 2) d'améliorer la stabilité impulsion à impulsion. Deux types de sources d'injections CW ont été utilisées : une source à large bande (15 et 1 nm) et une source monomode commerciale (ou SLM, single-longitudinal mode). La source fibrée large bande a été construite en utilisant des composants télécom pris sur étagère (commercial off-the-shelf) en bande C. Ainsi, la longueur d'onde idler chevauche les signatures spectrales des hydrocarbures autour de 3.3 μm. La chaîne d'amplification de la source est présentée à la fig. 18. Toutes les composantes sont fibrées (fibre monomode). La chaîne débute par une diode super-luminescente (SLED). Avant son amplification, un filtre passe-bande conscrit le spectre de la sortie de la SLED. Selon les expériences, deux types de filtres (BPF, Band Pass Filter) sont utilisés : un filtre Koshin avec une bande passante de 1 nm ou un filtre de AFW Technologies avec une bande passante de 15 nm. La sortie du filtre passe par un contrôleur de polarisation (PC) avant d'entrer dans un amplificateur optique à semi-conducteur (SOA, Covega BOA-6302). L'objectif est d'augmenter la densité spectrale de puissance. La sortie du SOA passe au travers d'un isolateur optique  $(\rightarrow)$  et est ensuite filtrée par un filtre passe-bande de 15 nm (AFW Technologies). Le second filtre est utilisé pour éliminer une partie de l'émission parasite du SOA. Finalement, le faisceau est amplifié par un amplificateur à fibre dopée à l'erbium (EDFA, SDL modèle FA30), dont le gain peut être contrôlé. Avec le filtre de 15 nm, la sortie peut atteindre plus de 400 mW. SLED, SOA et EDFA fonctionnent tous en CW. Le faisceau passe par un second contrôleur de polarisation avant d'être dirigé vers l'OPG. À la sortie de la fibre, le faisceau est polarisé verticalement. Il est ensuite collimaté, co-aligné avec la pompe et focalisé à l'intérieur du cristal (voir fig. 17). Des précautions sont prises afin que le volume du faisceau d'injection soit légèrement supérieur à celui de la pompe dans le PPMgO:LN [74]. Le faisceau d'injection est focalisé à un rayon égal à 220 µm, situé à environ 1.5 cm de la surface d'entrée du cristal. Le faisceau pompe et le faisceau d'injection divergent peu le long du cristal de 40 mm; en effet, les longueurs de Rayleigh sont respectivement de 10 et de 6.5 cm pour les faisceaux d'injection et pompe.



**Figure 18.** Montage expérimental pour l'injection d'un signal à large bande s'élevant à 1 et de 15 nm. La figure est reproduite à partir de [6].

La deuxième source d'injection est un laser accordable opérant sur un seul mode longitudinal (SLM) (modèle Santec TSL-210-155). Sa sortie fibrée est connectée au même contrôleur de polarisation fibré que le système à large bande. Encore une fois, le volume du faisceau d'injection est légèrement plus grand que celui de la pompe. La fig. 19 montre les spectres des trois sources d'injection (1 nm, 15 nm et SLM). Les spectres sont mesurés avec un analyseur de spectre optique (Agilent HP-86142B). Les spectres changent très peu en fonction de la puissance. Le spectre de la source de 1 nm indique que le gain du SOA n'est pas saturé (le niveau de puissance à l'entrée est trop bas). Par conséquent, la sortie du SOA contient un niveau important d'émission spontanée amplifiée (ASE). L'ASE est partiellement filtrée par le filtre passe-bande de 15 nm et amplifiée par l'EDFA. La grande quantité d'énergie dans les ailes du spectre de 1 nm a un impact sur l'injection de l'OPG et son spectre d'émission. Pour la source SLM, le spectre mesuré est limité par la bande passante de l'OSA.



**Figure 19**. Spectres normalisés des trois sources d'injection. La figure est reproduite à partir de [2].

## 3.3 Mesures expérimentales

#### 3.3.1 Puissance et accordabilité

Cette section présente les résultats expérimentaux obtenus avec l'OPG. Elle débute par les mesures de puissance (énergie) et d'accordabilité. La fig. 20 présente l'énergie de sortie du signal et celle de l'idler en fonction de l'énergie de la pompe. L'atténuateur variable est utilisé pour varier l'énergie d'entrée de l'OPG. Pour cette mesure, la pompe est opérée à une cadence de 4 kHz et les conditions d'accord de phase sont :  $\lambda_2 = 1560$  nm,  $\lambda_1 = 3346.5$  nm, température du PPMgO:LN = 190 °C et période d'inversion = 29.98 µm. Pour une énergie pompe de  $U_3 = 108 \mu J$  (430 mW de puissance moyenne), l'intensité crête dans le cristal est de ~ 422 MW/cm<sup>2</sup>. À ce point, sur la fig. 20, la pompe transfère respectivement 36.6  $\mu$ J (146.4 mW) et 18.4 µJ (73.7 mW) au signal et à l'idler. Les énergies de sortie sont corrigées pour les pertes des filtres. La conversion totale atteint 51 %, une valeur qui est au niveau de l'état de l'art (voir Tableau 2). Le ratio entre l'idler et le signal est de  $\sim$  2, en concordance avec la valeur théorique de  $\lambda_1/\lambda_2 = 2.14$ . Pour une énergie pompe de  $U_3 = 108 \mu$ J, l'énergie de sortie de l'idler a aussi été mesurée en fonction du niveau de puissance de la source d'injection ayant une largeur spectrale de 15 nm. L'énergie de l'idler sature rapidement à 21 µJ (84 mW), soit une augmentation de 15 % par rapport à la mesure sans source d'injection. Une puissance injectée de 10 mW (0.67 mW/nm) est suffisante pour obtenir cet effet.

La fig. 21 permet de valider le modèle numérique développé à la section 2.4.1. Pour ce faire, les résultats numériques pour l'énergie signal (fig. 12a) ont été reproduits dans le même graphique que les résultats expérimentaux (fig. 20). Dans la zone linéaire ( $U_3 > ~ 20 \mu$ J), on observe un excellent accord entre les énergies calculées numériquement et les valeurs expérimentales. Aucun paramètre numérique n'est ajusté pour obtenir un meilleur accord.



**Figure 20.** Mesures expérimentales de l'énergie de sortie, signal et idler, en fonction de l'énergie de la pompe. La ligne continue et l'axe vertical de droite expriment l'efficacité de conversion. La figure est reproduite à partir de [2].



**Figure 21.** Comparaison entre l'énergie de sortie du signal mesurée expérimentalement (voir fig. 20) et celle calculée numériquement (voir fig. 12a).

La prochaine mesure d'importance est de valider l'accordabilité de l'OPG. La fig. 22 présente ce résultat. En variant la température du cristal et à partir des 5 périodes d'inversion, il est possible de varier la longueur d'onde entre ~1475 et 3800 nm. Les longueurs d'onde mesurées concordent avec celle prédites par les équations de Sellmeier [66].



**Figure 22.** Accordabilité de l'OPG en fonction de la période d'inversion et de la température du PPMgO:LN. Les mesures expérimentales sont représentées par un 'X'. Les lignes continues sont tracées à partir des équations de Sellmeier [66]. La figure est reproduite à partir de [2].

#### 3.3.2 Spectre

La mesure du spectre de l'idler est effectuée avec le spectrographe et la caméra infrarouge (voir section 4.2). À l'exception de la cadence, les conditions de mesures sont les mêmes que celles spécifiées à la section précédente. Le taux de capture d'images de la caméra est de 150 Hz. La cadence du laser fut ajustée au taux de capture d'images de la caméra à 150 Hz. La caméra et le laser sont synchronisés par deux générateurs de délai numériques (Quantum Composer 8534 et Highland T564). Les spectres idler et signal sont constitués de vallées et les pics qui changent de position et d'amplitude d'une impulsion à l'autre. Un moyennage permet de réduire ces variations. Pour une énergie pompe de  $U_3 = 108 \mu$ J, sans injection, la largeur spectrale FWHM passe de ~ 15 nm à 3.8  $\mu$ m à plus de 260 nm autour de la dégénérescence à 2128 nm. La fig. 23a montre les spectres obtenus à ~ 3347 nm à partir d'une moyenne sur 300 impulsions. La courbe 1 est le spectre de l'OPG sans source d'injection. La largeur spectrale (FWHM) est de ~ 30 nm. La diminution de moitié de l'énergie de pompage ( $U_3 = 54 \mu$ J) réduit la largeur d'émission à 27 nm (non montré à la fig. 23a). Le spectre signal correspondant est présenté à la fig. 24 ( $U_3 = 108 \mu$ J).


**Figure 23.** Spectres de l'idler normalisés (moyenne de 300 impulsions): (a) avec et sans injection d'un signal de 15 nm à différentes puissances, (b) avec injection d'une source d'injection de 1 nm (44 mW) et une source d'injection SLM (8 mW). L'intensité est en échelle linéaire. La figure est reproduite à partir de [2].



**Figure 24.** Spectre du signal normalisé (moyenne de 300 impulsions,  $U_3 = 108 \mu$ J). L'intensité est en échelle linéaire. La figure est reproduite à partir de [2].

La fig. 23a présente également les spectres de l'idler lorsque l'émission de l'OPG est initié par le signal d'injection de 15 nm. Les courbes 2-3-4 montrent le spectre de sortie pour des puissances d'injection allant de 11 à 283 mW. On observe peu de variation de la largeur spectrale avec l'augmentation de la puissance injectée. Par contre, l'énergie est décalée vers les hautes longueurs d'onde compte tenu de la nature asymétrique du spectre d'injection de 15 nm (voir fig. 19). La fig. 23b présente les spectres de l'idler lorsque l'OPG est initié par

les sources d'injection de 1 nm et SLM. Les puissances optiques à l'entrée du cristal sont respectivement de 44 et 8 mW pour les sources de 1 nm et SLM. Avec la source d'injection SLM, la largeur spectrale (FWHM) de l'OPG est de  $\sim 5$  nm. Le spectre avec source d'injection de 1 nm montre une largeur spectrale intermédiaire de 11 nm. La fig. 23 démontre que l'injection avec un signal large bande permet de modeler le spectre de sortie de l'OPG sous sa courbe de gain. Les OPG avec source d'injection, répertoriés dans la littérature, ont pour objectif de réduire au minimum la largeur du spectre de sortie. Nous prouvons ici qu'il est possible d'obtenir une largeur intermédiaire, qui est déterminée par les besoins de l'application. La densité spectrale peut ainsi être augmentée. En remodelant le spectre du signal injecté (à l'aide de la forme des filtres), il est aussi possible de produire des photons seulement aux longueurs d'ondes des signatures spectrales des gaz. Les composantes fibrées utilisées en télécom facilitent le développement de sources d'injection large bande autour de 1.3 ou de 1.5 µm. En principe, il est possible d'utiliser n'importe quelle longueur d'onde dans la fenêtre de transparence du PPMgO:LN.

#### 3.3.3 Divergence du faisceau

Les mesures spectrales ont permis de constater que le spectre variait en fonction de la position angulaire échantillonnée dans le faisceau. Afin d'analyser cette propriété, nous avons procédé à l'expérience suivante. À l'aide d'un miroir parabolique hors axe, le faisceau signal est focalisé sur une cible d'aluminium brossé située à 9 m de la source. Le faisceau sur la cible est imagé, à l'entrée du spectrographe, à l'aide d'un télescope. Le montage reproduit celui utilisé pour la mesure de gaz (voir section 4.1). Environ 15 cm après le miroir parabolique, une ouverture carrée de ~1 x 1 mm<sup>2</sup> est insérée. On mesure le spectre du signal à différentes positions spatiales de l'ouverture. Les résultats sont présentés à la fig. 25. L'amplitude du spectre est maximisée et sa largeur spectrale minimisée lorsque l'ouverture est centrée sur le faisceau. Une translation radiale de l'ouverture implique une baisse de l'intensité spectrale, un déplacement du pic d'intensité vers les hautes longueurs d'onde et un élargissement spectral. Un faisceau TEM<sub>00</sub> aurait simplement subi une baisse uniforme de la densité spectrale. Lorsque le signal d'injection de 15 nm est utilisé (courbes avec un trait plein sur fig. 25), ces effets sont réduits. En effet, le pic d'intensité du spectre avec injection reste centré lorsque l'ouverture est déplacée. À -3.41 mm (position de l'ouverture), le spectre sans injection montre clairement plus d'énergie à plus de 1570 nm que le spectre avec injection.



**Figure 25.** Spectres du signal pour différentes positions de l'ouverture carrée, avec et sans source d'injection (15 nm). Pour une ouverture placée au centre du faisceau, on observe une augmentation de la densité de puissance de 15 % lorsque le faisceau est ensemencé. Le centre du faisceau est aussi décalé de 0.27 mm. La figure est reproduite à partir de [2].

Ces observations suggèrent que la distribution angulaire par rapport à l'axe optique (défini par la pompe) dépend de la longueur d'onde. Des composantes spectrales non colinéaires semblent être présentes. À la section 2.1, le modèle théorique a considéré seulement la génération colinéaire. Les conditions d'accord de phase non colinéaires sont:

$$\Delta k_x = \frac{n_2 \cos \theta_2}{\lambda_2} + \frac{n_1 \cos \theta_1}{\lambda_1} + \frac{\cos \phi}{\Lambda} = \frac{n_3}{\lambda_3}$$

$$\Delta k_y = \frac{n_2 \sin \theta_2}{\lambda_2} + \frac{n_1 \sin \theta_1}{\lambda_1} + \frac{\sin \phi}{\Lambda} = 0,$$
(4)

où  $\phi$  est l'angle entre la pompe et le vecteur d'inversion (*poling*),  $\theta_2$  représente l'angle entre le vecteur signal et le vecteur pompe et  $\theta_1$  représente l'angle entre le vecteur idler et le vecteur pompe. Un diagramme illustrant ces vecteurs est présenté à la fig. 26a. En ce qui concerne la génération colinéaire ( $\theta_{l,2} = \phi = 0$ ), le spectre de sortie est centré sur ( $\lambda_2$ ,  $\lambda_1$ ) où  $\Delta k = 0$ . Les composantes spectrales avec une longueur d'onde à l'extérieur du centre ( $\lambda_2$ ,  $\lambda_1$ ) ont un gain inférieur compte tenu de leur accord de phase imparfait. Pour ces composantes spectrales, l'accord de phase nul est obtenu à angle, i.e., pour  $\theta_{l,2} \neq 0$ . Sous certaines conditions, le gain pour ces interactions non colinéaires est élevé. Les angles peuvent être calculés en résolvant l'eq. (4). La fig. 26b montre le résultat pour  $\phi = 0$ ,  $\lambda_3 = 1064$  nm,  $T_{crystal} = 190$  °C et  $\Lambda = 29.98$  $\mu$ m ( |**q**| =  $2\pi/A$ .). Dans ce cas, les longueurs d'onde menant à un accord de phase colinéaire sont  $\lambda_2 = 1560$  nm et  $\lambda_1 = 3346.5$  nm ( $\lambda_{2,1}$  à  $\theta_{1,2} = 0$  sur la fig. 26b). L'accord de phase non colinéaire est obtenu avec des hautes longueurs d'onde pour le faisceau signal (courbe noire) et inversement pour l'idler (courbe grise). Chaque paire de longueurs d'onde (signal et idler) s'accorde à un angle légèrement différent, produisant un élargissement spectral et une augmentation de la divergence du faisceau à la sortie de l'OPG. Ceci explique le spectre élargi et décalé vers le rouge du signal observé lorsque l'ouverture est décalée vers l'extérieur du faisceau (voir fig. 25). Les angles de génération non colinéaires de l'idler sont  $\lambda_2/\lambda_1$  fois plus élevés que ceux du signal. La valeur du paramètre M<sup>2</sup> de l'idler est ainsi plus élevée. À la fig. 26b, le calcul a été répété pour un angle de  $\phi = 3^{\circ}$  entre la pompe et le cristal. Dans ce cas (courbe bleue), la symétrie radiale est perdue et il en résulte un spectre non colinéaire élargi. La longueur d'onde du signal colinéaire se déplace vers le rouge. Ces effets ont été observés expérimentalement. Lors d'une mesure avec une longueur d'onde du signal à 1480.5 nm, un léger angle a été ajouté entre la pompe et l'axe du cristal. Le spectre s'est élargi de 2 à 2.4 nm (FWHM, sans injection) et la longueur d'onde centrale (accord de phase colinéaire) s'est déplacée à 1482 nm.



**Figure 26.** (a) Diagramme de l'accord de phase non colinéaire. (b) Angles ( $\theta_{l,2}$ ) pour obtenir un accord de phase nul. La longueur d'onde de l'idler utilise l'axe des abscisses du haut. Les angles pour le signal sont illustrés pour  $\phi = 0$  et 3°. La figure est reproduite à partir de [2].

Quel est le gain pour une interaction non colinéaire donnée? La littérature présente peu d'information sur ce régime. Plusieurs OPG, présentés au tableau 2, doivent subir une dégradation de leur divergence à cause de ce phénomène. Nous avons rassemblé les informations pertinentes. Le groupe de Powers [70, 72, 74, 75] a étudié les effets non colinéaires responsables de la génération de spectres très larges (> 500 nm) lors du pompage d'un PPLN (largeur de 10 mm, épaisseur de 0.5 mm) par une pompe fortement elliptique. Selon [70], le gain non colinéaire dépend du volume d'intersection entre les photons divergents et la section transverse de la pompe. Les angles d'interaction doivent être petits et le diamètre de la pompe large afin de permettre un gain significatif aux photons non colinéaires qui s'éloignent du centre de la pompe. Cette affirmation semble validée par des mesures expérimentales et numériques du paramètre M<sup>2</sup> en fonction du diamètre de la pompe [70, 74, 75,76] ainsi que des mesures expérimentales du paramètre M<sup>2</sup> en fonction de l'intensité de la pompe [47, 55, 57]. Les mesures du paramètre M<sup>2</sup> avec le prototype # 1 ont également montré une augmentation de celui-ci avec le diamètre et l'intensité de la pompe. Le paramètre  $M^2$  n'a pas été mesuré avec le prototype # 2 parce que la source était montée sur le système de télédétection et non pas sur une table optique. La fig. 25 montre que l'amplification non colinéaire est réduite lorsque la source d'injection de 15 nm est utilisée. Dans ce cas, les photons colinéaires sont favorisés puisque l'amplification débute sur des photons dont l'intensité est de plusieurs ordres de grandeur supérieure au bruit, celui-ci étant à l'origine de l'amplification non linéaire.

Finalement, l'augmentation du paramètre  $M^2$  avec l'augmentation de la puissance ou de la taille du faisceau est aussi la conséquence de la dégradation des faisceaux due à la reconversion spatiale (idler + signal vers pompe). Un filtrage est possible en utilisant un faisceau pompe étroit ayant une bonne qualité de faisceau [74].

#### 3.3.4 Stabilité impulsion à impulsion

Une autre propriété importante de la source est sa stabilité d'une impulsion à l'autre. Il s'agit d'une source majeure de bruit qui limite la quantité minimale de gaz mesurable. Lors d'une mesure sur un seul pic d'absorption avec deux longueurs d'onde, le système est capable de mesurer une quantité de gaz produisant une absorption égale au niveau de bruit. La sensibilité est fixée à  $1 \times \sigma_{RMS}$ . Pour des mesures très sensibles, le bruit doit être minimisé et ainsi le

spectre doit être très stable d'une impulsion à l'autre. Le spectrographe et la caméra permettent de monitorer les spectres de l'idler et du signal à chaque impulsion. Ce faisant, nous avons observé des variations importantes sur les spectres successifs. Les vallées et les pics constitutifs de chaque spectre changent considérablement de position malgré que l'énergie totale convertie fluctue de seulement 0.5 % (valeur rms). Afin de quantifier ce phénomène et de vérifier l'effet de la source d'injection, nous avons utilisé deux méthodes pour analyser la stabilité. Dans la méthode #1, 300 spectres successifs de l'idler ont été mesurés (à 150 Hz). On calcule la moyenne et l'écart type pour chaque longueur d'onde (ou pixel). Un graphique de la stabilité spectrale montre l'écart type relatif (RSD = écart type / moyenne ) à chaque longueur d'onde. Cette méthode a été utilisée par Guan et Powers [72] pour analyser le bruit des processus colinéaires et non colinéaires en fonction de la puissance pompe dans le cas d'une pompe elliptique. La méthode est utilisée ici pour analyser l'impact de la source d'injection sur la stabilité de l'OPG. Les résultats sont présentés à la fig. 27. Premièrement, comme exposé dans [72], une saturation plus forte conduit à une stabilité plus importante (courbe A vs B dans fig. 27). La meilleure stabilité est obtenue avec la source d'injection de 15 nm avec une puissance de 142 mW. À 3350 nm, les fluctuations sont approximativement deux fois moins importantes avec l'injection. Le RSD est d'environ 0.1 et égal au niveau de stabilité de la source d'injection seule (mesuré à 1560 nm). La stabilité est supérieure au centre (puissance maximale) du spectre de l'OPG compte tenu de la densité spectrale supérieure. Doubler la puissance d'injection n'augmente pas la stabilité (courbe E vs D). Par rapport à la source d'injection 15 nm, l'utilisation de la source d'injection de 1 nm ou SLM ne favorise par une meilleure stabilité (spectres non montrés sur la fig. 27). Finalement, le spectre de stabilité avec source d'injection montre moins de "structures" que ceux sans source d'injection. Lors d'une mesure de gaz, ces structures peuvent être assimilées à des signatures d'absorption des gaz et ne sont pas désirables. Ces structures varient d'une séquence de 300 impulsions à l'autre. Leur amplitude est réduite lorsque l'analyse utilise une statistique de 1000 impulsions.



**Figure 27.** Mesure de la stabilité du spectre selon la méthode #1. 1) Sans injection: A)  $U_3 = 56 \mu$ J. B)  $U_3 = 108 \mu$ J. 2) Avec injection d'un signal de 15 nm à différentes puissances : C) 11 mW,  $U_3 = 108 \mu$ J. D) 142 mW,  $U_3 = 108 \mu$ J. E) 283 mW,  $U_3 = 108 \mu$ J. Les spectres associés à ces mesures sont présentés à la fig. 23. La figure est reproduite à partir de [2].

La première méthode a mesuré la stabilité à chaque longueur d'onde. Avec la méthode #2, la stabilité est une mesure intégrée en longueur d'onde (stabilité de l'ensemble du spectre). La réf. [77] a utilisé cette technique pour analyser le bruit d'un système de mesure de gaz à partir d'un spectre de transmission large bande. Nous procédons de la même façon pour définir les bruits dominants et analyser l'effet de la source d'injection. Les spectres d'impulsions successives  $s_i(\lambda)$  sont d'abord moyennés  $\bar{s}_j(\lambda) = \sum_i s_i(\lambda)/m$  en bloc de m = 5, 10, 100, 500, 1000 et 3000 impulsions. Ensuite, le ratio de blocs successifs  $(\bar{s}_j/\bar{s}_{j+1})$  est calculé. Ce ratio est approximativement égal à  $1 + n(\lambda)$ , où n est une petite variation due au bruit du détecteur et à l'instabilité de la source. Pour quantifier n, l'écart type du logarithme naturel est calculé sur le spectre intégré, i.e.,  $\sigma[\ln(\bar{s}_j/\bar{s}_{j+1})] \sim \sigma(n)$ . La fig. 28a montre le résultat de cette analyse faite avec et sans source d'injection de 15 nm. Le bruit varie comme la racine carré du nombre d'impulsions moyennées (m). Les résultats avec injection sont 20 à 25 % meilleurs que sans source d'injection. Cet avantage augmente si le calcul utilise une largeur de bande plus faible (voir fig. 27, méthode #1). Les deux méthodes montrent une augmentation de la stabilité avec l'utilisation de la source d'injection.

La méthode #2 a été répétée en utilisant différents niveaux de puissance à l'entrée du spectrographe. Pour ce faire, un polariseur MWIR est inséré en avant de la fente d'entrée du spectrographe. La rotation du polariseur permet de varier le niveau de puissance mesuré par la matrice de détection située à la sortie du spectrographe. La fig. 28b montre les valeurs de  $\sigma(n)$  en fonction des niveaux de voltage maximaux détectés sur le spectre. On peut distinguer deux régimes de bruit. À des niveaux inférieurs à ~ 20 mV, le bruit est uniforme et dominé par la contribution de la caméra. À des niveaux supérieurs à 20 mV, le bruit est dominé par le bruit d'intensité de l'OPG. Dans ce cas, le ratio signal sur bruit, ou SNR, est fixe. À noter, les mesures à toutes les longueurs d'ondes des fig. 23-27-28a sont à des niveaux supérieurs à 20 mV, donc l'analyse de stabilité mesure le bruit d'intensité de l'OPG.



**Figure 28.** Mesure de stabilité avec la méthode #2 ( $U_3 = 108 \mu$ J): (a) Écart type ( $\sigma(n)$ ) en fonction du nombre de spectres moyennés (*m*) avec et sans source d'injection 15 nm. En rouge, on présente un ajustement, ou régression, selon un modèle  $a \cdot x^b$ . (b) Écart type ( $\sigma(n)$ ) en fonction du voltage détecté (valeur maximale sur le spectre moyen). Les analyses utilisent un *m* = 300. Lors de cette mesure, la source d'injection est éteinte. La figure est reproduite à partir de [2].

## 3.4 Discussion

La section 3.3 a détaillé les caractéristiques expérimentales du prototype #2. Dans cette section, nous proposons une discussion sur ces caractéristiques par rapport à celles souhaitées pour l'application (voir section 1.3.1). La discussion met aussi en lumière différents compromis entre les paramètres de conception d'un OPG.

#### 3.4.1 Accordabilité et largeur spectrale

Premièrement, l'OPG permet la sélection de signatures moléculaires situées entre ~1475 et 3800 nm. Avec des périodes d'inversion plus courtes, il est possible d'atteindre environ 4.8  $\mu$ m, après quoi les pertes du PPLN sont trop importantes. Le PPLT permettrait une accordabilité jusqu'à environ 5.2  $\mu$ m. La région au-dessus de 6  $\mu$ m contient aussi des signatures d'intérêt en télédétection. Cette région est accessible avec la même architecture que celle présentée ici. Par exemple, il est possible d'utiliser un cristal GaAs dont l'orientation est alternée (*orientation-patterned GaAs*) avec une pompe ayant une longueur d'onde supérieure à 1.5  $\mu$ m [43].

Du côté de la largeur spectrale, nous avons voulu développer une source permettant une largeur spectrale flexible. Pour plusieurs applications de télédétection de gaz, la pleine largeur spectrale de l'OPG ( > 80 nm à 3  $\mu$ m) est suffisante (e.g. pour la détection d'un gaz unique en présence d'un interférent). Sous la courbe de gain de l'OPG, l'injection permet de modeler la forme du spectre de sortie de façon à optimiser la densité spectrale. Les photons peuvent être générés à des longueurs d'onde prédéterminées pour le signal et menant à des fréquences de l'idler centrées sur les signatures des molécules à détecter. Il serait aussi possible d'utiliser des sources d'injection directement dans le MWIR. D'autres applications exigent la détection sur des spectres encore plus larges, notons par exemple la détection de molécules complexes aux signatures très larges et difficiles à discriminer avec un spectre de largeur modéré. Comme décrit à la section 2.3 et observé avec le prototype #1, des spectres plus larges sont obtenus avec des durées d'impulsion plus courtes. Ces conditions d'opération (intensités crêtes plus élevées, longueur d'interaction plus courte) peuvent entraîner une divergence de faisceau plus élevée en favorisant la conversion non colinéaire. La densité spectrale d'énergie est aussi réduite significativement en choisissant des impulsions plus courtes (voir section 2.3).

Il existe deux autres moyens pour augmenter la largeur spectrale de l'OPG. Premièrement, un supercontinuum s'étalant sur plusieurs microns peut être généré autour de la dégénérescence, si elle coïncide avec le zéro de dispersion du cristal. Une source d'injection, ayant une très large bande, pourrait limiter l'élargissement. Deuxièmement, l'utilisation de nouvelles structures apériodiques, dans la géométrie d'inversion du cristal de quasi-accord de phase, permet de produire des courbes de gain très larges et uniformes [78]. Cette dernière approche serait priorisée.

### 3.4.2 Qualité de faisceau

En combinant nos expériences avec la littérature, on conclut que les causes de la dégradation de la divergence d'un OPG sont 1) une augmentation de la conversion non colinéaire et 2) une augmentation de la reconversion spatiale qui contribue à la dégradation du faisceau. Un filtrage est possible en utilisant un faisceau pompe étroit ayant une bonne qualité de faisceau. Comme nous avons vu à la fig. 25, une source d'injection large bande permet aussi de réduire la divergence. Pour une même puissance, plus le spectre de celui-ci sera fin, plus il permettra d'éteindre les composantes non colinéaires. Pour une même puissance de sortie, le moyen le plus facile de supprimer la génération non colinéaire pourrait être de diminuer la puissance pompe et de compenser par une augmentation de la puissance de la source d'injection [78]. Par conséquent, il est difficile d'augmenter l'énergie en augmentant la taille de la pompe, tout en préservant la divergence du faisceau. La section suivante (3.4.3) présente deux alternatives.

La conversion non colinéaire présente aussi des désavantages pour la télédétection de gaz. Les photons ainsi produits élargissent la taille du faisceau sur une cible éloignée et ont un impact sur le couplage au spectrographe. Afin de réduire la taille du faisceau sur la cible, le télescope d'émission doit avoir une grande focale. Ceci implique un grand diamètre pour ne pas perdre de photons. Le télescope de réception doit avoir une petite focale pour réduire l'image sur la fente d'entrée du spectrographe (afin d'augmenter la résolution). De plus, l'étalonnage spectral devient problématique si tous les photons ne sont pas récupérés. Pour la mesure de gaz, un spectre de référence doit être idéalement mesuré avant la propagation dans l'atmosphère. Celui-ci ne sera peut-être pas représentatif de la mesure prise sur le parcours atmosphérique (outre l'effet des gaz).

## 3.4.3 Augmentation de l'énergie

Pour certaines applications LIDAR, le système devrait permettre la mesure d'un retour provenant de la rétrodiffusion sur les aérosols. Selon les conditions (longueur d'onde, taille et type d'aérosols), le niveau de retour est de plusieurs ordres de grandeur plus faibles que pour une réflexion topographique. Ainsi, l'énergie de sortie de l'OPG doit être significativement augmentée pour mesurer efficacement la rétrodiffusion sur les aérosols (i.e., atteindre un SNR élevé en un temps de mesure raisonnable). Voici deux designs permettant éventuellement une augmentation significative de l'énergie.

Premièrement, l'expérience décrite à la référence [48] montre une amplification successive dans trois cristaux de PPMgSLT atteignant 8 mJ à 1572 nm (voir fig. 29) avec une bonne qualité de faisceau (pas de mesure citée dans l'article). Un laser (10ns, 400 Hz) pompe les trois cristaux ayant une section de 3 X 3 mm<sup>2</sup>. Notre compréhension est que, malgré l'utilisation d'un faisceau pompe large, la divergence est limitée étant donné l'utilisation d'une pompe SLM et une source d'injection très étroite spectralement (MHz) et intense. L'article montre la possibilité d'obtenir des impulsions de plusieurs mJ en utilisant un faisceau laser large et une chaîne d'amplification. Dans notre cas, l'utilisation d'une source d'injection large bande ne permettrait pas de supprimer complètement la conversion non colinéaire. Pour ce faire, il serait possible de filtrer spatialement le faisceau entre les cristaux afin d'éliminer les composantes non colinéaires. L'utilisation de cristaux de quasi-accord de phase apériodique permettrait de contrôler adéquatement la largeur du spectre de l'OPG. Aussi, la référence [78] expose les règles de design pour minimiser la conversion non colinéaire dans le cas particulier d'un OPA avec un cristal de quasi-accord de phase apériodique. Ces règles ne s'appliquent pas à la géométrie périodique.



**Figure 29.** Schéma d'amplification décrit dans [48]. La source est utilisée dans un système DIAL permettant la mesure du CO<sub>2</sub> à grande distance.

La seconde méthode pour augmenter l'énergie de sortie de l'OPG, tout en maintenant la qualité du faisceau, est d'utiliser un empilement de plusieurs PPLN et une matrice de microlentilles illuminée par un faisceau pompe large. Cette idée a été proposée dans [75] et

a permis de générer un faisceau signal de 33 mJ ayant un paramètre  $M^2$  inférieur à 2. Le champ lointain se comporte comme un seul faisceau. Dans ce design, l'énergie de sortie est facile à augmenter.

#### 3.4.4 Stabilité

Afin de permettre une mesure de gaz rapide (à l'intérieur de la seconde) et sensible (mesure d'absorption inférieure à  $10^{-4}$ ), il est nécessaire de produire un spectre très stable d'une impulsion à l'autre. Nous avons conclu qu'il s'agit de la source de bruit principale de notre système. À la section 3.3.4, le plus bas niveau de bruit  $n(\lambda)$  indique qu'il est possible de mesurer une absorption de  $3 \times 10^{-3}$  en 20 secondes (3000 impulsions à 150 Hz, avec la source d'injection de 15 nm). Le moyennage permet de réduire le bruit, mais augmente également le temps de réponse du système. L'instabilité de la source provient de deux processus :

1) Les fluctuations temporelles et spatiales du bruit de départ sont transférées aux faisceaux de sortie [72, 74].

2) Le bruit de partition de modes de la pompe est transféré au signal et à l'idler. Ces effets sont réduits par la saturation de l'amplification.

Nous avons montré expérimentalement que l'utilisation d'une source d'injection (à bande étroite ou large) améliore la stabilité en augmentant la puissance de sortie et en réduisant le processus 1). Chaque impulsion est amplifiée à partir d'un signal nettement plus intense que le bruit et montre un spectre identique. Une réduction du bruit de partition de l'OPG serait aussi bénéfique. Le modèle numérique proposé à la section 2.4.1 est un outil utile pour comparer l'effet des différentes propriétés du pompage sur la stabilité (pompe SLM, pompe MLM, avec et sans source d'injection). Pour huit différentes pompes, la simulation est utilisée pour analyser la stabilité de l'idler selon la méthode #2 pour m = 150 (voir section 3.3.4). Le calcul demande la simulation de 600 impulsions. Les 600 spectres sont séparés en 4 groupes de m = 150 impulsions. Le paramètre  $\sigma(n)$  est calculé comme la moyenne des six combinaisons possibles, i.e., $(\sigma[\ln(\bar{s}_1/\bar{s}_2)] + \sigma[\ln(\bar{s}_1/\bar{s}_3)] + \sigma[\ln(\bar{s}_1/\bar{s}_4)] +$  $\sigma[\ln(\bar{s}_2/\bar{s}_3)] + \sigma[\ln(\bar{s}_2/\bar{s}_4) + \sigma[\ln(\bar{s}_3/\bar{s}_4)])/6$ . On procède ainsi afin de diminuer l'incertitude sur  $\sigma(n)$ . La simulation demande environ 24 heures de calcul par cas. Chaque spectre idler est convolué par une fonction triangle de 1.7 nm afin de reproduire l'effet de la

fonction de transfert du spectrographe. Le calcul utilise une largeur de bande de 100 nm. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.

Premièrement, le cas 1 est identique à celui de la pompe expérimentale. La valeur de  $\sigma(n(\lambda))$ simulée est près de la valeur expérimentale (0.023 vs 0.015). Comparé au cas 1, l'énergie de la pompe est réduite de moitié au cas 2. Comme observé expérimentalement, la valeur calculée de  $\sigma(n)$  diminue avec l'augmentation de la puissance, i.e., une plus forte saturation de l'amplificateur. Lorsque le nombre de modes d'une pompe MLM augmente, pour une largeur spectrale constante,  $\sigma(n)$  diminue et le niveau de conversion reste stable (cas 7 vs 5 ou 4 vs 1). Lorsque la largeur spectrale de la pompe augmente, tout en gardant le même espacement spectral, la valeur moyenne de l'énergie de sortie augmente (cas 1 vs 5) puisque l'enveloppe temporelle de la pompe montre des pics ayant des intensités plus élevées. La stabilité est aussi légèrement augmentée. La pompe SLM montre une meilleure stabilité que celle expérimentale (cas 1 vs 8). Plusieurs OPG, recensés dans la littérature, utilisent une pompe SLM. Par contre, nos simulations montrent qu'une meilleure stabilité est obtenue avec une pompe hautement MLM (cas 5 vs 8), i.e., ayant un spectre large (FWHM = 1000 GHz) et un espacement fin (3.2 GHz) entre les modes. De plus, cette pompe conduit à une conversion plus élevée et à un spectre plus lisse que la pompe SLM. Comme affirmé plus haut, cette propriété est désirable pour la mesure de gaz [14]. Finalement, l'effet de la source d'injection a aussi été testé numériquement. Une source d'injection CW de 15 nm montre une augmentation de la stabilité (5 vs 6 et 1 vs 3). Le Tableau 3 présente aussi les résultats de l'écart type relatif (i.e., ratio écart type sur moyenne) de l'énergie idler ( $RSD(\bar{U}_l)$ ), calculé sur 600 impulsions. Les résultats sont cohérents avec la métrique  $\sigma(n)$ .

Propriétés de la pompe					Résultats		
	Cas				Énergie Idler		Ratio
	Séparation	Largeur	U3	Injec-	$ar{U}_l$	$RSD(\bar{U}_l)$	$\sigma(n)$
#	des modes	spectrale	(µJ)	tion	(µJ)	(%)	(%)
	(GHz)	(GHz)					(± 0.1%)
1	3.2	40	106	Non	16.9	1.8	2.3
2	3.2	40	53	Non	7	3.0	3.7
3	3.2	40	106	Oui	18.8	1.6	2.1
4	10	40	106	Non	16.8	2.4	2.7
5	3.2	1000	106	Non	17.7	1.0	1.7
6	3.2	1000	106	Oui	20	0.9	1.6
7	80	1000	106	Non	17.8	2.7	2.1
8	SLM		106	Non	16.6	1.2	2.0

**Tableau 3.** Stabilité calculée numériquement pour différents paramètres de la pompe et de la source d'injection.

Point à noter, la simulation surestime la largeur du spectre par rapport au spectre observé expérimentalement. Nous avons essayé, sans succès, de comprendre la cause de cet élargissement. Nous suggérons d'intégrer le comportement spatial des faisceaux à une future version du simulateur (i.e., utilisation des opérateurs de Laplace dans l'eq. (1)). Cette implémentation demandera une augmentation de la puissance de calcul. La simulation du contenu spectral des trois faisceaux multimodes demande déjà passablement de puissance de calcul. Une simulation unique demande 150 secondes de calcul sur un nœud de calcul dual Xeon X5680 (12 CPU à 3.33GHz, RAM = 192 GB).

# 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la caractérisation des cinq propriétés principales de l'OPG : accordabilité, puissance, largeur spectrale, stabilité et divergence. En résumé les propriétés de l'OPG sont :

-Accordabilité : 1475 - 3800 nm
-Énergie par impulsion et puissance moyenne (1.56 μm et 3.3 μm, U<sub>3</sub> = 108 μJ) : U<sub>2</sub> = 36.6 μJ (146.4 mW) et U<sub>1</sub> =18.4 μJ (73.7 mW)
-Pourcentage de conversion (1.56 μm et 3.3 μm, U<sub>3</sub> = 108 μJ) : 51 %
-Durée de l'impulsion : < 0.7 ns</li>

-Largeur spectrale (FWHM,  $U_3 = 108 \ \mu$ J) : 15 nm à 3.8  $\mu$ m, 30 nm à 3.34  $\mu$ m, > 260 nm à 2.1  $\mu$ m.

-Bruit (méthode #2, *m* = 150) : 0.023

-Effet de l'injection : augmentation de 15 % sur l'énergie, augmentation de plus de 20 % de la stabilité, optimisation de la densité spectrale d'énergie et augmentation de la divergence.

Cette caractérisation ainsi que la synthèse des informations disponibles dans la littérature ont permis de mettre en lumière les liens entre les paramètres de conception d'un OPG et d'évaluer les impacts sur le système de télédétection:

- Dans les régimes ns et ps, la réduction de la durée de l'impulsion pompe implique un OPG ayant un spectre élargi, mais incluant moins d'énergie par impulsion. La densité d'énergie spectrale est plus élevée dans le régime ns. Pour cette raison, ce régime est favorisé pour les applications.

- La divergence de l'OPG augmente lorsque l'énergie est accrue en augmentant 1) l'intensité crête de la pompe et 2) le diamètre de la pompe à l'intérieur du cristal. On conclut que les causes de l'augmentation de la divergence sont 1) une augmentation de la conversion non colinéaire et 2) une augmentation de la reconversion spatiale qui contribue à la dégradation du faisceau.

- La stabilité de l'OPG augmente avec la densité d'énergie et l'utilisation d'une source d'injection. L'analyse a permis d'identifier les causes de l'instabilité: 1) les fluctuations temporelles et spatiales du bruit de départ sont transférées aux faisceaux de sortie et 2) le bruit de partition de la pompe est transféré au signal et à l'idler.

Nous avons aussi étudié les effets des processus non-colinéaires sur le spectre de l'OPG. Le spectre signal est élargi et décalé vers le rouge (bleu pour l'idler). Le paramètre M<sup>2</sup> de l'idler sera plus élevé que celui du signal. L'ajout d'un angle entre la pompe et le cristal mène à un spectre élargi et un déplacement de la longueur d'onde colinéaire du signal vers le rouge (inversement pour l'idler). Nous avons confirmé la théorie avec des mesures expérimentales et à l'aide de la littérature pertinente. La conversion non colinéaire présente des désavantages

pour la télédétection de gaz. Les photons issus de ce mécanisme élargissent la taille du faisceau sur une cible éloignée ce qui affecte le couplage au spectrographe.

Nous avons démontré que l'utilisation d'une source d'injection large bande permet de modeler le spectre de sortie de l'OPG sous sa courbe de gain. L'injection permet aussi d'augmenter la densité d'énergie de l'OPG ainsi que sa stabilité tout en diminuant sa divergence.

Finalement, nous avons proposé des modifications à l'OPG afin de permettre une accordabilité plus importante, un spectre plus large, une stabilité accrue et une augmentation de l'énergie tout en conservant une qualité de faisceau. Concernant la stabilité, le modèle numérique de l'OPG a permis d'étudier les effets des différentes propriétés de la pompe sur la stabilité. Cette section conclut la partie de la thèse qui traite de l'OPG.

# 4 Système de télédétection

La deuxième partie de la thèse (chapitres 4 à 7) traite du système de télédétection. À partir de la source développée au chapitre 3, l'objectif est de construire un système de télédétection à large bande, accordable dans le MWIR et permettant la détection simultanée de chaque longueur d'onde émise. Le chapitre 4 présente le montage et le schéma de mesure utilisés pour la preuve de concept. Le chapitre 5 présente l'algorithme pour extraire les concentrations à partir de spectres d'absorption. Le chapitre 6 présente les mesures de gaz effectuées pour valider le système.

# 4.1 Montage

Un schéma du système est présenté à la fig. 30. Le prototype est monté sur deux plaques de montage optique superposées. Le tout est monté sur un chariot qui inclut l'électronique et l'alimentation nécessaires pour une utilisation autonome. Le système a été conçu afin de permettre son transport et son utilisation pour les applications extérieures. La plaque de montage optique supérieure inclut l'OPG, l'optique d'émission et un télescope de réception. La plaque de montage optique du bas inclut un spectrographe et une caméra MCT-APD. L'OPG a été décrit en détail à la section 3.2. À la sortie de l'OPG, des filtres permettent de sélectionner le faisceau à propager, soit l'idler et/ou le signal (ou la pompe au besoin). La sortie passe ensuite par un miroir parabolique hors axe (PM1, diamètre = 50.8 mm, f = 152.4 mm, Kaleido Technology ApS) permettant de focaliser le faisceau sur une cible. Cette configuration permet de réduire la taille du faisceau sur la cible. L'émission vers la cible, à la sortie du système, est effectuée au centre du télescope de réception (par M3). Ainsi, les systèmes d'émission et de réception sont sur le même axe optique. Cela permet de modifier aisément la distance ente la cible et le système. Pour les expériences présentées, on utilise une surface réflectrice (un miroir) en guise de cible. La cible est située à l'extrémité du laboratoire. Le télescope de réception recueille la lumière avec son miroir primaire (M4) f/2.5 à focale de 500 mm. Le trajet optique est ensuite replié (M5) et passe par le miroir secondaire (M6), situé au centre du primaire. Le miroir M6 (f = 50 mm et f/2) est placé sur

une platine de translation motorisée (Newport, modèle MFA-CC avec son contrôleur SMC100CC) permettant de focaliser à la distance voulue. Un faisceau collimaté quitte le télescope à travers le trou au centre du miroir plat (M5). Il est dirigé vers la plaque de montage optique du bas via les miroirs M7-8. Enfin, un miroir parabolique hors axe (PM2, f = 101.6 mm, Thorlabs, modèle MPD254508-90-P01) est utilisé pour coupler la lumière sur la fente d'entrée du spectrographe.



**Figure 30.** Schéma du système de mesure constitué de deux plaques de montage optiques superposées. La plaque (a) est positionnée sur le dessus de la plaque (b). La sortie du télescope (faisceau collimaté) est dirigée avec les miroirs (M7-8) vers la plaque de montage optique inférieure. La figure est reproduite à partir de [3].

Mécaniquement, l'appareil peut imager une cible située à une distance allant de quelques mètres à des kilomètres. Pour les expériences présentées au chapitre 6, la distance complète

est de  $\sim 22$  m (sortie du PPMgO:LN - cible - sortie du spectrographe). Les composantes optiques sont toutes réflectrices (couvertes d'un revêtement d'argent) dans le but de maintenir le système achromatique. Nous avons construit le télescope de réception spécifiquement en fonction du système. Sa structure est en fibre de carbone afin de diminuer sa masse et de limiter les effets associés aux variations thermiques (voir fig. 31 pour un dessin assisté par ordinateur du télescope).



**Figure 31.** Dessin assisté par ordinateur du télescope. Le télescope a été conçu à partir d'un ancien concept de lidar de l'INO.

Du côté de la détection, le spectrographe non-imageant (Oriel MS260, focale = 257 mm) utilise un réseau de 300 lignes/mm (dispersion réciproque = 12,9 nm/mm à  $\lambda_{blaze}$  = 2 µm). À la sortie du spectrographe, les spectres sont enregistrés avec un imageur infrarouge. Cette caméra est une matrice MCT-APD (HgCdTe - photodiode à avalanche) développée pour le projet (*Selex*). La caméra est décrite en détail à la section suivante. Afin d'augmenter la résolution spectrale, la taille de la fente d'entrée du spectrographe est fixée à environ 25 µm, réduisant ainsi la fraction du signal retourné par la cible qui est transmise par cette fente. En effet, la taille du faisceau idler sur la cible est environ de 1 cm<sup>2</sup> (voir fig. 32) Le grandissement du télescope est de 0.1 ce qui produit une image d'environ 1 mm<sup>2</sup> sur la fente d'entrée du spectrographe. Si on considère une image carrée et uniforme (hypothèse raisonnable) sur la fente d'entrée, le couplage est de (1 X 0.025) mm<sup>2</sup>/1 mm<sup>2</sup> = 2.5 %. L'analyse du profil de l'idler sur la cible (fig. 32) permet de conclure en un couplage d'environ 3.2 %.



**Figure 32.** Image du faisceau idler à environ 10 m du système. L'image a été prise avec une caméra Spiricon Pyrocam III. La taille est de 12.4 X 12.4 mm<sup>2</sup>.

À 1.55  $\mu$ m, la résolution du spectrographe a été mesurée à ~ 0.7 nm avec un laser opérant sur un seul mode longitudinal. La résolution n'a pas été mesurée directement dans l'infrarouge moyen compte tenu de la non-disponibilité d'un laser à spectre étroit dans la plage spectrale désirée. La résolution a été estimée à ~ 1.7 nm à 3.3  $\mu$ m en analysant la largeur d'une raie individuelle d'absorption de la vibration fondamentale d'étirement du méthane. L'intervalle spectral enregistré sur la caméra est d'environ 100 nm à 3.3  $\mu$ m. Compte tenu de l'utilisation d'une cible réflectrice, des atténuateurs doivent être insérés avant le spectrographe afin de faire fonctionner le détecteur dans sa plage de réponse linéaire. Le faisceau est atténué par ~ 67 fois pour les mesures de CO<sub>2</sub> à 2  $\mu$ m et ~ 15 fois pour les mesures de CH<sub>4</sub> à 3.3  $\mu$ m. Le gain de l'avalanche (MCT) est près de l'unité lors des mesures.

Finalement, le système comprend différents modules électroniques (générateurs de délai synchronisés, générateurs d'horloge, modules pour la lecture et le contrôle de température de la caméra et celle du four du cristal, sources de tension et de courant stabilisées, alimentations et carte de numérisation). La majorité des modules et l'ordinateur embarqué (NI, modèle 6124) sont insérés dans un châssis PXIe (National Instrument, modèle 1078). Tous les systèmes sont contrôlés par une interface Labview. Le tout est situé dans la partie inférieure du chariot servant à transporter les plaques de montage optiques. La fig. 33 présente deux photos du système prises lors d'une séance de mesure.





Figure 33. Photos du prototype.

# 4.2 Caméra

Notre concept de détection repose sur la possibilité d'utiliser une caméra aux propriétés suivantes: grande bande spectrale de détection (idéalement couvrant 1.5 à 5 µm), faible niveau de bruit, résolution élevée, pixels de faibles dimensions et opération en mode de crénelage temporel avec des fenêtres d'ouverture courtes (< 1 µs). Les caméras MCT (semiconducteur HgCdTe) opérant en mode à avalanche (APD ou photodiode à avalanche) offrent toutes ces caractéristiques. Le mode à avalanche offre la possibilité d'utiliser des gains importants (> 100) avec un bruit multiplicatif presque nul [79] et ainsi détecter de très petits signaux. En 2010, il était impossible de se procurer ce type de caméra; seulement quelques projets spatiaux et militaires utilisaient des caméras MCT-APD. Par contre, il était possible d'acheter un prototype de matrice de plan focal, ou FPA en anglais (focal plane array), MCT-APD chez la compagnie Selex-Galileo. Nous avons procédé à l'achat d'un FPA ayant des propriétés définies pour notre application. Ces matrices sont généralement équipées de filtres passe-bande qui permettent de longues fenêtres d'ouvertures en limitant l'exposition au rayonnement thermique. Dans notre cas, nous souhaitions opérer le système entre  $\sim 1.5$  et 4 µm. Ainsi, aucun filtre n'a été installé sur le doigt froid du capteur. Par contre, il devient nécessaire d'opérer la caméra avec des courtes fenêtres d'ouverture ( < ms).

À l'aide du FPA, nous avons construit une caméra en y ajoutant un boîtier, un ventilateur pour évacuer la chaleur et de l'électronique (alimentation, la gestion de la température, synchronisation, et lecture des images). La fig. 34 présente une photo de la caméra. La gestion des différents signaux (entrée et sortie) s'est avérée délicate. La séquence d'envoi et de lecture doit être précisément respectée. Les tolérances sur les paramètres des signaux sont faibles. Le bruit sur les alimentations et les lignes de transmission de l'information doit être limité. On présente ici les principales caractéristiques de la caméra. La matrice contient 320 x 256 pixels carrés de 24 µm de côté. L'efficacité quantique est environ de 70 % dans la plage 1.5 à 4.2 µm. La fenêtre d'ouverture est synchronisée sur chaque impulsion laser à l'aide de deux générateurs de délai numérique (Quantum Composer 8534 et Highland T564). Le délai de synchronisation dépend de la position de la cible. La durée minimale de la fenêtre d'ouverture est de 10 ns. Les expériences de cette thèse utilisent une fenêtre de 1000 ns. La cadence de prise des images est de 150 Hz. Quatre canaux de lecture (numérisation à 4 MS/s) transfèrent une image 2D à la carte d'acquisition de l'ordinateur. La cadence maximale possible avec le FPA est de 375 MS/s mais demande une carte d'acquisition à 10 MS/s. Une numérisation à 10 MS/s augmenterait la cadence d'un facteur de 2.5. Le gain à avalanche peut être sélectionné entre 1 et ~100. La température d'opération de la matrice est de ~  $90^{\circ}$ K. Le refroidissement est effectué avec un compresseur Stirling. La caméra utilise différentes cartes insérées dans le châssis PXI: carte de numérisation rapide (NI, modèle PXI-6124) et standard (NI, modèle PXI-8102) et deux d'alimentation de courant et tension (NI, modèles PXI-6704 et PXI-4110).



Figure 34. Caméra MCT-APD avec le boîtier ouvert montrant le FPA de Selex.

Le laser doit être opéré à la même cadence que la caméra, ce qui implique une faible puissance moyenne. Une longue fenêtre d'ouverture (>1 ms) n'est pas possible compte tenu de l'accumulation du rayonnement thermique provenant de la scène. Le traitement de l'image est effectué par une interface Labview. Un spectre est obtenu en additionnant (*binning*) les colonnes de l'image 2D. Ensuite, un spectre de référence sans laser (OPG ''off'') est soustrait. Finalement, les mesures sont moyennées sur plusieurs impulsions.

# 5 Spectroscopie par absorption

L'objectif de ce chapitre est de développer une méthode permettant d'extraire les concentrations de gaz à partir de spectres d'absorption obtenus avec le système décrit au chapitre précédent. En premier lieu, le modèle théorique derrière l'absorption de la lumière par les molécules de gaz est présenté. En second lieu, on présente les algorithmes utilisés dans la littérature pour extraire les concentrations de gaz à partir d'un ajustement (ou régression) du modèle sur les données expérimentales. Les limites et hypothèses seront exposées. En dernier lieu, on présente un nouvel algorithme permettant de déterminer les concentrations à partir de spectres qui présentent de fortes signatures d'absorption.

## 5.1 Théorie

À des longueurs d'onde spécifiques, le spectre transmis est modifié par les raies d'absorption des raies rotationnelles/vibrationnelles des molécules gazeuses. Après un parcours atmosphérique, le spectre de transmission mesuré est donné par la convolution entre la loi de Beer-Lambert et la fonction de transfert ( $I(\lambda)$ ) du spectrographe (spectrographe + caméra) [14]:

$$T(\lambda) = \exp\left[-\sum_{j} \sigma_{j}(\lambda) \cdot c_{j} \cdot L_{j}\right] \otimes I(\lambda), \qquad (5)$$

où  $c_j$  est la concentration moyenne du gaz # *j* sur une longueur d'interaction  $L_j$  et  $\sigma_j(\lambda)$  est la section efficace d'absorption. Le spectre d'absorption est calculé à partir de 1) l'intensité des raies fournies par la base de donnée Hitran 2008 [20] et 2) le profil de raie exprimée par la fonction de Voigt, qui est établi pour une pression et une température données. Fréquemment, le produit entre la concentration et la longueur d'interaction est exprimé par la variable  $CL_j$  (ppm·m). Le produit  $\sigma_j \cdot c_j \cdot L_j$  est quant à lui appelé « épaisseur optique ». Lorsque l'épaisseur optique est faible (< 0.1) ou lorsque la bande passante de la fonction d'instrument est étroite par rapport à la largeur (FWHM) des raies d'absorption, il est possible d'appliquer la

convolution directement sur la section efficace. L'absorbance  $\alpha(\lambda)$  (aussi appelée densité optique) devient donc une fonction linéaire des concentrations [14]:

$$\alpha(\lambda) = -\ln(T_{approx}(\lambda)) = \left[\sum_{j} CL_{j} \cdot \sigma_{j}(\lambda) \otimes I(\lambda)\right].$$
(6)

L'équation liant l'absorbance aux  $CL_j$  devient non linéaire lorsque le bruit, les biais de l'instrument, les erreurs d'étalonnage ainsi que la lumière parasite de l'instrument et de l'atmosphère sont introduits. Pour tenir compte de ces effets et obtenir un meilleur ajustement du modèle sur un spectre expérimental, on ajoute, à l'eq. (6), des coefficients d'étalonnage qui incluent un polynôme (P, pour la ligne de base) ainsi qu'un coefficient de compression ( $t_j$ ) et de décalage ( $s_j$ ) du spectre:

$$\alpha(\lambda) = \sum_{j} CL_{j} \cdot \sigma_{j}(s_{j} + t_{j}\lambda) \otimes I(\lambda) + P(\lambda).$$
<sup>(7)</sup>

L'eq. (7) est le modèle standard utilisé dans la technique DOAS [14]. Les paramètres P,  $CL_j$ ,  $s_j$  et  $t_j$  de chaque gaz sont extraits d'un spectre expérimental à partir de l'ajustement ou régression (*fit*) du spectre modélisé ou mesuré en laboratoire. Le terme régression sera utilisé dans les discussions suivantes. Des méthodes numériques itératives sont nécessaires pour retrouver les paramètres de la régression. La méthode des moindres carrés non linéaires, en particulier l'algorithme de Marquardt-Levenberg, est la procédure la plus commune [14]. Des logiciels sont disponibles pour effectuer cette tâche efficacement, voir par exemple [80].

L'accordabilité du système permet de sélectionner les raies d'absorption pour lesquelles l'épaisseur optique est petite pour un produit concentration et distance ( $CL_j$ ) donné. Dans ce cas, l'eq. (7) peut être utilisée et la plage dynamique des concentrations mesurables est augmentée. La sensibilité et par la suite la limite de détection est déterminée par le bruit plancher du spectre d'absorption (e.g. 0.5 % pour un moyennage de 1000 impulsions, à 3.3 µm et une réflexion coopérative, voir section 3.3.4). Néanmoins, il n'est pas toujours possible de procéder ainsi. Les spectres mesurés incluent souvent des raies d'absorption fortes de molécules interférentes telles que la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone. Cette problématique est fréquente dans la spectroscopie d'absorption à large bande dans le MWIR [29]. Des absorptions mesurées comme faibles peuvent être le résultat d'une épaisseur

optique élevée si la résolution spectrale du système est large lorsque comparée à la largeur de raie moléculaire. En d'autres mots, la mesure atténue le creux d'absorption réel dans le spectre lumineux. Dans [14], ce cas est décrit comme ''absorbant fort à basse résolution spectrale''. Sous ces conditions, les Eqs. (6) et (7) sous-estiment la valeur de  $CL_j$ . Le lien entre l'absorbance et  $CL_j$  est non linéaire. À titre d'exemple, la fig. 35 présente le spectre de transmission pour la vapeur d'eau à 3.3 µm calculé de façon exacte ( $T(\lambda)$ , eq. (5)) et en utilisant l'hypothèse linéaire (eq. (6)), i.e.,  $T_{approx} = \exp[-\sum_j CL_j \cdot \sigma_j(\lambda) \otimes I(\lambda)]$ . Pour une valeur de CL de 30 000 ppm·m les deux résultats sont identiques. Lorsque la valeur de CL augmente à 300 000 ppm·m, un niveau qui correspond à ~ 43.5 % d'humidité relative (à 1013.25 hPa et 25°C) sur un parcours atmosphérique de 22m,  $T_{approx}$  produit un résultat erroné.



**Figure 35.** Modélisation de la transmission à travers 300 000 et 30 000 ppm·m de H<sub>2</sub>O autour de 3.3  $\mu$ m. La transmission (*T*) est calculée avec l'eq. (5) et *T<sub>approx</sub>* avec l'eq. (6). La résolution est de 1.7 nm. Les courbes *T<sub>approx</sub>*(30 000 ppm·m) et *T*(30 000 ppm·m) se confondent.

La fig. 36 présente l'erreur associée à la régression à partir de l'eq. (6) pour différentes concentrations de vapeur d'eau (à 3.3  $\mu$ m, pour un spectre de 85 nm et une résolution de 1.7 nm). L'erreur devient supérieure à -10 % à partir d'une concentration de 80 000 ppm·m.



**Figure 36.** Erreur associée à la régression à partir de l'eq. (6) pour différentes concentrations de vapeur d'eau. La régression, méthode des moindres carrés, a été appliquée sur des spectres simulés à partir de l'eq. (5), sur une plage de 3275 à 3360 nm avec une résolution de 1.7 nm.

Pour un seul absorbant fort, il est possible de compenser l'erreur en ayant préalablement calculé une table de correspondance. Une connaissance a priori de la concentration à mesurer est nécessaire [14]. Cette alternative n'est pas pratique. En général, les applications demandent à ce que l'algorithme puisse extraire simultanément les concentrations de plusieurs gaz à partir d'un spectre qui présente de fortes absorptions. La quantification du terme ''forte'' dépend du spectre du gaz (forme et section efficace), de l'intervalle spectral utilisé par l'algorithme et de la résolution de l'instrument.

Finalement, il est aussi important que la méthode de résolution inclut les coefficients d'étalonnage (P,  $s_j$  et  $t_j$ ) afin d'assurer un meilleur ajustement entre la mesure et le modèle [14, 81]. La prochaine section présente un nouvel algorithme permettant d'accomplir cette tâche. Mais d'abord, on résume les algorithmes utilisés dans les références présentées au tableau 1 (voir section 1.2).

## 5.2 Algorithmes

Adler et al [24] et Castillo et al [36] ont utilisé une régression par la méthode des moindres carrés avec l'eq. (7). Malgré la présence de signatures d'absorption de plus de 90 %

(transmission inférieure à 10 %), la résolution très fine du peigne MWIR et celle des QCL permettent d'utiliser les hypothèses derrière l'eq. (7). Ruxton et al [33] ont aussi utilisé l'eq. (7) pour extraire les concentrations d'un mélange de composés organiques volatiles. Il en résulte d'importantes erreurs, compte tenu de la faible résolution de l'OPO accordable (5 nm).

Récemment, Dobroc et al [29] ont proposé une solution pour le cas des ''absorbants forts à faible résolution''. L'algorithme itératif suit la logique suivante: on calcule d'abord  $CL_j^l$  (paramètre CL pour le gaz # *j* à la première itération) en ajustant le spectre expérimental à partir de l'eq. (6). Le résidu #1 est calculé en divisant l'eq. (5), évaluée à  $CL_j^l$ , par le spectre expérimental. Ensuite,  $CL_j^2$  est extrait en ajustant l'eq. (6) sur le résidu #1. Le résidu #2 est calculé en divisant l'eq. (5), évaluée à  $CL_j^l + CL_j^2$ , par le spectre expérimental. Itérativement, la procédure est répétée jusqu'à l'atteinte du critère de convergence. Puisque l'algorithme n'inclut pas les paramètres d'étalonnage (*P*,  $t_j$ ,  $s_j$ ), chaque régression demande simplement la résolution d'un système d'équations linéaires par des opérations matricielles. La procédure par un filtrage dans l'espace de Fourier. Dans [29], l'algorithme est validé en utilisant des spectres d'absorption avec un supercontinuum SWIR.

Tel qu'affirmé à la section précédente, il est nécessaire d'inclure les paramètres d'étalonnage  $(P, t_j, \text{et } s_j)$  dans la régression [81]. Cela permet d'alléger les contraintes sur la caractérisation spectrale de l'instrument. Il est aussi nécessaire d'analyser les spectres incluant de fortes signatures d'absorption à partir d'une résolution modérée. Afin de répondre à ces deux contraintes, nous avons développé une procédure en deux étapes. Premièrement, l'eq. (7) est ajustée sur le spectre expérimental de transmission  $(T_{exp})$ . Cette étape utilise le logiciel DOASIS [80]. Cette opération permet d'extraire les valeurs de P,  $t_j$  et  $s_j$ , qui sont utilisées pour corriger le spectre expérimental de transmission  $(T_{exp\_corr})$ . À l'étape 2, l'eq. (5) est ajustée sur le spectre corrigé  $(T_{exp\_corr})$ . Cette étape est effectuée avec un algorithme des moindres-carrés sous Matlab. Les concentrations trouvées à l'étape 1 sont utilisées comme valeurs d'entrée pour l'étape 2 afin de permettre une convergence rapide. L'algorithme permet la mesure de plusieurs gaz sélectionnés par l'utilisateur. La fig. 37 présente un

diagramme des étapes de l'algorithme. L'utilisation de DOASIS facilite le travail via des fonctionnalités pratiques intégrées au logiciel.



Figure 37. Représentation graphique de l'algorithme. La figure est reproduite à partir de [3].

# 5.3 Conclusion

La faible résolution spectrale de notre système combinée à la présence d'absorbants forts dans les spectres à large bande MWIR impliquent la présence de signatures non linéaires dans ces spectres d'absorption. Les hypothèses des algorithmes DOAS standards ne peuvent pas être utilisées. Nous avons présenté un nouvel algorithme permettant de répondre à la problématique. L'algorithme inclut aussi des paramètres d'étalonnage (P,  $t_j$ , et  $s_j$ ) permettant une meilleure correspondance entre le modèle et le spectre mesuré. Cette méthode sera validée avec les expériences de mesures de gaz présentées au prochain chapitre.

# 6 Mesure de gaz : preuve de concept

Dans les derniers chapitres, nous avons présenté le schéma de montage, la procédure de mesure et l'algorithme pour extraire les concentrations. Ce chapitre présente la preuve de concept du système. Les objectifs sont multiples: 1) démontrer la détection simultanée de plusieurs gaz; 2) démontrer la détection dans différentes régions spectrales d'intérêt dans le SWIR et le MWIR; 3) mesurer les performances du système (entre autres, les limites de détection); 4) valider l'algorithme de calcul et 5) identifier les points à corriger afin de permettre un éventuel déploiement sur le terrain.

## 6.1 Mesures sans référence

L'algorithme présenté à la section 5.2 nécessite d'abord la détermination du spectre de transmission expérimental. Celui-ci peut être calculé en divisant le spectre obtenu après propagation dans l'atmosphère avec le spectre de la source. Cependant, il est techniquement difficile de mesurer simultanément le spectre de référence et le spectre atmosphérique de chaque impulsion. Si le spectre de la source est monotone (varie lentement en amplitude dans le domaine spectral) par rapport aux signatures étroites des raies d'absorption, il est possible de calculer la transmission par l'application d'un filtre passe-bas. Cette méthode idéale est utilisée dans l'UV-DOAS [14]. Cette approche a aussi l'avantage de filtrer les signatures qui varient très lentement dans le domaine spectral. Cette problématique est identifiée dans [29]. Ensuite, les concentrations des différents gaz présents dans le spectre de transmission peuvent être extraites en utilisant l'algorithme illustré à la fig. 37. En utilisant cette approche, le système est utilisé pour mesurer la concentration moyenne des gaz le long d'un trajet atmosphérique de 22 m (voir fig. 30 pour schéma du montage). Les molécules mesurées sont 1) CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O autour de 2  $\mu$ m et 2) CH<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O autour de 3.3  $\mu$ m.

La fig. 38 montre la détection simultanée de CO<sub>2</sub> et d'H<sub>2</sub>O autour de 2  $\mu$ m sur un spectre de 75 nm. La résolution de la mesure est de ~ 0.7 nm. Le spectre détecté est une moyenne sur 1000 impulsions prise en 6.7 secondes. La fig. 38a présente le spectre de transmission

expérimental corrigé ( $T_{exp\_corr}$ ) et le résultat de la régression. La fig. 38b présente les régressions individuelles des différentes molécules. La fig. 38c montre le résidu, i.e., la différence entre  $T_{exp\_corr}$  et la régression (*total fit*). L'algorithme trouve respectivement des concentrations de  $2.5 \pm 0.3 \times 10^4$  ppm·m et  $2.9 \pm 0.2 \times 10^5$  ppm·m pour le CO<sub>2</sub> et l'H<sub>2</sub>0. Les erreurs sur les concentrations sont extraites à partir de 1) la matrice de covariance de l'algorithme des moindres carrés et 2) l'écart type du résidu (*SD* = 0.026, *SD* pour *Standard Deviation*) [14]. Les bandes d'absorption de l'eau sont la conséquence de la branche P de la somme des modes fondamentaux d'élongation et de déformation (~ 1885 + 3585 = 5470 cm<sup>-1</sup>). La spectroscopie du CO<sub>2</sub> sera discutée plus bas.

Le résultat de l'algorithme correspond à la mesure de l'humidité relative prise avec un hygromètre  $(3.10 \pm 0.05 \times 10^5 \text{ ppm} \cdot \text{m}, \text{ i.e., } 45 \%$  d'humidité relative). Nous n'avons pas procédé à des mesures in situ pour le CO<sub>2</sub>. La valeur standard pour la concentration atmosphérique de CO<sub>2</sub> est de 400 ppm, ce qui représente  $8.8 \times 10^3$  ppm ·m pour un parcours de 22 m. Notre mesure résulte en une concentration 2.8 fois plus élevée. Une concentration de CO<sub>2</sub> supérieure à la normale était possible dans le laboratoire compte-tenu des nombreuses purges de CO<sub>2</sub> dans l'air effectuées lors de mesures précédentes (voir section 4.2). À 2.05 µm, sur un parcours de 22 m, une concentration de 400 ppm de CO<sub>2</sub> signifient un creux d'absorption de 2 % (pour une résolution de 0.7 nm). Cette mesure serait difficile à accomplir compte tenu de l'écart type du résidu (*SD* = 2.6 %). Celui-ci nous renseigne sur le niveau de bruit de la mesure. Celui-ci est élevé et explique aussi partiellement l'écart avec la mesure de CO<sub>2</sub> standard.



**Figure 38.** Mesure du CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O atmosphériques sans correction par le spectre émis: (a) Spectre expérimental de transmission ( $T_{exp\_corr}$ ) et régression (*fit*); (b) régression décomposée en ses composantes CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O; (c) résidu (SD = 0.026). Le spectre détecté est une moyenne sur 1000 impulsions. La figure est reproduite à partir de [3].



**Figure 39.** Mesure de CH<sub>4</sub> et d'H<sub>2</sub>O dans l'air faite sans référence: (a) Spectre expérimental de transmission ( $T_{exp\_corr}$ ) et régression; (b) Régression décomposée en ses composantes; (c) Résidu (SD = 0.04). Le spectre détecté est une moyenne sur 3000 impulsions. La figure est reproduite à partir de [3].

Afin de démontrer l'accordabilité rapide du système, l'OPG est accordé à 3.3 µm afin de mesurer simultanément le méthane et le vapeur d'eau atmosphérique. La fig. 39 montre le spectre expérimental de transmission ( $T_{exp\_corr}$ ) et le fit de l'algorithme. Le spectre expérimental est le résultat d'une moyenne sur 3000 impulsions. La résolution spectrale n'a pas été mesurée à 3.3 µm. Pour différentes résolutions, l'algorithme est répété de manière à minimiser la taille de l'écart-type du résidu. L'écart type minimal (SD = 0,04) est obtenu pour une résolution de 1.7 nm. Cette valeur est compatible avec la largeur (FWHM) des raies d'absorption uniques du mode fondamental de la vibration d'élongation du CH<sub>4</sub> dans les spectres mesurés (voir fig. 41a à 3346 et 3357 nm). Les concentrations mesurées sont de  $3.1 \pm 0.1 \times 10^5$  ppm·m pour H<sub>2</sub>0 et 89 ± 8 ppm·m pour le CH<sub>4</sub>. Par rapport à l'hygromètre, la

concentration de vapeur d'eau est correcte. La concentration de méthane est deux fois plus élevée que la valeur atmosphérique normale (2 ppm sur 22 m = 44 ppm·m). Encore une fois, cela est probablement la conséquence de 1) plusieurs purges de méthane dans l'air du laboratoire avant la mesure et 2) du niveau de bruit élevé. Les signatures de H<sub>2</sub>O sont dues à la branche P du mode d'étirement fondamental. Il est possible de distinguer l'absorption du méthane à 3250 nm et 3313 nm. Afin de valider cette interprétation, du CH<sub>4</sub> a été ajouté dans une cellule vide, insérée dans le parcours optique, et conduit à des absorptions plus élevées à ces longueurs d'onde.

Ces deux premières mesures expliquent bien l'importance de l'interférence de l'eau lors de la mesure d'un spectre large dans l'infrarouge moyen (MWIR) à basse résolution. La principale source d'erreur de ces deux premières mesures repose sur l'hypothèse initiale erronée: le spectre d'émission de la source est monotone par rapport à la largeur des raies d'absorption. En effet, le spectre de l'OPG (voir fig. 23a) présente des composantes de hautes fréquences. Elles sont le résultat de la pompe MLM et de l'amplification débutant sur du bruit. Il n'est pas possible de filtrer uniquement les signatures d'absorption dans le spectre de l'OPG. Ainsi, les caractéristiques de hautes fréquences de l'OPG, qui ne sont pas filtrées, constituent une source de bruit structurée et visible sur les graphiques du résidu. Ces structures peuvent être interprétées à tort comme des absorptions et conduisent à une valeur plus élevée de la limite de détection.

## 6.2 Mesures avec référence

Afin d'éliminer l'effet des hautes fréquences du spectre de l'OPG, la procédure de mesure peut inclure une référence faite simplement. Une cellule de gaz est d'abord introduite dans le trajet optique. Un premier spectre moyenné, appelé référence, est enregistré avec la cellule vide. Un second spectre, appelé spectre de mesure ou atmosphérique, est enregistré avec la cellule remplie avec le gaz d'intérêt. De cette manière, la référence est effectuée avec le même chemin optique que la mesure. La transmission est calculée comme le rapport entre le spectre de mesure et celui de référence. On élimine ainsi le bruit provenant des composantes de hautes fréquences de l'OPG. Les deux spectres doivent être acquis dans un court laps de temps (minutes) afin de réduire les effets de dérive. Ces mesures vont permettre d'évaluer les limites de détection du système en diminuant substantiellement le niveau de bruit.

Dans la première expérience, la cellule (longueur de 10 cm) est successivement remplie de 203 et 32.9 mbar de CO<sub>2</sub>. Ces pressions correspondent à respectivement 20036 et 3247 ppm·m s'il y avait le même nombre de molécules dans une pression atmosphérique normale (1 bar). La mesure est effectuée autour de 2  $\mu$ m. Les conditions de mesure sont : résolution ~ 0.7 nm et spectres moyennés sur 1000 impulsions. Les résultats sont présentés à la fig. 40a. Les spectres montrent clairement les branches P et R des combinaisons v<sub>1</sub> + 2v<sub>2</sub> + v<sub>3</sub> et 2v<sub>1</sub> + v<sub>3</sub> (modes de vibrations fondamentales du CO<sub>2</sub>, v<sub>1</sub> = 1388.2 cm<sup>-1</sup>, v<sub>2</sub> = 667.4 cm<sup>-1</sup>, v<sub>3</sub> = 2349 cm<sup>-1</sup>). L'algorithme trouve une valeur de *CL* de 16 285 ± 158 ppm·m pour la cellule remplie à 20036 ppm·m. La raison de l'écart n'est pas comprise. Dans le second cas, la régression calcule correctement une valeur de *CL* de 3178 ± 140 ppm·m. Les résidus montrent une structure minimale comparée aux résultats obtenus sans spectre de référence (voir fig. 38c). L'écart type est d'environ 0.0016. L'incertitude absolue sur la mesure est constante pour différentes concentrations de CO<sub>2</sub>. La limite de détection est environ 158 ppm·m à la pression atmosphérique, la forme des spectres étant due principalement à la fonction d'appareil du spectrographe.



**Figure 40.** Mesure du CO<sub>2</sub> dans une cellule avec référence. (a) 203 mbar ou 20 036 ppm·m, (b) résidu pour 203 mbar (SD = 0.0016), (c) 32.9 mbar ou 3247 ppm·m, (d) résidu pour 32.9 mbar (SD = 0.0015). Les spectres détectés sont une moyenne sur 1000 impulsions. La figure est reproduite à partir de [3].

La seconde expérience mesure du méthane à 3.3  $\mu$ m. Dans ce cas, les mesures ont été effectuées dans l'air du laboratoire. Une référence est d'abord effectuée sans aucune addition de méthane dans l'air. Puis, du CH<sub>4</sub> est libéré dans l'air et des spectres moyennés (moyenne de 1000) sont enregistrés permettant d'analyser la diminution de méthane en fonction du temps. La mesure implique seulement le méthane ajouté dans l'air puisque le spectre de référence inclut les signatures du méthane et de la vapeur d'eau atmosphériques. Dans la fig. 41, on montre deux mesures espacées de 190 secondes. Pour la première mesure, l'algorithme calcule une concentration de 51 ± 1 ppm·m de plus que la concentration de base. Après 190 secondes, la concentration est réduite à  $12 \pm 1$  ppm·m.
Dans les limites de l'expérience, la limite de détection est donc de 1 ppm·m. Dans ce cas, le niveau de bruit est à 0.5% (voir section 3.3.4, fig. 28, moyenne de m = 1000), ce qui signifie que le rapport signal à bruit (ou SNR) est de 200. La mesure du bruit correspond bien à l'écart type des résidus: 0.38 et 0.47% dans la fig. 41. La mesure du méthane avec seulement deux longueurs d'onde (ON et OFF), sur une seule raie, serait limitée par trois fois ce niveau de bruit (~ 1.5%). Au maximum de la branche Q à ~ 3.314 µm, cela représente une limite de détection de 7.5 ppm·m (absorption = 1.5% à 3.314 µm). Notre analyse montre que la limite de détection de notre mesure à large bande (75 nm), incluant plusieurs pics d'absorption du méthane, est de 1 ppm·m. Comme dans la référence [24], la mesure sur de multiples pics conduit à des limites de détection inférieures. Le rapport limite de détection sur un seul pic sur limite de détection multi-pic est de 7.5 pour le méthane. Pour le CO<sub>2</sub> à la fig. 38, le rapport augmente à 12.3 puisque, sous la bande mesurée, l'absorption intégrée du CO<sub>2</sub> est supérieure à celle du CH<sub>4</sub> [24].

La fig. 41a montre clairement la branche Q et une partie des branches P et R du mode de vibration d'étirement de la molécule de méthane. Les graphiques du résidu (voir fig. 41b-d) montrent certaines structures, notamment autour de la branche Q. Elles sont dues à un mauvais étalonnage du spectrographe, les paramètres de l'étalonnage dans la régression  $s_j$ ,  $t_j$  ne pouvant pas compenser. Il est important de très bien caractériser, en fonction de la longueur d'onde, la fonction de transfert de l'instrument de mesure [14, 82]. Cet étalonnage devra être fait dans le futur.



**Figure 41.** (a) Mesure du CH<sub>4</sub> relâché dans l'air au temps 0 sec (avec référence). L'algorithme utilise une résolution de 1.7 nm. (b) Résidu pour 0 sec (SD = 0.0047). (c) Mesure au temps 190 sec. (d) Résidu pour 190 sec, (SD = 0.0038). Les spectres détectés sont une moyenne sur 1000 impulsions. La figure est reproduite à partir de [3].

# 6.3 Performances du système

Le tableau 4 est une copie du tableau 1 présenté à la section 1.2.1.4. Nous incluons maintenant les propriétés de notre système. Le niveau de bruit minimal (0.15% à 2  $\mu$ m et 0.5% à 3.3  $\mu$ m) et la limite de détection (1 ppm·m pour le CH<sub>4</sub>) sont comparables aux autres systèmes DOAS opérant dans le MWIR. Ce dernier commentaire est à titre indicatif seulement puisqu'il est difficile de comparer les limites de détection compte tenu des conditions de mesure différentes entre les expériences. La densité d'énergie de chaque impulsion est plusieurs centaines de fois supérieure à celle d'un supercontinuum MWIR [30]. L'énergie par impulsion est également plus élevée par rapport aux expériences TLAS [33,

35]. Chaque système possède ses avantages et inconvénients. Notre système a l'avantage de générer et détecter chaque longueur d'onde en même temps pour chaque impulsion et d'optimiser la densité spectrale d'énergie. Nous croyons que cette approche est bien adaptée pour effectuer des mesures de gaz utilisant des cibles non coopératives sur quelques centaines de mètres avec du crénelage temporel.

	FTS	TLAS		SAS	QCL	Notre système	
Laser	Peigne fs	OPO	OPO +OPA	SC	QCL (DFB)	OPG	
λ (μm)	2.8-4.8	2.5-3.7	3.3-3.7	2.53	7.69-7.71	1.475 - 3.8	
Largeur du spectre (nm)	~100-330	~5	~ 0.004	>4000	~0.05	~10-200	
Cadence (kHz)	136000	150	2	2000	20	4 <sup>3</sup>	0.15 <sup>3</sup>
Puissance (mW)	>1000	80	4-10	4000	0.6	70	2.25
Énergie (µJ)	0.007	0.5	2-5	2	0.03	17.5	15
Densité d'énergie (µJ/nm)	7x10 <sup>-8</sup> /line	-	-	$5  \mathrm{x10^{-4}}$	-	0.175 <sup>3</sup>	
Détection	Cellule, FTIR, MCT	Cellule, MCT	Télescope MCT, boxcar	Cibles solides, Télescope, Mono- chromator, InSb, lock- in	Cellule, MCT	Télescope, spectrographe, APD-MCT caméra	
Résolution (nm)	~0.007	~5	~ 0.004	~10	0.05	~1.7 3	
Niveau de bruit (%) <sup>2</sup>	0.51	>11	-	0.16	0.5 <sup>1</sup>	0.5 3	
Limite de détection CH <sub>4</sub> (ppm·m)	0.18	-	6 <sup>1</sup>	-	1.5	1 3	
Temps de mesure (s)	< 30	-	-	150	1x10 <sup>-3</sup>	6.7 <sup>3</sup>	
Référence	[24]	[33]	[35]	[30]	[36]		

**Tableau 4.** Comparaison de différents systèmes spectroscopiques MWIR. <sup>1</sup>Valeur estimée. <sup>2</sup>Le bruit est égal à un écart type. <sup>3</sup>A 3.3  $\mu$ m

Compte tenu de sa nature, l'algorithme développé dans cette thèse est utile lorsque le spectre de transmission inclut des absorptions profondes, larges et nombreuses. C'est le cas pour les mesures de la vapeur d'eau atmosphérique. Si on utilise seulement l'étape #1 de l'algorithme, i.e., un ajustement avec l'eq. (7), le calcul sous-estime la concentration de vapeur d'eau à 3.3  $\mu$ m de ~ 38 % (fig. 39). Dans le cas de la vapeur d'eau à 2  $\mu$ m, l'erreur est de ~ - 60 % (fig. 38). Dans le cas du méthane, la fig. 41a présente un spectre avec une absorption centrale large atteignant au maximum ~ 9 %. L'ajustement avec l'eq. (7) conduit à une erreur de

~ 7 %. Dans le cas du CO<sub>2</sub>, la fig. 40a présente un spectre d'absorption atteignant à peine 4 %. L'ajustement avec l'eq. (7) conduit à une erreur de ~ 20 % à cause de la largeur des signatures (bandes) d'absorption. Dans les cas des fig. 41b-40b, les absorptions intégrées sont faibles et les erreurs sont négligeables (< 5 %). Le calcul de l'absorption intégrée pourrait être une métrique à envisager afin de déterminer quel algorithme utiliser. Les travaux à venir incluent aussi le développement d'algorithmes génétiques permettant d'inclure les paramètres *P*, *s<sub>j</sub>* et *t<sub>j</sub>* directement à l'eq. (5). Aussi, l'algorithme devra opérer à partir d'une base de données de sections efficaces sans connaissance préalable des molécules à mesurer.

L'objectif des expériences exposées dans cette section était de faire la preuve de concept du système: source accordable et large bande, détection large bande avec crénelage temporel et algorithme pour extraire les concentrations à partir d'un spectre de transmission. Nous avons simplifié l'expérience en utilisant un miroir à l'extrémité du parcours atmosphérique. L'autre inconvénient de l'expérience est l'impossibilité de prendre une mesure de référence simultanément à la mesure atmosphérique. La prochaine section présente les modifications à apporter au système afin d'intégrer une référence et augmenter la sensibilité. L'objectif est de permettre l'utilisation du système à l'extérieur avec des cibles non coopératives situées à 100 m.

# 6.4 Modifications futures

### 6.4.1 Spectre de référence

Une mesure avec la prise d'un spectre de référence améliore la sensibilité puisque le spectre de l'OPG n'est pas monotone par rapport à la majorité des raies d'absorption. Lors des mesures avec spectre de référence (voir section 6.2), le problème a été contourné en prenant le spectre de référence sur le même chemin optique que la mesure avec gaz. Dans la plupart des applications, il n'est pas possible de procéder ainsi. Pour mesurer un spectre de référence, le faisceau émis doit être échantillonné avant la transmission dans l'atmosphère et être imagé sur la fente d'entrée du spectrographe. Par exemple, une partie du faisceau pourrait être récupérée avec une lame séparatrice, une lentille et une fibre optique IR. Une seconde lame permettrait la réinsertion du faisceau avant le miroir parabolique, situé à l'entrée du spectrographe. Compte tenu des variations de contenu spectral en fonction de la position

angulaire dans le faisceau émis, il est important que les spectres de référence et atmosphérique inclus le même contenu angulaire (voir section 3.4.2).

Une autre source de bruit à diminuer est l'instabilité impulsion à impulsion. Nous avons réduit ce bruit en moyennant les impulsions. Afin de l'éliminer complètement, il serait possible de mesurer simultanément les spectres de référence et atmosphérique de chaque impulsion à l'aide d'un spectrographe imageant. À la section 3.4.4, nous avons proposé une seconde alternative. En effet, les simulations montrent qu'une pompe hautement multimode permettrait d'obtenir un OPG ayant un spectre monotone et stable d'une impulsion à l'autre. Finalement, la fig. 42 présente un diagramme résumant les besoins au niveau de la référence.



Figure 42. Diagramme de décision pour l'établissement d'une référence.

### 6.4.2 Rapport signal sur bruit

La fig. 43 présente l'estimé du rapport signal sur bruit ou SNR en fonction de la distance. Pour tracer ce graphique, nous avons utilisé les mesures expérimentales de la fig. 28b (conditions de mesure: moyennage sur 300 impulsions, distance = 11 m, gain MCT =1, réflexion sur un miroir). Le SNR est calculé comme  $1/\sigma(n)$  et est multiplié par un facteur  $(1000/300)^{0.5}$  afin d'obtenir le résultat pour un moyennage de 1000 impulsions. La distance est calculée en utilisant une dégradation du niveau de signal proportionnelle à l'inverse de la distance au carré et en considérant une cible lambertienne ayant une réflectivité de 10 %:

 $distance = \sqrt{\frac{0.1*cst}{\pi * signal}}$ . La variable *signal* est le voltage de détection de la fig. 43 et *cst* la constante de calibration : cst =  $(11 \text{ m})^2 \cdot 200 \text{ mV}$ .



**Figure 43.** Prédiction du SNR en fonction de la distance ( $SNR_{dB} = 10log(SNR_{lineaire})$ ). Conditions : moyennage dur 1000 impulsions, gain MCT = 1, cible lambertienne ayant une réflectivité de 10 %.

À des distances inférieures à 3 m, la fig. 43 montre que le bruit est dominé par la source; le SNR est alors indépendant de la distance (SNR<sub>dB</sub> ~ 23 dB). À partir de ~10 m, le bruit est dominé par la caméra et le SNR<sub>dB</sub> est inversement proportionnel au carré de la distance. Dans ce régime, la réduction du bruit de la caméra serait bénéfique. Cette tâche est complexe. Il est souhaitable d'opérer dans le régime de bruit déterminé par l'OPG.Dans ces conditions, il n'est pas possible de faire une mesure à 100 m à partir d'une cible non coopérative. Pour améliorer le SNR, il y a quelques stratégies à considérer:

1) Augmenter la transmission du système : En éliminant les densités neutres (atténuation variable en fonction de la longueur d'onde), il est possible d'améliorer la transmission de 67 X pour les mesures de CO<sub>2</sub> à 2  $\mu$ m et de 15 X pour les mesures de CH<sub>4</sub> à 3.3  $\mu$ m. Ensuite le couplage dans le spectrographe est d'environ 3.2 % afin de maximiser la résolution (voir section 4.1). En réduisant la taille de l'image du spot laser sur la cible sur la fente d'entrée du spectrographe, il serait possible d'augmenter la transmission du spectrographe d'un

facteur 31 X tout en conservant la résolution spectrale. Ceci est possible en sélectionnant les focales des télescopes d'émission et de réception. Cette modification est complexe à mettre en place.

2) Le contrôle du gain de la caméra MCT-APD : Le gain peut être augmenté jusqu'à 100 sans impact significatif sur le bruit de détection [79]. Ainsi on peut augmenter la plage dynamique de détection sur laquelle le bruit de détection n'est pas le bruit dominant.

3) L'utilisation d'une source d'injection: À la section 3.3.1, on montre que la source d'injection augmente la densité d'énergie de 15 % et diminue le bruit de > 20 % (voir section 3.3.4). L'impact de l'injection est faible par rapport aux deux premiers points.

4) À la section 3.4.3, nous avons discuté des différentes possibilités pour augmenter l'énergie de l'OPG jusqu'à plusieurs mJ. Cette modification est complexe à implémenter.

En mettant en place les trois premières modifications, il est possible d'augmenter le signal de retour (à 3.3 µm) d'un facteur  $15 \times 100 \times 31 \times 1.15 = 5.3 \times 10^4$ . Ainsi, la courbe de la fig. 43 se déplace horizontalement d'un facteur  $(5.3 \times 10^4)^{0.5}$ . Ces modifications permettraient de faire une mesure dans des conditions réelles (à 100 m avec une cible non-coopérative) avec un SNR de 23 dB (moyennage = 1000 impulsions, à 3.3 µm).

Quelle est l'augmentation de l'énergie de sortie de l'OPG requise pour utiliser la rétrodiffusion des aérosols comme signal de retour ? Pour une géométrie donnée, le rapport entre le signal de retour d'une cible topographique vs la rétrodiffusion sur les aérosols est donnée par  $\sim \frac{2r}{\pi c t \beta}$ , où *r* est la réflectivité d'une cible topographique lambertienne, *c* est la vitesse de la lumière et *t* est la durée d'une cellule de mesure (*bin*) [83].  $\beta$  est le coefficient de rétrodiffusion volumique des aérosols [1/m/sr]; sa valeur dépend de la longueur d'onde, du type, de la taille et de la concentration des aérosols. Le coefficient est évalué à 6000 dans le cas suivant: *r* = 10 %, *t* = 50 ns (i.e., une cellule de 7.5m) et  $\beta$  = 6.6 X 10<sup>-7</sup> 1/m/sr. Le calcul utilise la théorie de Mie et les paramètres suivants:  $\lambda$  = 3 µm, type d'aérosols = sphères de quartz, diamètre des aérosols = 5 µm, concentration = 30 µg/m3 dans l'air. Ces paramètres sont des propriétés raisonnables pour des aérosols (catégorie PM10) trouvés dans un air propre. À noter, la valeur de  $\beta$  varie grandement en fonction de la distribution et de la taille

des aérosols. Finalement, l'ajout du facteur  $(5.3 \times 10^4 / 6000)^{0.5}$  à l'axe horizontal de la fig. 43 conduit à un SNR de ~ 10 dB pour une mesure à 100 m. Afin d'effectuer la mesure dans le régime de bruit limité par l'OPG (avec le même nombre d'impulsions), l'énergie par impulsion doit ainsi être augmentée d'un facteur supérieur à 100.

### 6.4.3 Sensibilité et limite de détection

Dans les conditions présentées à la section 6.2, la sensibilité est de 0.45 % (à 2  $\mu$ m, avec référence) et 1.5 % (à 3.3  $\mu$ m, avec référence). Afin d'élargir le champ d'applications, la sensibilité doit idéalement être inférieure à 0.01 %. Ce niveau de sensibilité est nécessaire pour certains gaz présents à l'état de traces et ayant de faibles sections efficaces d'absorption. Sinon, il permet aussi une détection plus rapide ou à plus grande distance ou avec moins de puissance optique.

Si on n'améliore pas la sensibilité, on peut quand même améliorer la limite de détection. Un moyen simple pour améliorer la limite de détection est d'augmenter la résolution du spectrographe. La résolution actuelle du système est d'environ 1.7 nm à 3.3 µm. Elle est suffisante pour la preuve de concept, mais devra être améliorée pour les applications. Pour ce faire, le spectrographe doit inclure un réseau ayant un pas plus fin ou une focale plus grande. Pour notre spectrographe, il n'était pas possible d'obtenir un réseau pris sur étagère adéquat (ou COTS, *commercial off-the-shelf*). À noter, augmenter la finesse du pas implique une diminution de l'intervalle spectral détecté. Dans le cas où le bruit d'intensité de la source est dominant, l'utilisation d'un spectrographe à transformée de Fourier n'est pas souhaitable puisqu'il offre un rapport signal à bruit inférieur à un spectrographe à réseau à cause de l'effet multiplex [82]. Par contre, un spectrographe à transformée de Fourier statique serait à considérer pour enregistrer simultanément tous les différences de chemin optique de l'interféromètre et toutes les longueurs d'onde à haute résolution [84]. Peu importe le spectromètre utilisé, il est important de caractériser correctement la fonction de transfert de l'instrument en fonction de la longueur d'onde.

La mesure devrait idéalement être effectuée en un temps court. Cela permet d'imager une scène en balayant le faisceau. Le nombre d'impulsions moyennées est présentement limité

par le taux de lecture de la caméra, soit 150 Hz (maximum de 375 Hz avec une carte d'acquisition à 10 MS/s). Dans le futur, nous souhaitons essayer de moduler rapidement le gain de la caméra pour ouvrir et éteindre la matrice à une cadence élevée (comme pour l'intensificateur d'une ICCD). La lecture des pixels serait effectuée à 150 Hz, chaque lecture impliquant l'intégration des charges sur de multiples ouvertures. Le laser pourrait ainsi opérer à plusieurs kHz. Pour une période de mesure donnée, il serait possible d'augmenter le nombre d'impulsions moyennées et ainsi augmenter la sensibilité en diminuant le bruit.

# 6.5 Conclusion

L'objectif des expériences exposées dans ce chapitre était de faire la preuve de concept du système: source laser accordable et large bande, détection large bande avec crénelage temporel et algorithme pour extraire les concentrations à partir d'un spectre de transmission. L'expérience démontre que notre système permet de détecter plusieurs gaz à partir d'un spectre MWIR modérément large. Il est aussi possible de facilement sélectionner différentes régions présentant des signatures intéressantes. L'expérience a permis la mesure des concentrations atmosphériques de CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O autour de 2 µm, et H<sub>2</sub>O et CH<sub>4</sub> autour de 3.3 µm. Ces mesures ont été effectuées sans prendre de spectre de référence. Dans le contexte de l'expérience, les limites de détection sont respectivement de  $\sim 8,3000$  et 10 000 ppm·m pour le CH<sub>4</sub> à 3.3 µm, CO<sub>2</sub> à 2 µm et H<sub>2</sub>O à 3 µm. Les mesures individuelles, avec spectre de référence, ont montré des limites de détection beaucoup plus faibles de 1 ppm m pour le CH<sub>4</sub> et 158 ppm m pour le CO<sub>2</sub>. L'algorithme de détection de gaz a été validé pour des spectres incluant des fortes absorptions (absorption > 5 %). Enfin, le système a été comparé à d'autres systèmes MWIR. Nous avons proposé plusieurs modifications afin que le système puisse effectuer une mesure utile à une distance de 100 m, à partir d'une cible non coopérative (réflectivité de 10 %, lambertienne). Ces modifications incluent l'établissement d'un spectre de référence, l'augmentation de l'énergie de l'OPG, l'accroissement de la résolution et l'augmentation de la transmission du spectrographe.

# 7 Perspectives futures

L'objectif de ce dernier chapitre est d'apporter une réflexion sur l'utilisation future du système de télédétection présenté dans cette thèse. Trois domaines d'applications seront présentés: mesure de gaz, mesure de cibles solides et mesure des aérosols.

# 7.1 Mesure de gaz

Le chapitre 6 a présenté les limites de détection pour les molécules de CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et H<sub>2</sub>O dans les limites de l'expérience présentée. À partir du niveau de bruit, il est possible d'estimer la limite de détection pour d'autres gaz. Le système permet la sélection de signatures moléculaires situées entre ~1475 et 3800 nm. Par exemple, il serait possible de détecter le HCl à 3.4  $\mu$ m avec une limite de détection inférieure à 4 ppm·m ou le NO<sub>2</sub> à 3.43  $\mu$ m avec une limite de détection inférieure à 20 ppm·m (dans les mêmes conditions que les mesures au chapitre 6). Les gaz suivants sont aussi détectables avec des limites de détection variables: SO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, NH<sub>3</sub>, HF et les composés organiques volatiles.

Le projet a reçu du financement d'une compagnie opérant dans le transport de gaz naturel. L'objectif était de détecter à distance le NO. Un projet a alors débuté afin d'opérer le système à 5.2  $\mu$ m. Le modèle numérique présenté à la section 2.4.1 a été utilisé afin de prévoir la puissance de sortie d'un OPG-PPLT à 5.2  $\mu$ m. À des longueurs d'onde supérieures à 4.5  $\mu$ m, peu d'information est disponible sur les pertes d'absorption du tantalate de lithium. Le code a permis de valider l'utilisation du LT. La comparaison entre les données expérimentales et numériques a permis d'établir les pertes du LT. L'OPG a été modifié afin d'inclure un PPLT et permettre la détection du NO. Depuis, le système a été testé sur le terrain (voir fig. 44).



**Figure 44.** Photo du prototype, installé dans une remorque, lors de sa première utilisation sur le terrain. La cible n'était pas installée sur cette photo.

# 7.2 Mesure de cible solide

Il existe un intérêt pour la télédétection de cibles solides, telles que la peinture, le bois, les sols contaminés par les hydrocarbures ou les explosifs (e.g. TNT, RDX, PETN et le nitrate de potassium) [30, 85, 86]. L'ajout du MWIR à l'information fournie par le visible et le SWIR permet une détection plus sélective. À cet effet, nous avons voulu tester le potentiel de notre système pour la détection d'explosifs. L'expérience avait comme objectif la détection du TNT provenant d'un ensemble de Non-Hazardous Explosives for Security Training and Testing. Il s'agit de petites quantités d'explosifs intégrées à des billes de silice. Les échantillons sont inertes, ininflammables, insensibles au choc et facilement transportables, tout en conservant la signature chimique unique de l'explosif. L'échantillon utilisé inclut une proportion massique de 1 % de TNT. À 9 m du système, un miroir à 45 degrés dévie le faisceau vers une assiette contenant les billes de silice. Une première mesure de référence est faite avec un échantillon de silice pure, suivi d'une mesure avec la silice incluant le TNT. La fig. 45 présente le spectre de transmission du TNT à 3.3 µm ( i.e., le ratio entre la mesure avec TNT et la référence). Le terme transmission sera utilisé pour faire une analogie avec les mesures de gaz. De façon exacte, il s'agit d'une mesure du spectre de réflexion du solide. Le spectre montre deux signatures très larges dues à la vibration d'étirement du lien C-H dans la molécule du TNT [30]. Est-il possible de déterminer la concentration de TNT à partir de ce spectre de transmission? L'interaction volumique entre les billes de silice et la lumière

inclut de multiples réflexions. Il est difficile d'y associer une longueur d'interaction. Il serait intéressant de comparer le spectre de transmission pour différentes concentrations d'explosifs. L'algorithme de détection développé par [30] détermine ou non la présence d'explosifs, mais ne peut déterminer la concentration. En définitive, cette expérience démontre que le système, sans modification, peut aussi être utilisé pour la mesure de cibles solides.



**Figure 45.** Spectre de transmission du TNT. Le spectre est la combinaison de deux acquisitions d'environ 75 nm de largeur spectrale. Une moyenne mobile a été appliquée ainsi qu'un décalage permettant d'éviter la discontinuité entre les 2 spectres. La résolution de la mesure est d'environ 5 nm. En guise de comparaison, la référence [30] montre une résolution d'environ 10 nm pour le même type de mesure.

### 7.3 Mesure des aérosols

Le système pourrait éventuellement être utilisé pour la caractérisation des aérosols. Par exemple, des nuages d'agents biologiques pourraient être détectés à distance. Dans un compte rendu de conférence [4], nous avons proposé de caractériser les aérosols par la mesure différentielle du signal LIDAR (ou DISC pour *Differential Scattering*) sur une large bande dans le SWIR et le MWIR. A titre d'exemple, la fig. 46 reproduit les sections efficaces relatives de rétrodiffusion de trois bio-aérosols: danois BG, BTk humide et EH-LT. Comme discriminant, nous avons proposé d'utiliser la différence dans les pentes relatives des signaux de retour LIDAR par rapport à la longueur d'onde. Évidemment, cette mesure demande que le système puisse mesurer le signal de retour des aérosols.



**Figure 46**. Sections efficaces de rétrodiffusion de différents bio-aérosols. Les données sont normalisées par rapport à leur valeur à 1.5 µm. Les données brutes proviennent de [87].

# 7.4 Conclusion

Ce chapitre a présenté quelques applications futures pour la mesure de gaz, mais également pour la mesure de cibles solides et la caractérisation des aérosols. Pour ces deux derniers cas, le signal mesuré (bandes d'absorption et variation de la section efficace de rétrodiffusion) varie lentement avec la longueur d'onde (voir figures. 45-46). Une détection large bande est ainsi souhaitée et accessible avec le système présenté dans cette thèse.

Des modifications au système sont requises afin de faire évoluer le prototype vers un système polyvalent et opérable sur le terrain. La section 6.4 a proposé plusieurs modifications à apporter afin de permettre l'utilisation de cibles non coopératives et la rétrodiffusion sur les aérosols.

# Conclusion

L'objectif de cette thèse est de contribuer au développement de nouveaux systèmes de télédétection, permettant de mesurer les concentrations de multiples gaz, grâce à la spectroscopie optique par absorption dans l'infrarouge moyen. Deux applications industrielles nous intéressaient particulièrement : 1) la détection des fuites de méthane dans les installations de gaz naturel et 2) la détection des composés chimiques gazeux dans les panaches industriels. Pour répondre à ces problématiques, un système de télédétection devrait avoir les capacités suivantes: détection sensible sur une large bande (multi-gaz) dans le MWIR, détection à distance sur plus de 100 m à partir d'une cible non coopérative.

Cette thèse a rempli l'objectif principal en réalisant la preuve de concept d'un nouveau système de télédétection multi-gaz opérant dans le MWIR et le SWIR à partir de la technique DOAS. Le système combine les avantages des systèmes utilisant une source accordable (TLAS) et un supercontinuum (SAS). Une source OPG, ayant un taux de répétition approprié, émet un spectre modérément large (10-100 nm). La longueur d'onde est accordable dans la région des signatures MWIR définie par l'application. La détection du spectre de chaque impulsion est effectuée avec un spectrographe. Le système combine ainsi une densité spectrale d'énergie élevée et, afin de figer l'atmosphère, une détection simultanée de toutes les longueurs d'onde.

Les propriétés de la source à la base du système ont été étudiées numériquement et expérimentalement afin d'optimiser son utilisation pour la mesure de gaz. En plus des autres composants du système de télédétection, nous avons construit une caméra MCT-APD opérant en mode de crénelage temporel. La preuve de concept du système a montré la détection simultanée, dans l'air et dans une cellule, du H<sub>2</sub>O et CO<sub>2</sub> à 2  $\mu$ m et du H<sub>2</sub>O et CH<sub>4</sub> à 3.3  $\mu$ m. Dans le contexte de l'expérience, les limites de détection sont respectivement de 158 et 1 ppm·m pour le gaz carbonique et le méthane. Les propriétés du système sont comparables à celles des récents systèmes DOAS opérant dans le MWIR. Nous avons

proposé des modifications à apporter au système qui permettront d'effectuer la mesure à une distance de 100 m à partir d'une cible non coopérative. Ces efforts constituent un travail important qui seront fait dans le futur. Des contrats privés assurent le développement futur de la plateforme pour la détection de gaz mais aussi la détection de cibles solides et des aérosols. La prochaine section présente une synthèse des aspects originaux de cette thèse.

# Aspects originaux

# **OPG**:

 Présentation du premier modèle numérique qui permet de simuler correctement le niveau de puissance de sortie d'un OPG large bande en régime de saturation du gain où la puissance de sortie varie proportionnellement avec la puissance de la pompe.

Le modèle numérique permet aussi d'expliquer les mécanismes de saturation du gain de l'amplificateur. La saturation est la conséquence du lissage spectral et spatial des modes de l'OPG, conséquence de la reconversion vers la pompe. Le lissage spectral est dominant dans le cas de notre OPG.

- 2. La thèse résume les liens / compromis entre les paramètres d'un OPG. Cette connaissance vient de l'analyse de nos expériences, mais également de la synthèse des informations disponibles dans la littérature. Nous avons analysé les paramètres de l'OPG pour les adapter aux besoins de la mesure de gaz à distance avec un spectre large.
- Nous avons analysé les effets des processus non colinéaires sur le spectre de l'OPG et les conséquences sur l'application.
- 4. Nous avons développé des sources à injection ayant une large bande et analysé expérimentalement leur effet sur l'OPG :

- Sous la courbe de gain de l'OPG, un ou des sources d'injection large bande permettent de modeler la forme du spectre de sortie de façon à optimiser la densité spectrale. Les photons peuvent être générés à des longueurs d'onde prédéterminées et centrées sur les signatures des molécules à détecter.  Une source d'injection large bande permet d'éteindre l'amplification non colinéaire.
 Les photons colinéaires sont favorisés puisque l'amplification débute sur des photons dont l'intensité est de plusieurs ordres de grandeur supérieure au bruit à l'origine de l'amplification non colinéaire.

- Une source d'injection large bande améliore la stabilité en augmentant la puissance de sortie et en amplifiant des photons montrant une stabilité plus importante que le bruit du vide sans source d'injection.

5. L'analyse de la stabilité de l'OPG a permis d'identifier les causes d'instabilité: 1) les fluctuations temporelles et spatiales du bruit de départ sont transférées aux faisceaux de sortie et 2) le bruit de partition de la pompe est transféré au signal et à l'idler. Ces effets sont réduits par la saturation de l'amplification. Le modèle numérique permet de comparer l'effet des différentes propriétés du pompage sur la stabilité de l'OPG (pompe SLM, pompe MLM, avec et sans source d'injection). Les simulations montrent qu'une pompe hautement multimode permettrait d'obtenir un OPG au spectre ayant des variations spectrales lentes en comparaison aux absorptions à mesurer et stable d'une impulsion à l'autre.

### Système de télédétection :

- 6. Nous avons fait la preuve de concept d'un nouveau système de détection de gaz à distance dans le MWIR. En résumé, une source laser émet un spectre optimisé en fonction de l'application. La largeur spectrale est réglable (10-100 nm) et permet d'optimiser la densité d'énergie. Le spectre est accordable dans la région des signatures MWIR définie par l'application. La détection du spectre de chaque impulsion est effectuée avec un spectrographe, ainsi toutes les longueurs d'onde sont émises et détectées simultanément. La détection est effectuée en mode de crénelage temporel afin de filtrer le bruit thermique.
- Construction d'une des premières caméras MCT-APD opérant en mode de crénelage temporel.
- 8. Développement d'un algorithme qui permet d'extraire les concentrations de gaz à partir d'un spectre de transmission présentant des signatures d'absorption non

linéaires. L'algorithme inclut aussi des paramètres de l'étalonnage (P,  $t_j$ , et  $s_j$ ) qui offrent une meilleure correspondance entre le modèle et le spectre mesuré. L'algorithme a été validé lors de la preuve de concept.

En conclusion, nous croyons que les points 1 à 5 contribuent de façon significative à la compréhension des OPG et seront utiles à la communauté scientifique. À cet effet, nous avons publié un article dans la revue *Applied Optics* [2]. Du côté du système de détection, nous croyons que notre approche est bien adaptée pour effectuer des mesures de gaz utilisant des cibles non coopératives sur quelques centaines de mètres avec du crénelage temporel. L'instrument a le potentiel d'être sélectif, sensible, robuste, transportable et facile à déployer sur le terrain. Le travail sur le système de détection fait l'objet d'un second papier publié aussi dans la revue *Applied Optics* [3].

# **Bibliographie**

- S. Girard-Lambert, M. M. Piche, C. Hongxin, G. G. Schinn, O. Wang-Yuhl, and B. B. Bouma, "SOA fiber ring lasers: single-versus multiple-mode oscillation," Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE 17, 1513-1520 (2011).
- 2. S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "Broadband and tunable Optical Parametric Generator for remote detection of gas molecules in the short and mid infrared," Applied Optics **54**, 2594-2605 (2015).
- 3. S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "A differential optical absorption spectroscopy lidar for mid-infrared gaseous measurements," Applied Optics **54**, 1647-1656 (2015).
- 4. S. Lambert-Girard, N. Hô, B. Bourliaguet, P.-F. Paradis, M. Piché, and F. Babin, "Proposal for a standoff bio-agent detection SWIR/MWIR differential scattering lidar," in *SPIE Defense, Security, and Sensing* Proc. SPIE **8358:835805**, (2012).
- 5. S. Lambert-Girard, N. Hô, B. Bourliaguet, D. Lemieux, M. Piché, and F. Babin, "Broadband spectroscopic lidar for SWIR/MWIR detection of gaseous pollutants in air," in *SPIE Remote Sensing*, Proc. SPIE **8534:853410**, (2012).
- S. Lambert-Girard, F. Babin, M. Allard, and M. Piché, "Enhancement to INO's broadband SWIR/MWIR spectroscopic Lidar," in *Optics and Photonics*, Proc. SPIE 8872:88720K, (2013).
- 7. F. Babin, S. Lambert-Girard, P.-F. Pararis, M. Piché, M. Allard, M.-C. Ferland, and J.-F. Cormier, "Concept for a standoff bioagent SWIR/MWIR differential scattering lidar," in *CBRNe convergence* (2013).
- 8. C. R. Philbrick, D. M. Brown, A. H. Willitsford, P. S. Edwards, A. M. Wyant, Z. Z. Liu, C. T. Chadwick, and H. Hallen, "Remote Sensing of chemical species in the atmosphere," in *Fourth Symposium on Lidar Atmospheric Applications*, (2009).
- 9. B. I. Vasil'ev and O. Mannoun, "IR differential-absorption lidars for ecological monitoring of the environment," Quantum Electronics **36**, 801-820 (2006).
- 10. C. Stephan, M. Alpers, B. Millet, G. Ehret, P. Flamant, and C. Deniel, "MERLIN: a space-based methane monitor," in *SPIE Optical Engineering + Applications*, Proc. SPIE **8159:815908**, (2011).
- 11. K. Numata, S. Li, H. Riris, S. Wu, A. Seas, A. Yu, M. Krainak, and J. Abshire, "Seeded nanosecond optical parametric generator for trace gas measurements," in Proc. SPIE **7582:75820K**, (2010).

- 12. R. A. Alvarez, S. W. Pacala, J. J. Winebrake, W. L. Chameides, and S. P. Hamburg, "Greater focus needed on methane leakage from natural gas infrastructure," Proceedings of the National Academy of Sciences **109**, 6435-6440 (2012).
- 13. Wikipedia contributors, "Regulation of greenhouse gases under the Clean Air Act," *Wikipedia, The free encyclopedia,* <u>http://en.wikipedia.org/wiki/Regulation\_of\_greenhouse\_gases\_under\_the\_Clean\_Ai</u> <u>r\_Act</u> (accessed January 10, 2014).
- 14. U. Platt and J. Stutz, *Differential Optical Absorption Spectroscopy: Principles and Applications* (Springer Verlag, 2007).
- 15. P. Weibring, C. Abrahamsson, M. Sjöholm, J. N. Smith, H. Edner, and S. Svanberg, "Multi-component chemical analysis of gas mixtures using a continuously tuneable lidar system," Applied Physics B **79**, 525-530 (2004).
- G. B. Rieker, F. R. Giorgetta, I. Coddington, W. C. Swann, L. Sinclair, C. L. Cromer, E. Baumann, A. M. Zolot, and N. R. Newbury, "Dual-Comb Spectroscopy of Greenhouse Gases Over a 2-km Outdoor Path," in *Renewable Energy and the Environment*, 2013 OSA Technical Digest Series (Optical Society of Ameria, 2013), paper ET2A.2.
- 17. M. Taslakov, V. Simeonov, M. Froidevaux, and H. van den Bergh, "Open-path ozone detection by quantum-cascade laser," Applied Physics B **82**, 501-506 (2006).
- 18. W. Chen, G. Mouret, D. Boucher, and F. K. Tittel, "Mid-infrared trace gas detection using continuous-wave difference frequency generation in periodically poled RbTiOAsO4," Applied Physics B: Lasers and Optics **72**, 873-876 (2001).
- 19. GATS, "SpectralCalc," <u>http://www.spectralcalc.com</u> (accessed 2014).
- L. S. Rothman, I. E. Gordon, A. Barbe, D. C. Benner, P. F. Bernath, M. Birk, V. Boudon, L. R. Brown, A. Campargue, J. P. Champion, K. Chance, L. H. Coudert, V. Dana, V. M. Devi, S. Fally, J. M. Flaud, R. R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, I. Kleiner, N. Lacome, W. J. Lafferty, J. Y. Mandin, S. T. Massie, S. N. Mikhailenko, C. E. Miller, N. Moazzen-Ahmadi, O. V. Naumenko, A. V. Nikitin, J. Orphal, V. I. Perevalov, A. Perrin, A. Predoi-Cross, C. P. Rinsland, M. Rotger, M. Simeckova, M. A. H. Smith, K. Sung, S. A. Tashkun, J. Tennyson, R. A. Toth, A. C. Vandaele, and J. Vander Auwera, "The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database," Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 110, 533-572 (2009).
- 21. B. Hardy, M. Raybaut, J. B. Dherbecourt, J. M. Melkonian, A. Godard, A. K. Mohamed, and M. Lefebvre, "Vernier frequency sampling: a new tuning approach in spectroscopy application to multi-wavelength integrated path DIAL," Applied Physics B **107**, 643-647 (2012).
- 22. Physical Sciences Inc., "TDLAS," <u>http://www.tdlas.com/</u> (accessed January 10, 2014).

- 23. B. Thomas, A. Miffre, G. David, J. P. Cariou, and P. Rairoux, "Remote sensing of trace gases with optical correlation spectroscopy and lidar: theoretical and numerical approach," Applied Physics B **108**, 689-702 (2012).
- 24. F. Adler, P. Mastowski, A. Foltynowicz, K. C. Cossel, T. C. Briles, I. Hartl, and J. Ye, "Mid-infrared Fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb," Opt. Express **18**, 21861-21872 (2010).
- 25. J. W. Early, C. S. Lester, C. R. Quick, J. J. Tiee, T. Shimada, and N. J. Cockroft, "Continuously-Tunable, Narrow-Linewidth, Q-Switched Cr:LiSAF Laser for Lidar Applications," in *Advanced Solid State Lasers*, OSA Proceedings Series AP3 (1995).
- 26. Cerex Inc., "Cerex," <u>http://cerexms.com/</u> (accessed January 10, 2014).
- 27. S. Boudreau, S. Levasseur, C. Perilla, S. Roy, and J. Genest, "Chemical detection with hyperspectral lidar using dual frequency combs," Opt. Express **21**, 7411-7418 (2013).
- 28. D. M. Brown, K. Shi, Z. Liu, and C. R. Philbrick, "Long-path supercontinuum absorption spectroscopy for measurement of atmospheric constituents," Optics Express 16, 8457-8471 (2008).
- 29. A. Dobroc and N. Cézard, "Performance assessment and signal processing for rangeintegrated concentration measurement of gas species using supercontinuum absorption spectroscopy," Appl. Opt. **51**, 8470-8480 (2012).
- M. Kumar, M. N. Islam, F. L. Terry, M. J. Freeman, A. Chan, M. Neelakandan, and T. Manzur, "Stand-off detection of solid targets with diffuse reflection spectroscopy using a high-power mid-infrared supercontinuum source," Appl. Opt. 51, 2794-2807 (2012).
- 31. F. Théberge, N. Thiré, J.-F. Daigle, P. Mathieu, B. E. Schmidt, Y. Messaddeq, R. Vallée, and F. Légaré, "Multioctave infrared supercontinuum generation in large-core As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> fibers," Optics Letters **39**, 6474-6477 (2014).
- 32. E. Degtiarev, "A Compact Frequency Agile Mid-Infrared Airborne Lidar," (DTIC Document, 2006).
- 33. K. Ruxton, N. A. Macleod, D. Weidmann, G. P. A. Malcolm, and G. T. Maker, "Concentration measurements of complex mixtures of broadband absorbers by widely tunable optical parametric oscillator laser spectroscopy," in *Image and Signal Processing for Remote Sensing XVIII*, Proc. SPIE **8537**, 85370I (2012).
- 34. K. Ruxton, G. Robertson, B. Miller, G. P. A. Malcolm, and G. T. Maker, "Hazardous material analysis using mid-wave infrared hyperspectral imaging techniques," in *Chemical, Biological, Radiological, Nuclear, and Explosives (CBRNE) Sensing XIV*, Proc. SPIE **8710**, 87100L (2013).

- 35. J. Barrientos Barria, A. Dobroc, H. Coudert-Alteirac, M. Raybaut, N. Cézard, J.-B. Dherbecourt, B. Faure, G. Souhaité, J.-M. Melkonian, A. Godard, M. Lefebvre, and J. Pelon, "3.3 3.7µm OPO/OPA optical source for multi-species 200m range Integrated Path Differential Absorption Lidar," in *Advanced Solid-State Lasers Congress*, 2013 OSA Technical Digest Series (Optical Society of Ameria, 2013), paper LTh1B.4.
- 36. P. C. Castillo, I. Sydoryk, B. Gross, and F. Moshary, "Ambient detection of CH4 and N2O by Quantum Cascade Laser," in *Advanced Environmental, Chemical, and Biological Sensing Technologies X*, Proc. SPIE **8718**, 87180J (2013).
- 37. A. P. M. Michel, P. Q. Liu, J. K. Yeung, P. Corrigan, M. L. Baeck, Z. Wang, T. Day, F. Moshary, C. F. Gmachl, and J. A. Smith, "Quantum cascade laser open-path system for remote sensing of trace gases in Beijing, China," Optical Engineering 49, 111125 (2010).
- 38. F. Tittel, D. Richter, and A. Fried, "Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy," in *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources* (2003), pp. 458-529.
- 39. R. Haris, L. Steve, N. Kenji, W. Stewart, A. Seas, and A. Jim, "LIDAR technology for measuring trace gases on Mars and Earth," in *25th International Laser Radar Conference*, (2010).
- 40. R. W. Boyd, Nonlinear Optics (Academic Press, 2008).
- 41. V. Pasiskevicius and F. Laurell, "Optical parametric generators and amplifiers," in *Mid-Infrared Coherent Sources and Applications* (Springer, 2008), pp. 393-418.
- O. Svelto, S. Longhi, G. Valle, S. Kück, G. Huber, M. Pollnau, H. Hillmer, S. Hansmann, R. Engelbrecht, H. Brand, J. Kaiser, A. Peterson, R. Malz, S. Steinberg, G. Marowsky, U. Brinkmann, D. Lo, A. Borsutzky, H. Wächter, M. Sigrist, E. Saldin, E. Schneidmiller, M. Yurkov, K. Midorikawa, J. Hein, R. Sauerbrey, and J. Helmcke, "Lasers and Coherent Light Sources," in *Handbook of Lasers and Optics* (Springer, 2007).
- 43. P. S. Kuo, K. L. Vodopyanov, M. M. Fejer, D. M. Simanovskii, X. Yu, J. S. Harris, D. Bliss, and D. Weyburne, "Optical parametric generation of a mid-infrared continuum in orientation-patterned GaAs," Opt. Lett. **31**, 71-73 (2006).
- 44. J. J. Zayhowski, "Periodically poled lithium niobate optical parametric amplifiers pumped by high-power passively Q-switched microchip lasers," Opt. Lett. **22**, 169-171 (1997).
- 45. Private communication with PPXX manufacturers (Coversion, HCPhotonics, Deltronics, Oxide Corporation)

- 46. L. Z. Xia, H. Su, S. C. Ruan, and R. Zhou, "Continuous-tunable 4.144–4.851 μm twin-MgO:PPLN cascaded optical parametric generator pumped by a 1.342 μm Nd:GdVO4 laser," Optics Commun. **282**, 2564-2566 (2009).
- 47. U. Bäder, T. Mattern, T. Bauer, J. Bartschke, M. Rahm, A. Borsutzky, and R. Wallenstein, "Pulsed nanosecond optical parametric generator based on periodically poled lithium niobate," Optics Commun. **217**, 375-380 (2003).
- 48. C. N. Y. Shibata, M. Abo, "QPM-OPG based high power laser transmitter for CO2-DIAL," in 25h International Laser radar Conference, (2010).
- 49. Y. Shibata, C. Nagasawa, and M. Abo, "A direct detection 1.6 μm dial with three wavelengths for high accuracy measurements of vertical CO<sub>2</sub> concentration and temperature profiles," in *Lidar Technologies, Techniques, and Measurements for Atmospheric Remote Sensing IX*, Proc. SPIE **8894**, (2011).
- 50. C. Nagasawa, M. Abo, Y. Shibata, T. Nagai, and M. Tsukamoto, "Direct detection 1.6μm DIAL for measurements of CO<sub>2</sub> concentration profiles in the troposphere," in *Lidar Technologies, Techniques, and Measurements for Atmospheric Remote Sensing VII*, Proc. SPIE **8182**, 81820G (2011).
- 51. A. A. Machnev, P. B. Novozhylov, A. A. Poimanov, and I. V. Melnikov, "Singlepass parametric generator made of DFB diodes, specialty-fiber amplifier, and periodically-poled lithium niobate," Opt. Mater. Express **3**, 1608-1615 (2013).
- 52. Xiton, "XOPG," <u>http://www.xiton-photonics.com</u> (accessed January 10, 2014).
- 53. K. Numata, H. Riris, S. Li, S. Wu, S. Kawa, M. Dawsey, A. Ramanathan, J. Mao, M. Krainak, and J. Abshire, "Ground and airborne methane measurements with an optical parametric amplifier," in Proc. SPIE **8379**, (2012).
- 54. C. An-Chung, W. Tsong-Dong, L. Yen-Yin, L. Chee-Wai, C. Yen-Hung, W. Bi-Cheng, H. Yen-Chieh, S. Jow-Tsong, L. Yu-Pin, C. Yung-Fu, and T. Pei-Hsi, "Pulsed optical parametric generation, amplification, and oscillation in monolithic periodically poled lithium niobate crystals," IEEE Journal of Quantum Electronics 40, 791-799 (2004).
- 55. B. Köhler, U. Bäder, A. Nebel, J. P. Meyn, and R. Wallenstein, "A 9.5-W 82-MHzrepetition-rate picosecond optical parametric generator with cw diode laser injection seeding," Applied Physics B: Lasers and Optics **75**, 31-34 (2002).
- 56. M. Koichi, K. Miyamoto, S. Ujita, T. Saito, H. Ito, and T. Omatsu, "Dual-frequency picosecond optical parametric generator pumped by a Nd-doped vanadate bounce laser," Optics Express **19**, 18523-18528 (2011).
- 57. S. V. Marchese, E. Innerhofer, R. Paschotta, S. Kurimura, K. Kitamura, G. Arisholm, and U. Keller, "Room temperature femtosecond optical parametric generation in MgO-doped stoichiometric LiTaO<sub>3</sub>," Applied Physics B **81**, 1049-1052 (2005).

- 58. T. Sudmeyer and et al., "Novel ultrafast parametric systems: high repetition rate single-pass OPG and fibre-feedback OPO," Journal of Physics D: Applied Physics **34**, 2433 (2001).
- 59. T. Sudmeyer, E. Brunner, R. Paschotta, T. Usami, H. Ito, M. Nakamura, K. Kitamura, and U. Keller, "Femtosecond optical parametric generation (OPG) in periodically poled stoichiometric LiTaO3 with >1 W average power," in *CLEO*, 260 vol.261 (2002).
- 60. M. Levenius, V. Pasiskevicius, F. Laurell, and K. Gallo, "Ultra-broadband optical parametric generation in periodically poled stoichiometric LiTaO3," Optics Express **19**, 4121-4128 (2011).
- 61. N. E. Yu, Y. Lee, Y. L. Lee, C. Jung, D.-K. Ko, J. Lee, K. Kitamura, S. Takekawa, and J. H. Ro, "Efficient Single-Pass Optical Parametric Generator for Environmental Gas Sensing Based on Periodically Poled Stoichiometric Lithium Tantalate," in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, OSA Technical Digest Series (CD) CTuU1 (2007).
- 62. M. Rahm, U. Bäder, G. Anstett, J. P. Meyn, R. Wallenstein, and A. Borsutzky, "Pulseto-pulse wavelength tuning of an injection seeded nanosecond optical parametric generator with 10 kHz repetition rate," Applied Physics B **75**, 47-51 (2002).
- 63. B. Zhang, J. Yao, T. Zhang, F. Ji, Y. Lu, and P. Zhao, "Tunable quasi-phase-matched optical parametric generator by translating a segmented crystal," Optics Communications **270**, 368-372 (2007).
- 64. A. C. Chiang, T. D. Wang, Y. Y. Lin, C. W. Lau, Y. H. Chen, B. C. Wong, Y. C. Huang, J. T. Shy, Y. P. Lan, Y. F. Chen, and P. H. Tsao, "Pulsed optical parametric generation, amplification, and oscillation in monolithic periodically poled lithium niobate crystals," IEEE Journal of Quantum Electronics **40**, 791-799 (2004).
- 65. O. Prakash, H. H. Lim, B. J. Kim, K. Pandiyan, M. Cha, and B. Rhee, "Collinear broadband optical parametric generation in periodically poled lithium niobate crystals by group velocity matching," Applied Physics B **92**, 535-541 (2008).
- 66. O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie, "Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO<sub>3</sub>," Applied Physics B **91**, 343-348 (2008).
- 67. O. Chalus, P. G. Schunemann, K. T. Zawilski, J. Biegert, and M. Ebrahim-Zadeh, "CdSiP<sub>2</sub> optical parametric generator," in Proc. SPIE **7917**, 79170L (2011).
- 68. S. Acco, A. Arie, Y. Ben-Aryeh, M. Katz, and P. Blau, "Modeling the power of an optical parametric generator by discrete mode summation," Applied Physics B **103**, 89-97 (2011).

- 69. T. Nishikawa and N. Uesugi, "Effects of walk-off and group velocity difference on the optical parametric generation in KTiOPO<sub>4</sub> crystals," Journal of Applied Physics **77**, 4941-4947 (1995).
- 70. Y. Guan, J. W. Haus, and P. Powers, "Broadband and off-axis optical parametric generation in periodically poled LiNbO<sub>3</sub>," J. Opt. Soc. Am. B **21**, 1225-1233 (2004).
- 71. G. P. Agrawal, *Nonlinear fiber optics* (Academic press, 2007).
- 72. Y. Guan, J. W. Haus, and P. Powers, "Macroscopic quantum fluctuations of pulsed nanosecond optical parametric generation in periodically-poled LiNbO<sub>3</sub>," Phys. Rev. A **71**, 023809 (2005).
- 73. A. E. Siegman, *Lasers* (University Science Books, 1986).
- 74. G. Arisholm, R. Paschotta, and T. Südmeyer, "Limits to the power scalability of highgain optical parametric amplifiers," J. Opt. Soc. Am. B **21**, 578-590 (2004).
- 75. S. M. Russell, "Novel Quasi-Phase-Matched Devices in Periodically Pole Lithium Nobate," Ph.D. Thesis (University of Dayton, 2001).
- 76. V. Pasiskevicius, J. Hellstrom, H. Karlsson, J. A. Tellefsen, and F. Laurell, "Highpower optical parametric oscillator with large-aperture periodically poled KTiOPO<sub>4</sub>," in *Advanced Solid State Lasers*, 2000 OSA Technical Digest Series (Optical Society of Ameria, 2000), paper TuA6.
- 77. L. Nugent-Glandorf, T. Neely, F. Adler, A. J. Fleisher, K. C. Cossel, B. Bjork, T. Dinneen, J. Ye, and S. A. Diddams, "Mid-infrared virtually imaged phased array spectrometer for rapid and broadband trace gas detection," Opt. Lett. **37**, 3285-3287 (2012).
- 78. M. Charbonneau-Lefort, B. Afeyan, and M. M. Fejer, "Competing collinear and noncollinear interactions in chirped quasi-phase-matched optical parametric amplifiers," J. Opt. Soc. Am. B **25**, 1402-1413 (2008).
- 79. J. Rothman, E. De Borniol, O. Gravrand, S. Bisotto, L. Mollard, F. Guellec, F. Pistone, S. Courtas, and X. Lefoule, "HgCdTe APD-focal plane array development at DEFIR," in *Electro-Optical and Infrared Systems: Technology and Applications VII*, Proc. SPIE **7834**, 783400-78348 (2010).
- 80. DOASIS, "DOASIS intelligent system," https://doasis.iup.uniheidelberg.de/bugtracker/projects/doasis/ (accessed January 10, 2014).
- 81. J. Hodgkinson and R. Tatam, "Optical gas sensing: a review," Measurement Science and Technology **24**, 012004 (2013).
- 82. A. Dobroc, "Etude et réalisation de dispositifs optiques à large couverture spectrale pour la détection multi-gaz à distance," (Ecole Polytechnique X, 2013).

- 83. R. M. Measures, *Laser remote sensing* (Krieger Publishing Company, 1992).
- 84. Y. Ferrec, N. Ayari-Matallah, P. Chavel, F. Goudail, H. Sauer, J. Taboury, J.-C. Fontanella, C. Coudrain, and J. Primot, "Noise sources in imaging static Fourier transform spectrometers," Optical Engineering **51**(2012).
- 85. S. Désilets, Théberge, F., Puckrim, E., Roy, G., Mathieu, P., Simard, J.-R., Châteauneuf, Babin, F., Lavoie, H., Gay, D., Deblois, S., "Standoff detection of explosives using Raman, LIBS and IR emission spectroscopies: Principles and results," in *2nd Annual workshop on Trace Explosive Detection*, (Baltimore, 2010).
- 86. K. Ruxton, G. Robertson, W. Miller, G. P. A. Malcolm, and G. T. Maker, "Midinfrared hyperspectral imaging for the detection of explosive compounds," in *Optics and Photonics for Counterterrorism, Crime Fighting, and Defence VIII*, Proc. SPIE **8546**, 85460V (2012).
- 87. E. Thrush, D. M. Brown, N. Salciccioli, J. Gomes, A. Brown, K. Siegrist, M. E. Thomas, N. T. Boggs, and C. C. Carter, "Optical properties and cross-sections of biological aerosols," in *Chemical, Biological, Radiological, Nuclear, and Explosives (CBRNE) Sensing XI*, 766507-766509 (2010).

# Annexe 1: SOA Fiber Ring Lasers: Single vs Multimode Laser

Au cours de la première année du doctorat, j'ai travaillé sur la dynamique d'une cavité laser fibrée ayant comme milieu de gain un amplificateur à semi-conducteur. Ce travail est résumé dans un papier intitulé *SOA Fiber Ring Lasers: Single- Versus Multiple-Mode Oscillation*, publié dans le journal *Selected Topics in Quantum Electronics* et présenté dans cet annexe.

# SOA Fiber Ring Lasers: Single- Versus Multiple-Mode Oscillation

Simon Lambert Girard, Michel Piché, Hongxin Chen, Gregory W. Schinn, *Member, IEEE*, Wang-Yuhl Oh, and Brett E. Bouma

Abstract-Earlier investigations have demonstrated that a narrow bandwidth intracavity filter in a semiconductor optical amplifier (SOA) fiber ring laser results in an output spectrum comprising multiple longitudinal modes, whereas a large bandwidth filter generally leads to quasi-single-mode oscillation. In this paper, we report on a numerical model simulating the SOA fiber ring laser dynamics and compare its predictions with experimental results obtained with two different SOAs. We demonstrate that the observed experimental behavior results from the interplay between the complex transfer function of the intracavity optical filter, fast gain saturation and four-wave mixing (FWM) due to the linewidth enhancement factor. The dispersion introduced by the complex transfer function of the filter can lead to modulation instability, which plays a key role in the laser dynamics that can evolve into a single-longitudinal mode (SLM) operation. We also simulate the behavior of the laser emission when the wavelength of the optical filter is finely tuned.

Index Terms—Fiber laser, nonlinear optical device, optical tuning, semiconductor device noise, semiconductor optical amplifiers.

#### I. INTRODUCTION

I N RECENT years, there has been an increase of interest for semiconductor optical amplifier (SOA) fiber ring lasers (SFRLs). A fiber laser employing an SOA as the gain medium and an optical filter for wavelength selection can exhibit high small-signal gain factor ( $G_0 > 30$  dB), high saturation power ( $P_{\text{sat}} > 19$  dBm), large gain bandwidth (>140 nm), rapid tunability (full scan at >100 KHz), easy electrical pumping, and direct coupling to fibered systems. Moreover, depending upon the choice of the particular gain chip, it is not limited to operation about the 1.5- $\mu$ m telecommunications C-band, unlike lasers based on Er-doped fibers. Many applications have exploited these properties of SFRLs. For example, when a rapidly

Manuscript received December 1, 2010; revised January 27, 2011; accepted February 5, 2011. Date of publication April 5, 2011; date of current version December 7, 2011. This work was supported by the Canadian Institute for Photonic Innovations (CIPI), the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC), and EXFO Inc.

S. L. Girard and M. Piché are with the Centre d'Optique, Photonique et Laser, Université Laval, Québec, Qc, G1V 0A6 Canada (e-mail: simon. lambert-girard.1@ulaval.ca).

H. Chen and G. W. Schinn are with EXFO Inc., Québec, QC, G1M 2K2, Canada.

W. Y. Oh was with the Harvard Medical School and Wellman Center for Photomedicine, Massachusetts General Hospital, Boston, MA 02114 USA. He is now with the Department of Mechanical Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology, Daejeon 305-701, Korea.

B. E. Bouma is with the Harvard Medical School and Wellman Center for Photomedicine, Massachusetts General Hospital, Boston, MA 02114 USA.

Digital Object Identifier 10.1109/JSTQE.2011.2119294

swept bandpass filter is inserted inside the SFRL cavity, the laser becomes an ideal source for optical frequency domain imaging (OFDI); as a result, this scheme of optical coherence tomography (OCT) enables the rapid image acquisition rates required for real-time and large-field-of-view imaging having high sensitivity and high resolution [1]. In this mode of operation, laser emission occurs continuously at successive wavelengths, creating multiple longitudinal mode (MLM) laser emission whose linewidth depends on the mode suppression conditions. SFRLs have also been employed as the light source for optical test and measurement (T&M) instruments suitable for characterizing wavelength division multiplexing (WDM) components and subsystems [2]. For this application one typically uses a narrowbandwidth intracavity filter, resulting in an MLM source having an effective optical linewidth (defined by the envelope of the multiple oscillating longitudinal modes) in the multigigahertz range. On account of this comparatively wide linewidth, these sources are generally not applicable for dense WDM (DWDM) applications (e.g., detailed spectral characterization within 50-GHz-spaced channels). Means for controlling the linewidth have been reported [3], but could not be fully optimized, since the details of the laser dynamics under fixed and tunable filter operation were not fully understood.

This lack of understanding is mainly attributable to specific properties of SOAs, most importantly their large phase nonlinearity, characterized by the so-called linewidth enhancement factor ( $\alpha_H$ ), and their short carrier lifetime (<1 ns). This last behavior, coupled with a nonzero  $\alpha_H$  value, results in rapid gain saturation and recovery, inducing high-frequency modulation and leading to distinctive laser dynamics. Typically, an SOAbased fiber ring laser oscillates on either a single-longitudinal mode (SLM) or on multiple longitudinal modes (MLM). Counterintuitively, MLM oscillation takes place with a narrow intracavity optical filter bandwidth whereas quasi-SLM oscillation occurs when the filter bandwidth is larger [4]. SLM oscillation is characterized by continuous-wave (CW) output power and a very narrow optical frequency spectrum, although the oscillation is prone to mode hopping. On the other hand, the rf baseband spectrum of SFRLs operated in the multimode regime exhibits powerful beat tones spanning many GHz. In order to optimize new SFRL designs and specialty configurations, there is hence a need for a fundamental understanding of the physics underlying their operation.

In this paper, we numerically model the SFRL dynamics and reproduce the dependence of the observed SLM and MLM oscillation regimes on the intracavity optical-filter bandwidth. The paper is organized as follows: In Section II, we analyze physical

1077-260X/\$26.00 © 2011 IEEE

processes taking place in SOA-based fiber ring lasers such as gain saturation, red shift of the laser oscillation wavelength, asymmetric four-wave mixing, and modulation instability. In Section III, we describe the numerical procedure used to simulate SFRLs. In Section IV, we numerically simulate the transient and steady-state characteristics of SFRLs and identify the laser parameters that lead to the two regimes of operation (SLM vs. MLM). Finally, in Section V, we report experimental observation of SLM and MLM regimes as well as the behavior of the laser spectral content.

### II. PHYSICAL PROCESSES TAKING PLACE IN AN SFRL

The intrinsic properties of an SOA, namely, its linewidth enhancement factor and short carrier lifetime, and their implications for light amplification have been addressed both theoretically and experimentally by many authors [5]–[9]. However, few papers have investigated the laser behavior when an SOA is introduced inside a laser cavity incorporating a fixed optical filter and a long (>1 m) optical fiber. Under such circumstances, the combination of saturation, linewidth enhancement factor and optical filtering leads to complex behavior. In this section, starting with the equations governing the SOA dynamics, we describe two important mechanisms required to understand the build up of quasi-SLM and MLM oscillations: asymmetric four-wave mixing and laser field stability with respect to cavity perturbations.

The propagation of a laser signal inside an SOA is governed by differential equations describing field propagation and saturated amplification [8]

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{1}{2} (1 + j\alpha_H) g E - \frac{1}{2} a_{\text{SOA}} E \tag{1}$$

$$\frac{dh}{d\tau} = \frac{g_0 l - h}{\tau_c} - \frac{P_{\rm in}(\tau)}{E_{\rm sat}} [\exp(h(\tau)) - 1]$$
(2)

$$h(\tau) = \int_0^l g(z,\tau) dz \tag{3}$$

where h(t) is the time-dependent integrated gain,  $\tau$  the time in the reference frame of the field envelope, g the gain coefficient,  $g_0$  the small signal gain, l the SOA length,  $a_{SOA}$  the SOA losses,  $E_{sat}$  the SOA saturation energy,  $\tau_c$  the carrier lifetime,  $P_{in}$  the incident power and  $\alpha_H$  the linewidth enhancement factor. The saturation power of the SOA is given by  $P_{sat} = E_{sat}/\tau_c$ . Parameter  $\alpha_H$  describes coupling between gain and refractive index inside the semiconductor material. Combining (1), (2), and (3) and neglecting losses ( $a_{SOA} = 0$ ), the output field from the SOA may be cast as [8]

$$E_{\rm out}(\tau) = E_{\rm in}(\tau) \exp\left[1/2(1+j\alpha_H)h(\tau)\right]$$
 (4)

where the last term in the exponential is the phase modulation introduced by the variation of SOA gain due to saturation.  $\alpha_H$  is also termed the SOA nonlinear parameter because gain saturation is a nonlinear process that impacts the laser phase through  $\alpha_H$ . Experimentally it is observed that the laser spectrum is always red-shifted with respect to the center of filter bandwidth [7], [8]; the presence of  $\alpha_H$  is the reason behind this behavior. To understand the origin of the red shift associated with propagation in an SOA, we numerically integrated (2). We considered the laser signal at the output of the SOA, as given by (4), for input waveforms having dc and transient components of different amplitudes and time scales. This procedure is an extension of the work presented in [8], which employed Gaussian pulses. Simulations revealed that the output spectrum is always red shifted (as long as  $\alpha_H > 0$ ). This red shift is explained as follows: First, temporal variations of input power that are faster than the SOA gain dynamics result in asymmetrical and temporally shifted (retarded) integrated gain. Negative frequency chirp is associated with the decrease of the integrated gain, which, in turn, is coupled to the growing power. Hence red-shifted components are always stronger than blue-shifted components. In the frequency domain, the phase modulation due to  $\alpha_H$  induces four-wave mixing (FWM) [9] between modes, resulting in the spectral spread of the energy. The red part of the laser spectrum is then favored at the expense of its blue components for the aforementioned reason.

In [10], the short-term stability of SFRLs was attributed to 1) the absence of relaxation oscillations under perturbations due to fast carrier lifetime (as opposed to rare-earth-doped fiber lasers) and the long cavity length (as opposed to monolithic diode lasers), and 2) suppression of mode competition by the SOA high-pass filtering (HPF). Sato et al. reported in [11] that the SOA acts as a high-pass filter having a frequency cutoff at a few GHz, because the temporal oscillations of laser intensity created by mode beating are suppressed by fast gain saturation. The authors thus concluded that gain saturation suppresses optical mode beating and thus mode competition. However, the SOA transfer functions developed in [10] and [11] did not take into consideration  $\alpha_H$ . Reduction of mode beating is effectively visible experimentally on RF spectra but no measurements of the narrowing of the optical spectrum are reported in [10] and [11]. When  $\alpha_H$  is included in single-pass propagation through an SOA, power oscillations are suppressed by its HPF, but the pulse spectrum is broadened because of FWM; red sidebands then experience a larger gain [9]. The effective transfer function should take into account both FWM and gain saturation. Hence, on account of the  $\alpha_H$ -induced phase dynamics, gain saturation alone does not suffice to suppress mode competition and establish an SLM regime. To illustrate the interplay between HPF and FWM, (2) was solved numerically for an input signal constituted of continuous-wave (CW) pump and probe, thereby permitting the behavior of the gain coefficient of the probe as a function of the pump-probe detuning [9] to be investigated. Fig. 1 shows the result of the numerical simulation. Asymmetric FWM enhances the gain of a probe whose frequency is located on the red side of the pump, whereas a blue probe undergoes additional losses. When  $\alpha_h = 0$ , the curve represents the SOA HPF response, in agreement with the theoretical description in [11]. With the selected SOA parameters ( $G_0 = 21 \text{ dB}, P_{\text{sat}} = 18 \text{ mW}, \alpha_H = 3$ ,  $\tau_c = 0.44$  ns), the HPF has a bandwidth of about 1 GHz and a probe tuned at -1 GHz from the pump sees the maximum gain due to FWM. For the rest of this paper, the term FWM will embrace the overall SOA transfer function and include the gain saturation effect.

1514



Fig. 1. Variation of the gain coefficient of the probe signal normalized with respect to pump gain as a function of the pump-probe detuning ( $P_{pump} = 10 \text{ mW}$ ). The black curve represents the asymmetric FWM gain. The gray curve is the "high-pass filter effect" (HPF) when  $\alpha_h = 0$ .

Hence, the stability analysis employed in [10] must be extended to include the SOA nonlinearities and intracavity optical filtering. The insertion of a filter having an appropriate bandpass width inside the fiber ring cavity is a prerequisite in order to build quasi-SLM operation. A filter enables cavity-mode selection and wavelength tuning. It should be recalled that any filter is characterized by both real and imaginary components of its transfer function. In order to improve the previous analyses, we first examine modulation instability in an SFRL under SLM regime. Light propagation in an optical fiber having a positive nonlinear Kerr constant  $\boldsymbol{\gamma}$  and group-velocity dispersion  $\beta_{2 \text{ fiber}}$  is stable under disturbance only when  $\beta_{2 \text{ fiber}} > 0$  [12]. In the present case, the effects associated with  $\alpha_H$  are considered much larger than those from either the SOA intrinsic Kerr nonlinearity [8] or the Kerr nonlinearity of the optical fiber in the SFRL. The group velocity dispersion (GVD) arising from the optical filter is also included in the analysis. To do so, we assume the filter bandpass to have a Lorentzian shape, and we express its transfer function as an exponential for frequencies close to its central frequency

$$F(\omega) = \frac{1}{1 + j\omega/\Delta\omega} \approx 1 - j\omega/\Delta\omega - \left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^2 + j\left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^3$$
$$F(\omega) = \exp\left[-\frac{j\omega}{\Delta\omega} - \left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^2 + j\left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^3\right]$$
(5)

where  $\omega$  is the angular frequency relative to the central frequency of the filter ( $\omega = 0$ ),  $\Delta \omega = \Delta \lambda c \pi / \lambda^2$  where *c* is the speed of light,  $\lambda$  the wavelength and  $\Delta \lambda$  is the -3 dB filter bandwidth for  $|F(\omega)|^2$ . The first term in the exponential of (5) produces only a delay, the second is the filtering effect and the last represents third-order dispersion (TOD). For steady-state SLM operation, the filter TOD is assumed to be distributed over the entire cavity length (*L*), and hence can be related to the  $\beta_3$  term in a Taylor expansion of the propagation constant  $\beta(\omega)$ 

$$\beta(\omega) \cong \beta_0 + \beta_1(\omega) + \frac{\beta_2}{2}\omega^2 + \frac{\beta_3}{6}\omega^3 \tag{6}$$



Fig. 2. Schematic representation of the SFRL cavity.

yielding  $\beta_3 = -6(\Delta\omega^3 L)^{-1}$ . The global GVD can now be expressed as  $\beta_2 = \beta_{2 \text{ fiber}} + \beta_{2 \text{ filter}} (\omega) = \beta_{2 \text{ fiber}} + \beta_{3}\omega$ , i.e., TOD may be associated with a contribution to  $\beta_2$  that depends linearly upon frequency. With L = 6 m,  $\Delta\lambda = 0.3$  nm and a typical experimental SLM operation red-shifted by -6 GHz compared to filter center, we find  $\beta_{2 \text{ filter}} = 23 \text{ ps}^2/\text{m}$ . Neglecting fiber GVD ( $\beta_{2 \text{ fiber}} = -0.003 \text{ ps}^2/\text{m}$ ) and SOA GVD, we note that  $\beta_2$  is positive for frequencies lower than the filter central frequency ( $\omega < 0$ ). Consequently, according to the analysis presented in [12], the steady-state regime is stable when  $\omega < 0$  and is unstable on the other side of the filter bandwidth. Looking at the problem in the frequency domain, when  $\omega > 0$ , energy is transferred from a pump signal to phase-matched frequencies via FWM, rendering single-frequency oscillation unstable.

### III. NUMERICAL PROCEDURE

The SFRL cavity, previously described in [3] and [4], is depicted in Fig. 2. It includes an SOA having a peak gain at 1550 nm, a frequency filter, an isolator (I1), a 90/10 coupler (C) and polarization controllers (PCs). We use filters having a bandwidth of  $\Delta \lambda = 0.3$  and 0.12 nm, respectively. The 0.3-nm-bandwidth filter is a thin-film component described by a Lorentzian transmission profile whereas the 0.12-nm filter is a grating-based filter in a Littman double-pass configuration whose power reflectivity is described by a Gaussian profile. We numerically model the propagation of the complex electric-field envelope through the cavity in a similar manner to that described in [7]. Light propagation inside the SOA is obtained as in the previous section by numerically integrating (2), in combination with (4). In order to simulate laser operation, these equations must be constrained by the boundary condition:

$$E(\omega, z = 0) = \sqrt{\eta(1 - a_{\text{cav}})} F(\omega) \cdot \{\exp\left[-j\beta(\omega)L\right] \\ \cdot E(\omega, z = l) + N(\omega, z)\}$$
(7)

where  $\eta$  and  $a_{\rm cav}$  are the relative feedback and coupling and the cavity losses, respectively;  $N(\omega, z)$  is a white noise representing spontaneous emission. We choose to add spontaneous emission noise outside the integrated gain equation because the laser is usually operated in the highly saturated regime.

The intracavity filter is modeled by a complex Lorentzian profile  $F(\omega) = (1 + j\omega/\Delta\omega)^{-1}$ . The gain is considered to be constant over the wavelength range considered here (<0.5 nm), which is small compared with the complete SOA gain bandwidth (~100 nm). Residual dispersion and Kerr nonlinearity in either

of the SOA and cavity fiber do not introduce any significant change in the results.

Starting from spontaneous emission noise, we compute iteratively the gain and the optical field until a steady-state regime is observed (after several thousand round-trips). The optical field is computed over a time interval that spans the entire cavity roundtrip period, i.e., a frequency resolution equal to the longitudinalmode spacing. Spectral windows of 282.3 and 564.6 GHz are chosen in order to validate our results. Unless stated otherwise, the following typical values of SFRL parameters are chosen for the simulation: L = 6 m (cavity mode spacing  $\sim 34.5$  MHz),  $G_0 = \exp(g_0 \cdot l) = 21 \text{ dB}, P_{\text{sat}} = 18 \text{ mW}, a_{\text{cav}} = 0.70, \alpha_H =$ 3 and  $\eta = 0.9$ . We selected an initial laser power of 0.02 mW consisting of amplified spontaneous emission (ASE) equally distributed over the spectral window, wherein each optical frequency has a random phase. This initial power value represents the proportion of noise under the frequency range used in the simulations as compared to the total noise measured when the SOA is operated as an ASE source. Starting from the second round-trip and on account of the fast saturation, spontaneous emission was reduced to 0.1  $\mu$ W, which represents an adequate noise level during laser operation. As for the carrier lifetime, typical values reported in the literature range between 0.1 and 1 ns [13], depending on carrier density and SOA design. We selected a value of  $\tau_c = 0.44$  ns in order to obtain the best match between the simulations and our experimental results.

### IV. NUMERICAL RESULTS

### A. Steady-State Regime

Fig. 3 presents simulation results of steady-state laser output after 20 000 cavity round trips (RT). The power and laser spectrum obtained at the output coupler with a complex Lorentzian filter of  $\Delta \lambda = 0.3$ -nm bandwidth are shown in the left-most plots of Fig 3. The optical output power  $|\mathbf{E}|^2$  [see Fig. 3(a1)] exhibits no oscillation and its optical spectrum [see Fig. 3(b1)] encompasses ~15 modes, with one dominant mode red-shifted by about 5 GHz. The right-most plots present the same set of results, but where the Lorentzian filter has a  $\Delta \lambda = 0.12$ -nm bandwidth. In complete contrast to the previous case, the optical spectrum extends over several GHz [see Fig. 3(b2)] and the longitudinal-mode beating creates deep intensity fluctuations. The following sections look at the transient regime observed in the simulation and present an explanation as to how the SLM and MLM regimes develop.

### B. Transient Regime: SLM Versus MLM Regime

Fig. 3(c) displays the temporal evolution of parameters characterizing the signal spectrum as a function of round-trip number, namely, its mean frequency with respect to the central frequency of the filter and its standard deviation (the RMS linewidth). In the case of a filter having a broad bandwidth, Fig. 3(c1) shows that the laser mean frequency stabilizes at  $\approx -4.75$  GHz after about 100 cavity round trips. The frequency shift per round trip is larger during the first 20 round trips and progressively decreases to reach steady state. Rapid spectral



Fig. 3. Simulations of steady-state laser output with a  $\Delta \lambda = 0.3$ -nm (a1-b1-c1) and a  $\Delta \lambda = 0.12$  nm (a2-b2-c2) bandwidth intracavity Lorentzian filter. (a) Instantaneous laser power during round trip no. 20 000. Average output power = 2.33 mW (a1) and 2.29 mW (a2). (b1) Steady-state laser spectrum compared to the spectral response of the filter. (b2): Average laser spectrum (black curve) at steady state compared to the spectral response of the filter. The gray curve is the spectrum at round trip no. 20000. (c) Evolution of laser RMS linewidth (gray curve) and mean frequency (black curve) as a function of round-trip number (# RT) after the laser is turned on.

compression is observed during the first 20 round trips followed by a gradual narrowing, resulting in an RMS width smaller than 185 MHz after 20 000 round trips. This behavior is explained as follows: Within the first 20 round trips, spontaneous emission is amplified to a saturated level. During these round trips, temporal variations of laser gain are important due to the saturation process and the beating between laser modes. With saturation, asymmetric FWM takes place, red-shifting the laser spectrum away from the filter center. The maximal optical frequency excursion reached by the laser spectrum is determined by the joint effect of the filter and FWM; if this position is stable it allows spectral compression to occur and SLM oscillation will develop. Otherwise, steady-state laser emission will stay MLM.

Indeed, the use of a filter with a narrower bandwidth completely changes the laser dynamics. When such a filter is introduced inside the laser cavity, the dynamics during the first 50 round trips are very similar to the case of a broad filter [see Fig. 3(c1) versus 3(c2)]. However, after reaching  $\sim$ -2.25 GHz, the mean of the spectral distribution starts to slide back toward the filter center. In contrast to the case of the broad filter, the laser spectrum does not stabilize; hence spectral compression cannot occur. When the edge of the spectrum reaches the



Fig. 4. Net gain coefficient of probe  $(f_{pT})$ , pump  $(f_p)$ , and conjugate  $(f_c)$  waves when the simulation starts with a pump wave at -5 GHz (10 mW), and a probe at -0.5 GHz from the center of the filter bandwidth. The conjugate wave is created via FWM. Inset illustrates the procedure. The simulation is run assuming no SOA spontaneous emission noise.

filter center, modulation instability reinitiates the build-up process, red shifting again the spectrum. As before, the spectrum will not stabilize and will eventually slide back toward the filter center. Fig. 3(c2) shows repeated cycles of this process, which inhibits side-mode suppression and produces MLM steady-state output.

As mentioned above, the mechanism of spectral compression appears to arise from the combination of FWM and the filter shape. To illustrate this process, we numerically propagate inside the laser cavity a pump signal at  $f_p \sim -5~{
m GHz}$  from the center of the filter and a probe signal  $(f_{pr})$  between the pump frequency and the filter center (see Fig. 4). During the first pass through the SOA, the FWM process shifts part of the probe energy to the conjugate wave  $f_c$ , (often referred to as the "idler") at  $2 f_p - f_{pr}$  and to other harmonics (the red-shifted harmonics are favored). Propagation in the cavity changes the phase relation between the pump, probe, and conjugate waves, causing energy oscillation between probe and conjugate waves during the subsequent passes through the SOA. It should be noted that, in contrast to the case of negative GVD where modulation instability occurs, the pump will not be depleted. Fig. 4 shows the net gain coefficient seen by the three waves at each round trip from round trip nos. 0-100. One can see that the net gain of the couple, consisting of the probe/conjugate waves, becomes rapidly negative. This couple is thereby eliminated, as the cavity causes it to suffer larger average losses than those experienced by the pump due to the combination of FWM and the filter shape. The filter introduces relatively large losses to the coupled conjugate/probe waves, since the conjugate wave is remote from the filter center.

The same mechanism explains spectral compression when many modes and spontaneous emission coexist in real laser operation. In this case, the peak of the overall gain spectrum is red-shifted with respect to the filter center and, after the first few tens of round trips, the cavity-mode selection within the

Fig. 5. Mapping of zones leading to SLM or MLM emission as a function of the filter bandwidth and the linewidth enhancement factor ( $\tau_c = 0.44$  ns and  $a_{\rm cav} = 0.7$ ).

filter window suppresses the side modes on both sides of the laser spectrum center. The SLM regime then gradually builds up. The modes close to the center of the filter are more substantially suppressed because of the filter shape and FWM. Instead, competition with the spectrum center frequency arises from directly adjacent modes, thereby explaining why frequent mode hopping is experimentally observed in the SLM regime.

### C. Sensitivity to Physical Parameters

Whether the SFRL steady-state operation is SLM or MLM, depends upon the values of the following parameters:  $\alpha_H$ ,  $\Delta\lambda$ ,  $\alpha_{\rm cav}$ , and  $\tau_c$ . Fig. 5 shows a mapping of the zones of operation displaying SLM or MLM behavior as a function of the values of  $\alpha_H$  and  $\Delta\lambda$ , for fixed values of  $a_{cav}$  and  $\tau_c$  ( $\alpha_{cav} = 0.7$ ,  $\tau_c = 0.44$  ns). The graph is constructed by running the numerical code with many pairs of values ( $\alpha_H$ ,  $\Delta\lambda$ ) and analyzing the steady-state regime of operation. One can also see that the figure is symmetric with respect to  $\alpha_H = 0$ . Conditions for modulation instability are reversed with negative values of  $\alpha_H$ , i.e., the laser frequency is blue-shifted during the oscillation build-up and stability is achieved with positive frequency shift. Negative linewidth enhancement factors have been observed in quantum dot SOAs and quantum cascade lasers [14]. Significantly, the model confirms that high values of  $\alpha_H$  and (counterintuitively) low values of filter bandwidth  $\Delta\lambda$  promote MLM operation. In order to obtain SLM operation, the steady-state spectrum must lie between the center of the filter bandwidth and a particular maximum detuning beneath the filter shape. Beyond this maximum detuning, the filter slope no longer allows the mechanism of spectral compression described in the preceding section to occur. The maximum excursion on the filter response curve depends on cavity losses, SOA gain, filter slope,  $\alpha_H$ , and  $\tau_c$ . Lowering  $\alpha_h$  yields a smaller red-shift, whereas lowering  $\tau_c$ allows for faster frequency modulation and a larger red-shift. For example, during the build-up of a laser having a 0.1-nm

SLM

filter, the spectrum experiences similar red-shift as with a 0.3-nm filter (with the same values of  $\alpha_h$  and  $\tau_c$ ); however, the additional losses introduced by the narrower filter do not allow such red-shifted signals to evolve into a stable operation.

Our calculations demonstrate that the transition between MLM and SLM operation in Fig. 5 is offset vertically toward higher absolute values of  $\alpha_H$  when the losses  $\alpha_{cav}$  are increased; the transition takes place at lower values of  $\alpha_H$  when the carrier lifetime  $\tau_c$  is lowered. Parameters  $\alpha_{cav}$  and  $\tau_c$  are not totally independent; the lifetime  $\tau_c$  is a function of the carrier density N according to

$$\tau_c^{-1} = A + BN + CN^2$$
(8)

where A is the Shockley–Read–Hall recombination rate, B the spontaneous recombination rate, and C the Auger recombination rate [15]. In order to obtain (4), which is used to model pulse amplification, one needs to start with the differential equation describing carrier density, assume a linear gain and set B and C equal to zero; as a result, the dependence of  $\tau_c$  on the carrier density N is removed. To include this relationship in the numerical model, one would have to directly solve the differential equation for carrier density  $N(\tau,z)$  and then evaluate the gain coefficient g, using an appropriate model for laser gain. Thus, in our simulations, lowering the losses could result in a transition to MLM operation; however, according to (8), the value of  $\tau_c$  would then become larger and this effect could compensate the effect of lower losses and maintain SLM operation.

We find, both numerically and experimentally, that the absence of an intracavity filter results in complete MLM oscillation. In fact, it is not possible to simulate the SLM build-up until we take into account the complete complex nature of the filter. Using  $F(\omega) = (1 - j\omega/\Delta\omega)^{-1}$  (a noncausal filter) in the simulations always leads to a completely MLM spectrum, since, under such circumstances, the SLM oscillation cannot be maintained for frequencies below the central frequency of the filter due to modulation instability. It is experimentally observed, and confirmed in our model, that increasing the filter bandwidth beyond a certain point (e.g.,  $\Delta\lambda > 2-3$  nm) results in MLM behavior independent of the  $\alpha_H$  value. We hypothesize that the decreased filter slope is no longer sufficient to suppress side modes.

The steady-state regime displaying a quasi-CW signal was characterized as SLM. The spectrum then typically contains one or two dominant modes and a limited number of weaker side modes. The oscillating modes must have a phase relationship, leading to some form of frequency-modulated (FM) laser oscillation, in order to achieve CW operation and avoid temporal beatings. Because of these conditions, it is not possible to simulate spectra containing a unique single longitudinal mode. Increasing the noise level at steady state randomnizes the phase relation between oscillating modes, resulting in fewer modes and an overall operation closer to SLM was obtained.

#### V. EXPERIMENTAL RESULTS

### A. Single Mode Versus Multimode Regime

Our experiments, with the basic setup shown in Fig. 2, permit experimental observations of SLM and MLM regimes of oper-



Fig. 6. (a) Experimental (black) and numerical (gray) spectra displaying SLM operation obtained with a Lorentzian filter having a bandwidth  $\Delta\lambda = 0.3$  nm. (b) Spectrum extracted from heterodyne beating between an SFRL operated in single-mode oscillation and a DFB stabilized on the 1.54- $\mu$ m acetylene line (resolution ~5 MHz, SFRL mode spacing ~ 25 MHz).



Fig. 7. Experimental spectra displaying MLM emission (gray curves) obtained and filter profiles (black curves): (a) with an SOA emitting at 1.55  $\mu$ m and a Gaussian filter with a bandwidth  $\Delta \lambda = 0.12$  nm, (b) with an SOA emitting at 1.3  $\mu$ m and a Gaussian filter of bandwidth  $\Delta \lambda = 0.1$  nm.

ation. Fig. 6 shows spectra typical of SLM emission obtained with an SFRL incorporating a filter having a 0.3 nm bandwidth. Fig. 6(a) was measured with an optical spectrum analyzer (OSA) having a 1.25-GHz Gaussian response. Fig. 6(b), obtained using heterodyne measurements, indicates an SLM linewidth narrower than the mode frequency spacing. In concordance with numerical observation (see Fig. 5), we observe a transition to MLM regime as the filter bandwidth is decreased below 0.15-0.2 nm. Fig. 7 shows representative MLM output spectra; the results correspond to SFRLs including 1) an SOA emitting at 1.55  $\mu$ m with a 0.12-nm filter bandwidth, and 2) an SOA emitting at 1.3  $\mu$ m with 0.1-nm filter. For the 1.3- $\mu$ m SOA, we tested different filter bandwidths from 0.1 to 0.5 nm. Laser emission is usually MLM but quasi-SLM oscillation can appear and be sustained for brief periods with a broader filter bandwidth. The dispersion characteristics of the intracavity fiber do not affect the behavior of this laser.

Experimentally, for a given SOA, the SLM regime is obtained more readily at higher SOA saturation (or lower losses), with a shorter cavity length and when employing a filter with a broader bandwidth. Furthermore, SOAs with lower values of  $\alpha_H$  favor the development of the SLM regime. This most probably explains why SLM operation is difficult to achieve reliably with a 1.3- $\mu$ m SOA. Previously reported measurements using standard FM/AM technique [16], [17] led to a higher value of the  $\alpha_H$  factor with the 1.3- $\mu$ m SOA compared to 1.5- $\mu$ m device.



Fig. 8. Fine tuning of laser frequency. Arrows indicate tuning direction. (a) Experimental results. (b) Numerically computed results.

Finally, we recall that the linewidth enhancement factor depends upon both carrier density and laser wavelength. MLM operation is always observed at the long wavelength side of the SOA gain bandwidth where  $\alpha_H$  has been measured to increase significantly [4], [17].

#### B. Fine Tuning of Laser Wavelength

Numerical simulations also provide insight as to the spectral content of laser emission when the laser optical frequency is finely tuned. Experimentally and numerically, we sweep the filter central frequency by steps of 0.01 nm (1.25 GHz). Experimentally, when the filter is finely tuned toward longer wavelengths, laser emission remains SLM but its wavelength follows that of the filter in a staircase-like behavior with ~0.07 nm (~8.75 GHz) step size [see Fig. 8(a)] [18]. We observe this behavior with a 1.55- $\mu$ m SOA and in some circumstances with a 1.3- $\mu$ m SOA. When the filter is finely tuned toward shorter wavelengths, after an initial ~0.1-nm shift, the laser output becomes MLM; the tuning then becomes continuous [Fig. 8(a)] and SLM operation cannot be restored.

The predictions of our numerical model are globally consistent with the experimental observations [Fig. 8(b)]. We initiate the simulations with an SLM oscillation having a -5 GHz offset. When the filter is finely tuned toward longer wavelengths, the SLM losses become smaller, laser power rises and sidemode suppression still occurs. When the SLM frequency passes beyond the central frequency of the filter, the spectrum very rapidly becomes completely MLM because of modulation instability, but SLM operation is then progressively restored. We posit that this recovery of SLM operation is possible because modulation instability creates noisy conditions similar to those prevailing when the laser is first turned on. It should be realized that, during laser tuning, the SLM frequency is not simply jumping to the next staircase; instead, the laser becomes MLM and afterward the SLM operation is restored. Consequently, the frequency jump between each step of the staircase is approximately equal to the SLM frequency offset relative to the filter center.

When the filter is finely tuned toward shorter wavelengths, the calculated laser spectrum first stays SLM at its initial frequency value but it is subject to increasing losses. When the filter is tuned about 0.05 nm away from its initial frequency, the laser spectrum becomes MLM, since it is no longer possible to suppress noise

close to the filter center. SLM cannot be restored and tuning becomes essentially continuous. It seems to be necessary to build SLM operation starting from spontaneous emission or from modulation instability.

We are presently investigating why the disruption of SLM emission is irreversible when the filter is tuned toward higher frequencies. We hypothesize that the MLM regime is constituted of gray solitons [12], which are stable solutions to the cavity physics. Gray solitons seem to manifest in Fig. 3(a2). Experimental validation is underway.

### VI. CONCLUSION

Mode dynamics in SFRLs involves a complicated interplay between the inherent linewidth enhancement factor, fast gain saturation and optical filtering inside the cavity. This publication provides: 1) an explanation of the general (CW and pulsed) red-shift mechanism observed in SOAs; 2) an analysis of modulation instability inside SFRL; 3) a comprehension of SLM versus MLM operation in SFRL according to different cavity parameters (filter bandwidth,  $\alpha_H$ , losses and  $\tau_c$ ); and finally, 4) an explanation of laser frequency behavior under fine tuning operation.

Better understanding of SFRL dynamics is not only interesting from a fundamental point of view, but is also necessary for commercial use of SFRLs operated under SLM operation. For example, we previously reported how the linewidth and lineshape can be actively adjusted by applying an intracavity frequency modulation to an SFRL [3]. The improved understanding of the underlying SFRL dynamics permitting such adjustment may allow for a more robust and commercially viable implementation of this feature in test and measurement applications.

According to the specific application, it is desirable to optimize the linewidth enhancement factor because of its important consequences on laser operation. However, values of  $\alpha_H$  are not normally provided by SOA manufacturers and results vary according to the measurement method and operating conditions (current, wavelength, saturation) [13], [14]. There is thus a need for better understanding of the physical meaning of this important parameter. In the future, we believe that the advancement of this knowledge and new semiconductor geometries such as quantum dots may enable the  $\alpha_H$  characteristics of a semiconductor material to be engineered.

#### ACKNOWLEDGMENT

The authors thank Alain Champagne and Alberto Bilenca for useful discussions, and Martin Lamonde for technical support.

#### References

- S. H. Yun, G. Tearney, J. F. de Boer, N. Iftimia, and B. E. Bouma, "Highspeed optical frequency-domain imaging," *Opt. Exp.*, vol. 11, pp. 2953– 2963, 2003.
- [2] R. Baribault, H. Chen, G. He, D. Gariépy, F. Babin, and G. W. Schinn, "Stitch-free widely tunable dual-channel fiber laser for use in a passive component analyzer," *Proc. Inst. Electr. Eng., Optoelectron.*, vol. 153, pp. 262–267, 2006.
- [3] S. L. Girard, H. Chen, G. W. Schinn, and M. Piché, "Frequencymodulated, tunable, semiconductor-optical-amplifier-based fiber ring laser for linewidth and line shape control," *Opt. Lett.*, vol. 33, pp. 1920–1922, 2008.

- [4] H. Chen, G. He, F. Babin, and G. W. Schinn, "Single-frequency operation of a widely tunable SOA-based fiber ring laser," in *Proc. AOE 2006 Conf.*. Shanghai, Oct. 2006, pp. 156–158.
- [5] D. Zhou, P. R. Prucnal, and I. Glesk, "A widely tunable narrow linewidth semiconductor fiber ring laser," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 10, no. 6, pp. 781–783, Jun. 1998.
- [6] S. Yun, C. Boudoux, G. Tearney, and B. E. Bouma, "High-speed wavelength-swept semiconductor laser with a polygon-scanner-based wavelength filter," *Opt. Lett.*, vol. 28, pp. 1981–1983, 2003.
- [7] A. Bilenca, S. H. Yun, G. J. Tearney, and B. E. Bouma, "Numerical study of wavelength-swept semiconductor ring lasers: The role of refractive index nonlinearities in semiconductor optical amplifiers and implications for biomedical imaging applications," *Opt. Lett.*, vol. 31, pp. 76–762, 2006.
- [8] G. P. Agrawal and N. A. Olsson, "Self-phase modulation and spectral broadening of optical pulses in semiconductor laser amplifiers," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 25, no. 11, pp. 2297–2306, Nov. 1989.
- [9] G. P. Agrawal, "Population pulsations and nondegenerate four-wave mixing in semiconductor lasers and amplifiers," J. Opt. Soc. Amer. B, vol. 5, pp. 147–159, 1988.
- [10] Q. Xu and M. Yao, "Theoretical analyses on short-term stability of semiconductor fiber ring lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 39, no. 10, pp. 1260–1265, Oct. 2003.
- [11] L. K. Sato and H. Toba, "Reduction of mode partition noise by using semiconductor optical amplifiers," *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.*, vol. 7, no. 2, pp. 328–333, Mar./Apr. 2001.
- [12] G. P. Agrawal, "Optical solitons," in *Nonlinear Fiber Optics*, Ch. 5, 4th ed., San Diego, CA: Academic Press, 2007.
- [13] N. Storkfelt, B. Mikkelsen, D. S. Olsen, M. Yamaguchi, and K. E. Stubkjaer, "Measurement of carrier, lifetime, and linewidth enhancement factor for 1.5-pm ridge-waveguide laser amplifier," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 3, no. 7, pp. 632–634, Jul. 1991.
- [14] A. J. Zilkie, J. Meier, M. Mojahedi, A. S. Helmy, P. J. Poole, P. Barrios, D. Poitras, T. J. Rotter, C. Yang, A. Stintz, K. J. Malloy, P. W. E. Smith, and J. S. Aitchison, "Time-resolved linewidth enhancement factors in quantum dot and higher-dimensional semiconductor amplifiers operating at 1.55 μm," J. Lightwave Technol., vol. 26, pp. 1498–1509, 2008.
- [15] G. P. Agrawal and N. K. Dutta, Long-Wavelength Semiconductor Lasers. New York, NY: Van Nostrand Reinhold Co, 1986.
- [16] S. L. Girard, A. C. Sanz, H. Chen, G. W. Schinn, and M. Piché, "Measurement of SOA α factor using AM-induced FM laser operation in a fiber ring cavity," *Proc. SPIE.*, vol. 7386, p. 738624, 2009.
- [17] S. L. Girard, "Étude du régime d'émission FM d'un laser fibre muni d'un amplificateur à semi-conducteurs," Master thesis, Université Laval, 2008.
- [18] S. L. Girard, H. Chen, G. W. Schinn, and M. Piché, "FM laser oscillation in SOA based fiber ring lasers," *Proc. SPIE.*, vol. 6796, p. 67960Y, 2007.

Simon Lambert Girard received the B.Sc. degree in engineering physics and the M.Sc. degree in physics at Université Laval, Québec, QC, Canada, in 2004 and 2007, respectively. He is now working toward the Ph.D. degree in association with the Institut National d'Optique (INO), Québec, QC, Canada, in laser remote sensing field.

His Masters degree work was conducted inside the Research Group at EXFO Inc. In 2008, he visited the Wellman Center for Photomedecine, Massachusetts General Hospital, Boston, where he worked on optical frequency domain imaging under the supervision of Brett Bouma and Wang-Yul Oh. His main research interests are in the application of optics in environmental studies.

Michel Piché received the B.Sc. degree in physics at the University of Ottawa, Ottawa, ON, Canada, in 1975. He received the M.Sc. and Ph.D. degrees, in 1978 and 1980, respectively, both in physics, from Université Laval, Québec, QC, Canada.

His graduate work dealt with a new method of short pulse generation based on plasma cut-off. For his post-doctoral work, he went to INRS-Energie in Varennes, Quebec, in the laser-plasma interaction group. In 1982, he returned to the Physics Department of Université Laval, where he became a faculty member in 1984. He is the Deputy Scientific Director of the Canadian Institute for Photonic Innovations (CIPI), Université Laval, Québec, QC, Canada. His research program has embodied many theoretical and experimental aspects of laser technology, nonlinear optics, short pulse generation, and wave propagation. His present research activities are targeting the development of ultrafast fiberbased laser sources, the demonstration of novel schemes for tunable lasers, the application of conical (Bessel) beams for materials processing, and the use of radially-polarized laser beams for electron acceleration and high-resolution imaging. He has served on many national and international committees. Hongxin Chen received the B.Sc. degree in laser physics from the University of Science and Technology of China, Hefei, China, in 1988, and the M.Sc. degree in optics from the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Jiading, Shanghai, China, in 1993. He received the Ph.D. degree from The Open University, U.K., in 1999, in quantum optics/laser cooling and traoping of atoms.

He joined the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, in 1993, and continued as a Research Associate until 1995. From 1998 to 2000, he held Postdoctoral Fellowships in the Physics Departments of the University of Strathclyde, Scotland, and York University, Toronto, respectively, in laser cooling/atomic physics. In 2000, he joined the Research Group at EXFO Inc., Québec, QC, Canada, where he is now a Principal Research Scientist. He is the author of numerous papers and holds several granted or pending patents.

Gregory W. Schinn (M'77) received the B.A.Sc. degree in engineering science and M.A.Sc. degree at the University of Toronto, Mississagua, Toronto, ON, Canada, in 1980 and 1983, respectively. He received the Ph.D. degree in physics (laser spectroscopy) at JILA, University of Colorado, Boulder, in 1988.

After completion of the Ph.D. degree, he got a postdoctoral position in atomic and laser physics at the University of Virginia, Charlottesville. From 1990 to 1996, he worked as a research scientist at MPB Technologies Inc. in Montreal, leading a team designing the first commercial tunable erbium-fiber ring lasers, as well as a range of optical amplifiers for telecom applications. Since 1996, he has variously held the positions of Scientific Director, CTO, and Research /IP Director at EXFO Inc., a major manufacturer of test and measurement equipment for the telecom market.

Dr. Schinn is a member of the OSA, Canadian Association of Physicists, and, among other professional activities, is a long-standing member of the Board of Directors of the Canadian Institute for Photonic Innovations.



Wang-Yuhl Oh received the B.S., M.S., and Ph.D. degrees, all in physics, from the Korea Advanced Institute of Science and Technology (KAIST), Daejeon, Korea, in 1991, 1993, and 1997, respectively.

He was a Post-doctorial Fellow at Imperial College, London, U.K., in 1997–1998. In 1998–2002, he worked at ETRI, Korea, as a Senior Engineer. In 2002–2003, he worked for LNL Technologies, Cambridge, MA, USA, as a Senior Engineer. During 2004–2009, he was an Instructor/Research Fellow at Harvard Medical School and Massachusetts General

Hospital, Boston. In 2009, he joined of the Mechanical Engineering Department of KAIST, Korea, as an Associate Professor. Since 2009, he also has been a Visiting Scientist at Harvard Medical School and Massachusetts General Hospital, Boston. His research interests include development of novel optical imaging systems and light sources, multifunctional photonic biomedical and endoscopic clinical imaging, and image-guided therapy.

Brett E. Bouma received the Ph.D. degree from the University of Illinois, Chicago, in 1993. His doctoral dissertation research focused on understanding the interaction of ultrafast laser pulses with optical materials and plasmas.

Following the completion of his graduate work, he entered a Post-doctoral Fellowship in the EECS Department at Massachusetts Institute of Technology (MIT), Cambridge, where he continued his work with ultrafast lasers and began to explore applications in medicine and biology. He is an Associate Professor in the Harvard-MIT Division of Health Sciences and Technology and an Associate Physicist in the Wellman Center for Photomedicine at the Massachusetts General Hospital (MGH), Boston. Since starting a laboratory at MGH in 1998, he has focused his research on the development and clinical application of novel optical technologies for diagnosis and therapy.

Professor Bouma is a Fellow of the Optical Society of America.

1520